



HAL
open science

Méthodologie d'optimisation dynamique et de commande optimale des réacteurs électrochimiques discontinus

Frantz Fournier

► **To cite this version:**

Frantz Fournier. Méthodologie d'optimisation dynamique et de commande optimale des réacteurs électrochimiques discontinus. Sciences de l'ingénieur [physics]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1998. Français. NNT : 1998INPL008N . tel-01750780

HAL Id: tel-01750780

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750780v1>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

136 00 35 552

98 IN P 008 N

[M] 1988 FOURNIER, F.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Thèse

présentée pour obtenir le titre de

DOCTEUR de L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Option
Génie des Procédés

par

Frantz FOURNIER

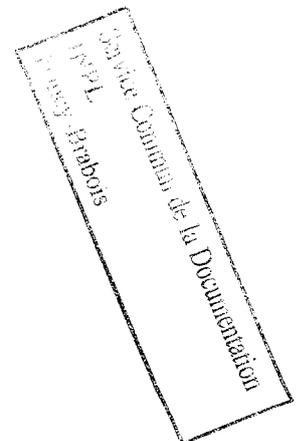
Intitulée

Méthodologie d'optimisation dynamique
et de commande optimale des réacteurs
électrochimiques discontinus.

Soutenue publiquement le 20 Janvier 1998
devant la commission d'examen

Jury

Président	M. A. Storck
Rapporteurs	M. H. Hammouri M. P. Rouchon
Examineurs	M. J.M. Jud M. J.P. Corriou M. M.A. Latifi



à ma petite mère.

Avant-propos

Ce travail a été réalisé au Laboratoire des Sciences du Génie Chimique du CNRS, dans le groupe de recherche "Traitement et Acquisition de l'information, Simulation et Commande des procédés" (TASC), sous la direction de Monsieur M.A. Latifi.

Je tiens avant tout à adresser à Abderrazak Latifi mes sincères remerciements pour l'encadrement de ce travail, autant pour sa disponibilité en toutes circonstances que pour la rigueur dont il sait faire preuve dans chaque discussion. Il a donné un sens à la dénomination formation par la recherche que l'on attribue également à une thèse, en dirigeant scientifiquement cette étude mais aussi en partageant son expérience pour toutes les activités qui constituent un Tout dans une démarche de recherche scientifique.

Je souhaite également remercier Monsieur D. Tondeur, Directeur du LSGC à mon arrivée au laboratoire, et Monsieur H.G. Lintz actuel Directeur du LSGC.

Pour sa position de responsable du groupe TASC, je tiens à remercier le professeur Jean Pierre Corriou de m'avoir accueilli et d'avoir mis à notre disposition tous les moyens nécessaires à un environnement de travail de qualité. Je le remercie également d'avoir accepté de participer à l'évaluation de ces travaux.

Je voudrais remercier le professeur Alain Storck pour avoir accepté de participer au jury de cette thèse mais aussi de le présider. Il est à l'origine des premiers travaux qui ont initié cette étude et j'espère qu'il trouvera dans ces travaux une partie des réponses qu'il pouvait attendre.

Je tiens à remercier les deux rapporteurs de cette thèse Messieurs Rouchon et Hammouri pour participer de la manière la plus active à l'évaluation de cette étude. Je trouve, par la présence de Monsieur Jud dans ce jury de thèse, l'avis averti d'un acteur de l'activité industrielle. Qu'il en soit, par ces quelques mots, remercié.

Je tiens à remercier tous les membres du groupe TASC pour l'ambiance chaleureuse qui existe entre ses membres. Mes pensées vont autant aux anciens, Lucia Pereira et ses contemporains, qu'aux plus jeunes, Mehdi Ben Thabet & Co.

Résumé

Les procédés électrochimiques occupent une part non négligeable dans l'industrie chimique. Des études préliminaires montrent cependant que le mode de fonctionnement traditionnel de ces procédés (à potentiel ou à courant constant) n'est pas toujours le meilleur. Elles encouragent à envisager l'amélioration du fonctionnement des procédés électrochimiques par l'utilisation des méthodes d'optimisation dynamique.

L'étude présentée dans cette thèse propose une méthodologie de l'optimisation dynamique et de la commande optimale dans le cas des procédés électrochimiques discontinus. On cherche ainsi à formuler et résoudre les problèmes d'optimisation du fonctionnement dynamique des réacteurs électrochimiques, à analyser les différentes sensibilités des paramètres du modèle et à appliquer les profils optimaux de commande en boucle fermée dans des conditions expérimentales aussi réalistes que possibles. La méthodologie est appliquée à différents problèmes électrochimiques tels que la minimisation de la consommation d'énergie électrique, la maximisation du rendement, de la sélectivité ou encore la minimisation du temps opératoire.

Toutes les méthodes d'optimisation utilisées sont fondées sur le Principe du Maximum. Un inventaire non exhaustif des techniques de résolution de problèmes d'optimisation dynamique et leurs principales caractéristiques sont ainsi présentés. En intégrant au problème des contraintes physiques, ces méthodes fournissent des conditions optimales de fonctionnