

# Inversion d'un problème électrochimique à partir d'un modèle temporel explicite non entier

Alexandre CHIBANE<sup>1</sup>, Pierre GRANGEAT<sup>1</sup>, Laurent DESBAT<sup>2</sup>

(1) LETI CEA/Grenoble DTBS, 17, rue des Martyrs 38054 GRENOBLE Cedex 9 - France +33 (0)4.38.78.53.75

(2) TIMC IMAG GMCAO - In3S - Faculté de Médecine 38706 La Tronche - France +33 (0)4.56.52.00.51

Alexandre.Chibane@cea.fr, Pierre.Grangeat@cea.fr, Laurent.Desbat@imag.fr  
<http://www-leti.cea.fr> <http://www-timc.imag.fr/gmcao/>

**Résumé**— Dans cet article, nous étudions la modélisation d'un système électrochimique grâce à un modèle de type ARX généralisé aux dérivées non entières. Cette modélisation est utile afin de représenter le comportement fonctionnel des électrodes, mais aussi pour résoudre le problème inverse consistant à déterminer l'entrée (stimulation) à partir de la sortie (lecture). Pour cela, nous avons étudié des algorithmes d'identification et de régularisation pré-existants, afin de comprendre leur fonctionnement et leur utilité par rapport aux problèmes technologiques posés. Des méthodes classiques de régularisation ont été implémentées dans ce sens.

**Mots-clés**— Identification, dérivée non entière, problème inverse, électrochimie, régularisation.

## I. INTRODUCTION

### A. Problème industriel posé

Dans le cadre des études du LETI, des électrodes de stimulation sont testées et étudiées dans l'optique de les utiliser dans un contexte applicatif en biologie. La modélisation systématique de ce genre de systèmes est difficile, du fait de la fabrication des électrodes, qui ne sont jamais identiques, et de la miniaturisation des cellules électrochimiques. Nous avons donc étudié comment modéliser ces électrodes sans connaissance *a priori* du système. Nous avons également étudié le problème inverse consistant à reconstruire l'excitation d'entrée appliquée au système en connaissant la sortie et le modèle identifié.

### B. Objectifs

On souhaite tester l'efficacité des modèles temporels non entiers pour modéliser un système électrochimique. On veut également étudier la possibilité d'utiliser ce type de modèle pour inverser le problème de la stimulation électrophysiologique, à savoir calculer une entrée inconnue à partir d'un signal de sortie mesuré sur le système. L'entrée est l'intensité imposée à travers l'électrode, la sortie est la tension mesurée entre l'électrode et l'électrode de référence.

### C. Système expérimental

Nous avons étudié un système électrochimique simple, de type électrode de stimulation pour les mesures neuronales. La solution utilisée est un PBS (Phosphate Buffer Saline), qui joue le rôle d'un liquide physiologique.

## II. MODÈLES UTILISÉS

### A. Dérivation non entière

La dérivation d'ordre non entier a été introduite dans le but de généraliser la notion usuelle de dérivation. La formule exprimée par Liouville donne une définition de l'intégration non entière d'ordre  $n \in \mathbb{R}$  :

$$I_{t_0}^n f(t) = \frac{1}{\Gamma(n)} \int_{t_0}^t \frac{f(\tau)}{(t-\tau)^{1-n}} d\tau \quad (1)$$

On peut alors définir la dérivée d'ordre  $n$  réel quelconque comme la dérivée  $n_0$ -ième de l'intégrale d'ordre  $n_0 - n$  avec  $n_0 = \lfloor n \rfloor + 1$ , soit :

$$D_{t_0}^n f(t) = \frac{d^{n_0}}{dt^{n_0}} \left( \frac{1}{\Gamma(n_0 - n)} \int_{t_0}^t \frac{f(\tau)}{(t-\tau)^{1+n-n_0}} d\tau \right) \quad (2)$$

Une autre formulation, due à Grünwald, donne l'expression de la dérivée d'ordre  $n$  d'une fonction  $f$  causale à partir d'une généralisation de la formule du binôme de Newton. En notant  $q^{-1}$  l'opérateur de retard (décalage d'un échantillon), on écrit :

$$D^1 f(Kh) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{h^1} (1 - q^{-1})^1 f(Kh) \quad (3)$$

Puis

$$D^2 f(Kh) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{h^2} (1 - q^{-1})^2 f(Kh) \quad (4)$$

Ce qui donne, pour un ordre  $n \in \mathbb{R} - \mathbb{Z}^-$  quelconque :

$$D_0^n f(Kh) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{h^n} (1 - q^{-1})^n f(Kh) \quad (5)$$

Et enfin :

$$D_0^n f(t) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{h^n} \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n}{k} f((K-k)h) \quad (6)$$

où  $\binom{n}{k} = \frac{n(n-1)\dots(n-k+1)}{k!} = \frac{\Gamma(n+1)}{\Gamma(n-k+1)\Gamma(k+1)}$ .

Cela nous permet d'utiliser une formule d'approximation pour une fonction causale échantillonnée avec un pas  $h$  :

$$D_0^n f(Kh) \approx \frac{1}{h^n} \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n}{k} f((K-k)h) \quad (7)$$

### B. Modèle explicite

Ce type de modèle consiste à généraliser les modèles ARX classiques, en appliquant l'opérateur de dérivation à la fonction  $f(t)$  étudiée contrairement aux modèles implicites où la dérivation s'applique à  $f(t)e^{t/\tau}$ . Soient  $u(t)$  et  $y(t)$  respectivement l'entrée et la sortie du système, l'équation différentielle non entière s'écrit sous la forme :

$$\sum_{l=0}^N a_l D^{n_{a_l}} y(t) = \sum_{m=0}^M b_m D^{n_{b_m}} u(t) + e(t) \quad (8)$$

où les ordres de dérivation  $n_{a_l}$  et  $n_{b_m}$  sont des nombres réels quelconques et  $e(t)$  représente l'erreur de modélisation.

### C. Détermination des ordres de dérivation

Dans le cas des systèmes thermiques, les ordres de dérivation sont d'abord déterminés à partir de propriétés analytiques démontrées pour des milieux dits "semi-infinis". Ce sont alors des multiples de 1/2. En électrochimie, on obtient classiquement  $n_a = [1.5 \ 1 \ 0.5 \ 0]$  et  $n_b = [1.5 \ 1 \ 0.5]$ , ce qui correspond au modèle de Randles classique [J.-P. Diard 96] pour des macroélectrodes et de grandes cellules, par exemple pour l'étude de batteries [Kuhn 04].

Mais cette méthode est trop approximative dans le cas des systèmes électrochimiques de type microélectrodes car les équations de diffusion associées sont trop complexes et la diffusion sphérique n'est pas négligeable. Les ordres de transfert de matière jouent ici un rôle prépondérant [Miomandre 95]. Nous utilisons un modèle de type Randles généralisé afin d'obtenir des ordres de dérivation cohérents [Chibane 05], sous la forme  $n_a = [\alpha + \beta \ \alpha \ \beta \ 0]$  et  $n_b = [\alpha + \beta \ \alpha \ \beta]$ .

Nous avons expérimenté un jeu d'ordres de dérivation, puis nous avons modifié manuellement les valeurs. Nous avons finalement utilisé :  $n_a = [1.8 \ 1 \ 0.8 \ 0]$  et  $n_b = [1.2 \ 1 \ 0.2]$ . Le problème d'optimisation de ces ordres reste un problème complexe, si l'on se restreint dans le nombre de paramètres. Une optimisation non linéaire serait envisageable, mais l'interprétation physique des paramètres en serait moins facile. Des procédés pour déterminer les ordres automatiquement existent [Oustaloup 05], mais ils sont complexes et obligent à augmenter le nombre de paramètres (ce que nous ne souhaitons pas dans un but de parcimonie du modèle).

## III. ALGORITHMES ÉTUDIÉS

### A. Identification des paramètres du modèle

La méthode utilisée se base sur la formule de Grünwald (7), qui discrétise la valeur des dérivées non entières. On met en évidence une relation linéaire entre les données expérimentales et les paramètres du modèle, sous la forme d'un système linéaire. Le problème aux moindres carrés est ainsi résolu selon la méthode développée par Le Lay dans [Oustaloup 05] et dont nous détaillons ici une version modifiée.

#### A.1 Formule d'approximation

Le calcul consiste à discrétiser l'expression de la dérivée non entière. En effet, pour une fonction  $f(t)$  causale, l'expression (7) est une somme finie qu'il est facile d'implémenter. Par l'intermédiaire des paramètres  $a'_l$  et  $b'_m$ , on formule le calcul en terme de minimisation aux moindres carrés linéaires.

Cela conduit au calcul des paramètres  $a_l$  et  $b_m$  par une formule d'inversion linéaire. On note :

$$a'_l = \frac{\frac{a_l}{h^{n_{a_l}}}}{\sum_{k=0}^L \frac{a_k}{h^{n_{a_k}}}} \quad (9)$$

$$b'_m = \frac{\frac{b_m}{h^{n_{b_m}}}}{\sum_{k=0}^L \frac{a_k}{h^{n_{a_k}}}} \quad (10)$$

#### A.2 Changement de variables sur les paramètres du problème

En réécrivant l'équation à dérivées non entières, on obtient :

$$\sum_{l=0}^L \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}} \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n_{a_l}}{k} y((K-k)h) = \sum_{m=0}^M \frac{b_m}{h^{n_{b_m}}} \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n_{b_m}}{k} u((K-k)h) + e(Kh) \quad (11)$$

On pose :  $a_0 = 1$  et  $\binom{n}{k} = \frac{\Gamma(n+1)}{\Gamma(n-k+1)\Gamma(k+1)}$ . En isolant le terme  $y(Kh)$ , qui correspond à  $k=0$  dans la sommation du premier membre, on obtient :

$$y(Kh) = - \frac{\sum_{l=0}^L \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}} \sum_{k=1}^K (-1)^k \binom{n_{a_l}}{k} y((K-k)h)}{\sum_{l=0}^L \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}}} + \frac{\sum_{m=0}^M \frac{b_m}{h^{n_{b_m}}} \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n_{b_m}}{k} u((K-k)h)}{\sum_{l=0}^L \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}}} + e(Kh) \quad (12)$$

Cela permet de formuler le problème en termes d'erreur de prédiction. Le changement de variables se justifie donc car le calcul de l'erreur n'est pas linéaire dans les paramètres initiaux, mais correspondant à un ARX classique à temps discret si l'on considère les nouveaux paramètres. On peut réécrire cette équation sous la forme réduite :

$$y(Kh) = - \sum_{l=0}^L a'_l Y_l(Kh) + \sum_{m=0}^M b'_m U_m(Kh) + e(Kh) \quad (13)$$

À chaque temps  $Kh$ , on écrit donc la sortie estimée :

$$\hat{y}(Kh) = [-Y_0(Kh) \ \dots \ -Y_L(Kh)] [a'_0 a'_1 \ \dots \ a'_L b'_0 \ \dots \ b'_M]^T \quad (14)$$

en considérant les nouveaux paramètres  $a'_l$  et  $b'_m$  définis par (9) et (10). On remarque que la contrainte suivante doit être respectée :  $\sum_{l=0}^L a'_l = 1$ . Cette contrainte n'étant pas nécessairement validée du fait des erreurs de calcul sur les dérivées, on peut ajouter au système une contrainte comme on le verra plus bas.

Les valeurs à calculer sont donc :

$$Y_l(Kh) = \sum_{k=1}^K (-1)^k \binom{n_{a_l}}{k} y((K-k)h) \quad (15)$$

et

$$U_m(Kh) = \sum_{k=0}^K (-1)^k \binom{n_{b_m}}{k} u((K-k)h) \quad (16)$$

### A.3 Formulation aux moindres carrés linéaires et résolution

Le problème se reformule donc comme un problème aux moindres carrés linéaire sur les nouveaux paramètres  $a'_l$  et  $b'_m$ ,

avec la contrainte  $\sum_{l=0}^L a'_l = 1$ .

On écrit donc le problème sous la forme  $Y = \Phi \hat{\Theta} + E$ , où  $Y = [y(Kh) \dots y((K+N)h)]$  est la sortie mesurée, le jeu de paramètres à identifier  $\hat{\Theta} = [a'_0 a'_1 \dots a'_L b'_0 \dots b'_M]^T$ ,  $\Phi$  est la matrice de régression, avec des valeurs comprises entre  $Kh$  et  $(K+N)h$  et  $E$  l'erreur de prédiction.

La matrice  $\Phi$  s'écrit alors :

$$\Phi = \begin{pmatrix} \Phi_1 & \Phi_2 \end{pmatrix} \quad (17)$$

avec :

$$\Phi_1 = \begin{pmatrix} -Y_0(Kh) & \dots & -Y_L(Kh) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ -Y_0((K+N)h) & \dots & -Y_L((K+N)h) \end{pmatrix} \quad (18)$$

et

$$\Phi_2 = \begin{pmatrix} U_0(Kh) & \dots & U_M(Kh) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ U_0((K+N)h) & \dots & U_M((K+N)h) \end{pmatrix} \quad (19)$$

On peut reformuler le problème en  $\hat{Y} = \Phi \hat{\Theta}$  où  $\hat{Y}$  représente le vecteur de prédiction, donc la valeur de  $y$  estimée aux temps  $Kh$  à  $(K+N)h$ , soit  $\hat{Y} = [\hat{y}(Kh) \dots \hat{y}((K+N)h)]$ . La relation est donc linéaire et peut se formuler comme :

$$\hat{y}(Kh, \Theta) = - \sum_{l=0}^L \hat{a}'_l Y_l(Kh) + \sum_{m=0}^M \hat{b}'_m U_m(Kh).$$

On doit donc trouver un jeu de paramètres  $\hat{\Theta}$  optimal au sens où on doit minimiser l'erreur quadratique :  $\|\Phi \hat{\Theta} - Y\|^2$ . L'ajout de la contrainte sur les coefficients  $a'_l$  change la formulation en :

$$\hat{\Theta} = \arg \min_{\Theta} \left\| \begin{pmatrix} \lambda & \dots & \lambda & 0 & \dots & 0 \end{pmatrix} \Theta - \begin{pmatrix} Y \\ \lambda \end{pmatrix} \right\|^2 \quad (20)$$

On peut noter :

$$\Phi' = \begin{pmatrix} \lambda & \dots & \lambda & 0 & \dots & 0 \end{pmatrix} \quad (21)$$

la nouvelle matrice formée et  $Y' = [Y \lambda]^T$  le nouveau vecteur formé.  $\lambda$  est un paramètre qui tient compte des dimensions des composantes de la matrice de régression pour imposer la contrainte sur les coefficients  $\sum_{l=0}^L a'_l = 1$ . La résolution s'effectue alors en calculant la pseudo-inverse de la matrice  $\Phi'$  constituée, soit  $\hat{\Theta} = (\Phi'^T \Phi')^{-1} \Phi'^T Y'$ . Afin de lever les instabilités numériques, on réalise une étude des valeurs singulières. On tronque les valeurs singulières de valeur trop faible pour les remplacer par 0, et on inverse les valeurs singulières suffisamment élevées. Le seuil est fixé en fonction de la dimension de la matrice, de sa norme, et de la précision de la machine. Si les séquences d'excitation sont suffisamment longues et riches en fréquence, aucune troncature n'est nécessaire.

Le retour aux paramètres  $a_l$  et  $b_m$  s'effectue en inversant le changement de variables réalisé. De  $a'_l = \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}}$ , on déduit

$$\text{la relation : } \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}} = a'_l \sum_{k=0}^L \frac{a_k}{h^{n_{a_k}}}$$

puis :  $a'_l \sum_{k=1}^L \frac{a_k}{h^{n_{a_k}}} - \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}} = -a'_l \frac{a_0}{h^{n_{a_0}}}$ , relation linéaire qui, avec  $a_0 = 1$ , se réécrit sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} (a'_1 - 1)h^{-n_{a_1}} & a'_1 h^{-n_{a_2}} & \dots & a'_1 h^{-n_{a_L}} \\ a'_2 h^{-n_{a_1}} & (a'_2 - 1)h^{-n_{a_2}} & \dots & a'_2 h^{-n_{a_L}} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ a'_L h^{-n_{a_1}} & a'_L h^{-n_{a_2}} & \dots & (a'_L - 1)h^{-n_{a_L}} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a_0 \\ a_1 \\ \dots \\ a_L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -a'_1 h^{-n_{a_0}} \\ -a'_2 h^{-n_{a_0}} \\ \dots \\ -a'_L h^{-n_{a_0}} \end{pmatrix}$$

puis on déduit  $b_m = b'_m \sum_{l=0}^L a_l h^{n_{b_m} - n_{a_l}}$ .

### A.4 Amélioration des algorithmes

Dans [Oustaloup 05], l'amélioration de l'estimation des paramètres est étudiée. Celle-ci est nécessaire quand on utilise des données réelles, donc bruitées, car un biais d'estimation est présent dans ce cas. Une des méthodes simples consiste à appliquer une méthode de variables instrumentales, comme expliqué dans [Ljung 99]. On souhaite modifier les éléments de la matrice de régression  $\Phi$  qui sont corrélés avec les perturbations  $p(t)$  contenues dans le signal de sortie  $y(t)$ .

- On identifie les paramètres du modèle grâce à l'algorithme de moindres carrés.
- On simule la sortie du modèle à partir de l'entrée et des paramètres identifiés.
- On calcule la matrice de régression modifiée  $\bar{\Phi}$  à partir de ces données simulées.
- On modifie le problème en écrivant :  $\hat{\Theta} = (\bar{\Phi}'^T \bar{\Phi}')^{-1} \bar{\Phi}'^T Y$ .
- Afin d'améliorer la stabilité de la reconstruction, les matrices de régression  $\Phi'$  et  $\bar{\Phi}'$  sont tronquées pour en réduire le nombre de lignes, soit le nombre d'échantillons effectivement utilisés pour l'identification de paramètres. On boucle et on réitère le processus jusqu'à convergence. En pratique, la méthode se stabilise au bout de quelques itérations.

## B. Problème inverse

### B.1 Apprentissage

La démarche étudiée ici a été développée par Battaglia et ses collaborateurs dans l'article [Battaglia 00]. On dispose d'un système expérimental comportant une entrée et une sortie, que nous modélisons grâce à un modèle non entier. On stimule le système avec une séquence de type SBPA (séquence binaire pseudo-aléatoire [Landau 01]), qui permet d'identifier les paramètres du modèle.

### B.2 Test

Grâce à un second jeu de données, acquis sur le même système, nous supposons que l'équation différentielle non

entière régissant le système reste inchangée. La sortie est cette fois-ci connue mais l'entrée est supposée inconnue. Comme pour l'identification, nous discrétisons la formule de Grünwald, ce qui implique l'écriture matricielle suivante, avec  $u(0) = 0$  et  $y(0) = 0$  :  $A.Y = B.U$  où  $U$  est le vecteur des entrées  $[u(h)u(2h)\dots u(Nh)]$ , où  $Y$  est le vecteur des sorties  $[y(h)y(2h)\dots y(Nh)]$ , et  $A$  et  $B$  sont les matrices de dépendance des dérivées non entières par rapport au passé, qui sont donc triangulaires inférieures (la dépendance ne se fait que par rapport au passé, par le principe de causalité de la dérivée non entière). La matrice  $A$  a des termes égaux à une des sommes :

$$S_k = \sum_{l=0}^L \frac{a_l}{h^{n_{a_l}}} (-1)^k \binom{n_{a_l}}{k} \quad (22)$$

définie pour  $k$  variant de 0 à  $N - 1$ , puisqu'on considère les données entre  $t = h$  et  $t = Nh$ . Le terme général de la matrice  $A$  s'écrit alors :  $A_{k,m} = S_{k-m}$  pour  $k \geq m$ , 0 sinon. De même pour  $B$  avec les sommes :

$$S'_k = \sum_{m=0}^M \frac{b_l}{h^{n_{b_m}}} (-1)^k \binom{n_{b_m}}{k} \quad (23)$$

Il faut donc calculer  $U = B^{-1}.A.Y$ . Toutefois ce calcul nécessite une régularisation car l'inversion pose des problèmes numériques car le problème est du type "mal posé au sens d'Hadamard".

### B.3 Régularisation du problème

Le problème formulé est mal posé au sens d'Hadamard. Comme il est décrit dans [Idier 01], cela signifie qu'il ne remplit pas une de ces conditions :

1. Existence : pour chaque donnée de sortie  $y$  de la classe  $\mathcal{Y}$ , il existe une entrée solution  $x$  de la classe  $\mathcal{X}$ .
2. Unicité : la solution est unique dans la classe  $\mathcal{X}$ .
3. Continuité : la dépendance de  $x$  par rapport à  $y$  est continue. On a donc une erreur de reconstruction sur  $x$  qui tend vers zéro quand l'erreur de mesure sur  $y$  tend vers zéro.

Du fait du nombre fini de données et du bruit, nous ne pouvons pas reconstruire de manière unique l'entrée appliquée, il faut donc déterminer un critère à minimiser afin de calculer une solution.

### B.4 Réalisation pratique

Afin de régulariser le problème posé, nous pouvons ajouter un élément matriciel correspondant à un ordre de dérivation donné. Une régularisation d'ordre 0 s'obtient avec la matrice-identité pondérée par un facteur d'échelle. Pour l'ordre 1, on utilise le schéma classique aux différences finies  $[-1 \ 1]$  pour régulariser selon la dérivée première.

$$H_0 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 1 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 1 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \quad (24)$$

$$H_1 = \begin{pmatrix} -1 & 1 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & -1 & 1 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & -1 & 1 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \quad (25)$$

De même :

$$H_2 = \begin{pmatrix} 1 & -2 & 1 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 1 & -2 & 1 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 1 & -2 & 1 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & 1 & -2 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \quad (26)$$

On pourrait continuer avec :

$$H_3 = \begin{pmatrix} -1 & 3 & -3 & 1 & 0 & \dots \\ 0 & -1 & 3 & -3 & 1 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \quad (27)$$

Comme tout problème mal posé au sens d'Hadamard, il faut régulariser le problème en ajoutant des contraintes imposant une connaissance *a priori* des solutions, au niveau de leur régularité [Idier 01]. On peut par exemple modifier le calcul matriciel en ajoutant à la fonctionnelle d'erreur un terme de régularisation, qui impose une modification sur le calcul de la pseudo-inverse de la matrice  $X = A^{-1}B$ . Cela se fait grâce à une pondération de plusieurs ordres :

- À l'ordre 0, on minimise la valeur de  $u(t)$ , soit le carré de la somme des valeurs de la fonction.
- À l'ordre 1, on minimise la variation de  $u(t)$  en fonction de  $u$  pris à l'instant précédent  $u(t - h)$ , soit, au final, le carré de la somme des dérivées premières.
- À l'ordre 2, on minimise la variation de  $u(t)$  en fonction de  $u(t - h)$  et  $u(t + h)$ , soit, au final, le carré de la somme des dérivées secondes.

Le facteur de régularisation optimal dépend de l'échantillonnage et des temps caractéristiques du système. L'optimisation des facteurs de régularisation positifs ( $\tau, w_0, w_1, w_2$ ) est obtenue en minimisant la fonctionnelle d'erreur associée, qui s'écrit en termes fonctionnels comme :

$$F_{\tau, w_0, w_1, w_2}(u) = \|e(t)\|^2 + \tau(w_0\|u(t)\|^2 + w_1\|u'(t)\|^2 + w_2\|u''(t)\|^2) \quad (28)$$

où  $e(t)$  est l'erreur de prédiction  $y(t) - \hat{y}(t)$ . Cela se traduit en termes matriciels par la fonctionnelle :

$$F_{\tau, w_0, w_1, w_2}(U) = (Y - XU)^T(Y - XU) + \tau(w_0U^T U + w_1(H_1 U)^T H_1 U + w_2(H_2 U)^T H_2 U) \quad (29)$$

qui est minimisée pour  $\hat{U} = X^\dagger Y$ , où  $X^\dagger$  est la pseudo-inverse régularisée :

$$X^\dagger = (X^T X + \tau(w_0 I + w_1 H_1^T H_1 + w_2 H_2^T H_2))^{-1} X^T \quad (30)$$

L'inversion est possible car une régularisation non nulle augmente les valeurs propres de la matrice  $X^T X$  et donc supprime les éventuelles valeurs singulières. Si l'on considère  $(w_0, w_1, w_2) = (1, 0, 0)$ , alors la nouvelle valeur singulière s'exprime comme  $\sigma'_i = \sqrt{\sigma_i^2 + \tau^2}$  (référence [Björck 96]). L'entrée estimée est donc obtenue par un calcul matriciel inverse, sachant que les coefficients du modèle ARX généralisé ont été identifiés au préalable.

## B.5 Algorithme itératif simplifié

Une étude précise du problème consiste à optimiser de manière systématique les paramètres de régularisation (donc dans un espace de dimension  $n = 4$ ) afin de minimiser l'erreur sur la reconstruction des données, soit :

$$\|\hat{U} - U\| = \|X^\dagger Y - U\| \quad (31)$$

Les données utilisées pour identifier les paramètres de régularisation sont les données expérimentales de la première séquence utilisée pour l'identification des paramètres. On pourrait envisager d'utiliser plusieurs séquences pour réaliser cette identification. Cependant, ces paramètres dépendent vraisemblablement uniquement de l'échantillonnage et du bruit de mesure, ce qui corrobore l'idée de les identifier sur une seule séquence. Pour vérifier l'influence de la séquence sur le calcul des paramètres de régularisation, nous avons réalisé le procédé en inversant le rôle des deux séquences, ce qui a donné des résultats très proches.

Ce calcul d'erreur est relativement long, car il requiert l'inversion d'une matrice de taille  $K \times K$  où  $K$  est le nombre d'échantillons utilisés, d'autant plus que les algorithmes classiques de minimisation exigent le calcul de dérivées premières et secondes et donc un nombre important d'évaluations de la fonction d'erreur. Nous avons donc opté pour une méthode de type Gauss-Seidel [Ciarlet 98], consistant à minimiser l'erreur de reconstruction  $\|\hat{U} - U\|$  en ajoutant un paramètre à chaque fois, puis en minimisant l'erreur en faisant varier uniquement ce paramètre. On fixe d'abord  $w_0 = 1$ , puis on optimise  $\tau$ . On optimise ensuite successivement cette erreur par rapport à  $w_0$ ,  $w_1$  et  $w_2$ , en utilisant une méthode de dichotomie. Cette méthode n'est pas optimale mais est rapide si le minimum est unique pour un paramètre variable, quand les autres demeurent fixés, ce qui était le cas sur les données étudiées.

On réitère ensuite le processus en boucle. D'après nos tests, la méthode est efficace pour trouver de bons paramètres de régularisation.

## B.6 Traitements numériques des données

### – Sous-échantillonnage :

Un sous-échantillonnage des données est réalisé afin de réduire les dimensions du problème. Un filtre passe-bas de type Tchebyshev est appliqué. La fréquence d'échantillonnage originale est 100kHz, et l'on sous-échantillonne le signal à  $f = 200\text{Hz}$ .

### – Suppression de moyennes :

Les séquences d'excitation et de sortie doivent être moyennées afin de simplifier leur traitement par le modèle. On évite ainsi un biais que le modèle ne serait pas capable de traiter automatiquement.

## IV. RÉSULTATS

### A. Identification des paramètres du modèle

#### A.1 Introduction

Nous avons réalisé l'identification comme mentionnée dans III-A. Le choix des ordres de dérivation a été réalisé grâce à des considérations de généralisation du modèle de Randles, puis

nous avons modifié ces paramètres manuellement pour améliorer les résultats. Une étude fréquentielle du système nous a également aidé à ces choix d'ordre de dérivation, en donnant un ordre de grandeur de la phase à basse fréquence, qui indique le rapport entre les deux monômes de plus faibles degré du numérateur et du dénominateur. La valeur est environ  $0.2\pi/2$ , ce qui donne un ordre de dérivation approximatif  $-0.2$  à basse fréquence, soit un ordre 0 au numérateur et un ordre 0.2 au dénominateur.

#### A.2 Résultats et comparaison avec un ARX(3,3)

Sur la figure 1, nous avons comparé les erreurs de modélisation pour un ARX(3,3) et le modèle à dérivée non entière.

- Nous constatons que le modèle à dérivée non entière donne une erreur plus régulière et mieux centrée.
- L'ordre de grandeur de l'erreur est améliorée en écart-type sur les données utilisées :  
 $\sigma = 1.96 \cdot 10^{-2}$  et  $\sigma = 1.21 \cdot 10^{-2}$  respectivement pour l'ARX à temps continu et l'ARX généralisé aux dérivées non entières.

Les modèles utilisés semblent donc au moins aussi bons que les modèles de type classique. Mais nous n'avons toutefois pas suffisamment étudié les modèles et des méthodes plus robustes pour conclure de manière générale sur une possible supériorité des modèles à dérivée non entière. Toutefois, ils semblent appropriés pour le problème inverse étudié.

- Pour le modèle ARX à temps continu de la forme  $A(s)/B(s)$ , on obtient :

$$A(s) = 1.425 + 1.033s^1 - 1.956s^2 \quad (32)$$

et

$$B(s) = 1 - 1.053s^1 - 0.313s^2 + 0.382s^3 \quad (33)$$

- Pour le modèle ARX non entier, on obtient :

$$B(s) = -39.6930s^{0.2} - 19.2775s^1 + 46.7049s^{1.2} \quad (34)$$

et

$$A(s) = -0.2677s^0 - 14.4411s^{0.8} + 5.1074s^1 + s^{1.8} \quad (35)$$

## B. Problème inverse

### B.1 Introduction

Comme il est expliqué dans la section III-B.3, une régularisation du problème est nécessaire. En effet, le problème est mal posé au sens d'Hadamard, car les données expérimentales comportent de nombreuses erreurs qui dégradent les résultats des méthodes numériques. Les échantillons sont numérisés puis sous-échantillonnés, ce qui implique un filtrage passe-bas pour éviter le repliement spectral. De plus, les données comportent du bruit de mesure (phénomènes parasites, précision des instruments de mesure) qui perturbe l'identification des paramètres du modèle. Enfin, le problème inverse à résoudre comporte des instabilités numériques du fait du nombre fini d'échantillons.

Il faut donc régulariser le problème afin de "lisser" les erreurs de reconstruction dues au bruit et d'éviter les oscillations de Gibbs dont nous parlerons plus bas. Il est par contre difficile d'identifier finement la contribution de la régularisation, car elle agit globalement sur la reconstruction mais pas sur les causes d'erreur sous-jacentes.

## B.2 Effets d'une faible régularisation

Comme on peut le voir sur la figure 2 (a), une régularisation trop faible conduit à des oscillations de Gibbs, qui sont le signe que l'algorithme n'a pas suffisamment utilisé les contraintes de régularité de la solution par rapport à l'attache aux données. La raison principale de ces oscillations est l'échantillonnage des données, qui tronquent les hautes fréquences de manière imparfaite (repliement spectral). La figure 2 (b) montre une nette amélioration avec une régularisation adaptée. Sur la figure 2 (c), on voit aussi l'effet d'une régularisation trop forte, où la contribution de l'attache aux données devient faible par rapport aux contraintes de régularité de la fonction reconstruite. La fonction d'entrée étant constante par morceaux, ses discontinuités sont mal tolérées par la régularisation.

## B.3 Comparaison entre données simulées et expérimentales

Afin de comparer les reconstructions effectuées, nous avons étudié le même problème des données simulées et expérimentales (figure 3). Nous utilisons la même séquence d'entrée, et le modèle utilisé pour la simulation est le modèle identifié lors du calcul sur données expérimentales. Cela permet de mesurer la différence de robustesse avec ou sans bruit de mesure. Compte tenu des problèmes d'échantillonnage, les résultats sont plutôt proches en terme d'erreur maximale sur les données. Si l'on regarde l'erreur en terme de qualité de reconstruction par un critère de moindres carrés, le calcul sur données simulées est meilleur dans le sens où l'erreur est concentrée près des points de changement de signe de la SBPA. La régularisation serait donc améliorable en tenant compte de la forme de la fonction d'entrée.

## V. CONCLUSION

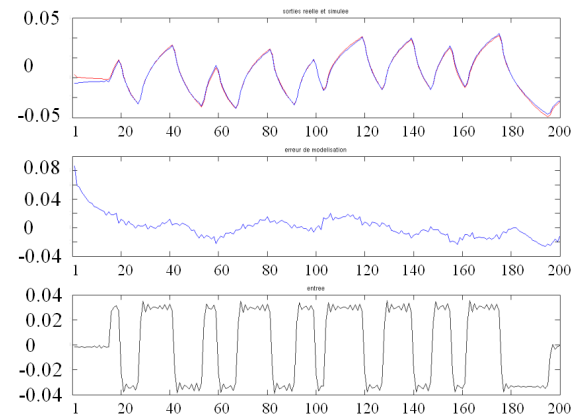
Nous avons utilisé une équation généralisée aux dérivées non entières afin de modéliser un système électrochimique. Les modèles à dérivée non entière fonctionnent bien et permettent de modéliser efficacement les signaux mesurés.

Nous avons ensuite montré que ces modèles permettent de réaliser l'inversion d'un problème électrochimique. Moyennant le réglage de paramètres de régularisation, nous sommes en mesure d'inverser le problème et de reconstruire l'entrée à partir d'une sortie donnée. L'erreur est faible, et la forme autant que la quantification des valeurs d'entrée sont bonnes. Il faut toutefois ne pas oublier que le système a été identifié grâce à une séquence d'entrée d'apprentissage au préalable. Une application industrielle de ce problème d'inversion est étudiée actuellement.

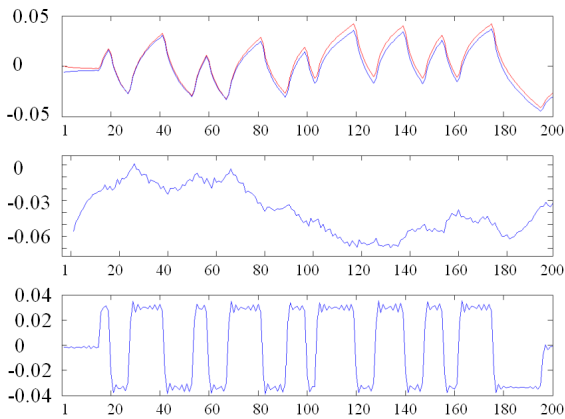
## RÉFÉRENCES

- [Battaglia 00] J.-L. Battaglia, L. Le Lay, J.-C. Batsale, A. Oustaloup & O. Cois. Utilisation de modèles d'identification non entiers pour la résolution de problèmes inverses en conduction. *Int. J. Thermal Sci.* 39, 374-389, 2000.
- [Björck 96] A. Björck. *Numerical methods for least squares problems*. Siam, 1996.
- [Chibane 05] A. Chibane. Rapport de mi-thèse : Approches système pour l'identification de modèles à dérivée non entière et applications aux mesures électrochimiques sur biopuces. Rapport interne CEA, 2005.
- [Ciarlet 98] Philippe G. Ciarlet. *Introduction à l'analyse numérique matricielle et à l'optimisation*. Dunod, Paris, 1998.

- [Idier 01] J. Idier. *Approche bayésienne pour les problèmes inverses*, ouvrage collectif. Hermès Science, 2001.
- [J.-P. Diard 96] C. Montella J.-P. Diard B. Le Gorrec. *Cinétique électrochimique*. Hermann, éditeurs des sciences et des arts, 1996.
- [Kuhn 04] E. Kuhn, C. Forgez & G. Friedrich. *Modelling diffusive phenomena using non integer derivatives*. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 25, 183-190, 2004.
- [Landau 01] Ioan D. Landau & Alina Besançon-Voda. *Identification des systèmes*. Hermès Sciences Europe Ltd, 2001.
- [Ljung 99] Lennart Ljung. *System identification, theory for the user*, 2nd edition. Prentice Hall PTR, 1999.
- [Miomandre 95] Fabien Miomandre. *étude de processus électrochimiques non réversibles par une méthode à base d'opérateurs*, thèse de doctorat. Université J. Fourier, Grenoble, 1995.
- [Oustaloup 95] A. Oustaloup. *La dérivation non entière, théorie, synthèse et applications*. Hermès, 1995.
- [Oustaloup 05] A. Oustaloup, L. Le Lay & O. Cois. *Représentation et identification par modèle non entier*. Hermès Science, 2005.

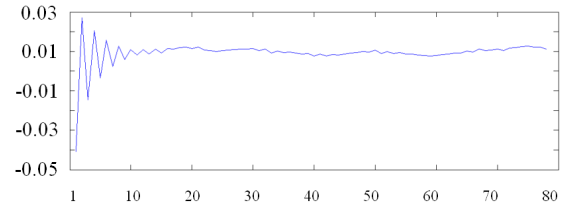
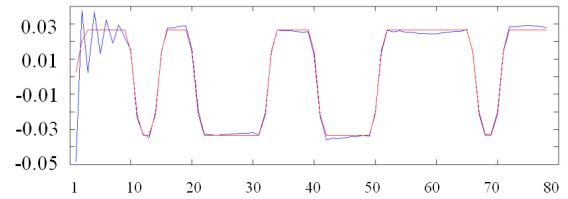


(a) Sur la séquence d'identification avec un modèle d'ordre non entier

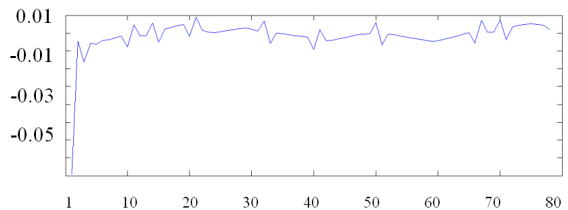
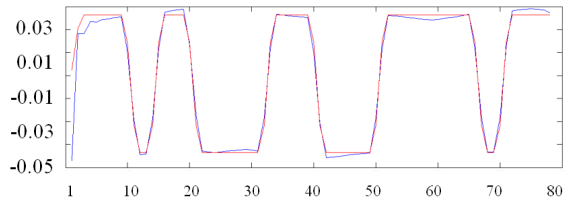


(b) Sur la séquence d'identification avec un ARX(3,3)

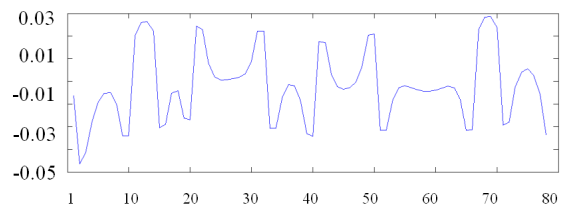
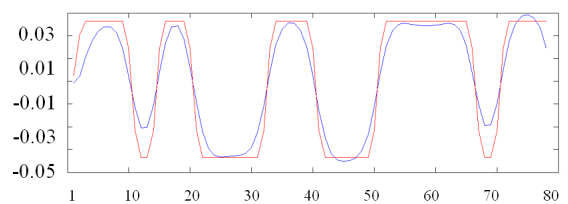
Fig. 1. Erreur de modélisation : Sorties réelle (en bleu) et simulée (en rouge), fonction d'erreur et fonction d'entrée



(a) Avec une régularisation trop faible

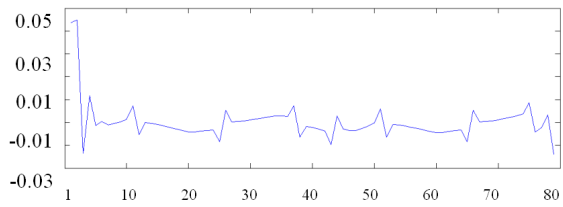
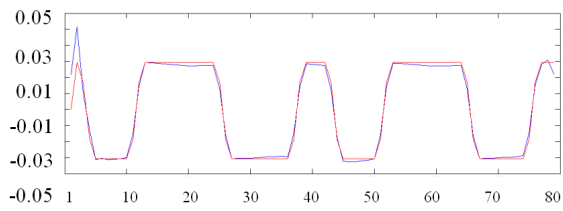


(b) Avec une régularisation adaptée

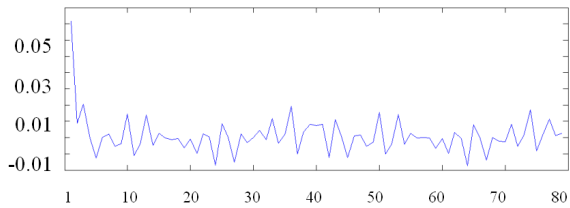
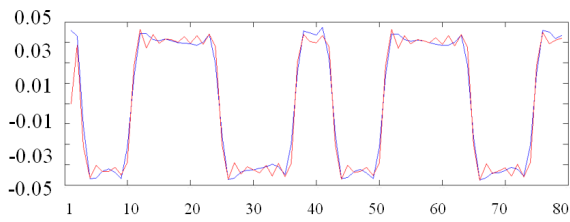


(c) Avec une régularisation trop forte

Fig. 2. Reconstruction sur données simulées : fonctions réelle (en rouge) et reconstruite (en bleu), et fonction d'erreur



(a) Sur données simulées



(b) Sur données expérimentales

Fig. 3. Reconstruction de l'entrée : fonctions réelle (en rouge) et reconstruite (en bleu), et fonction d'erreur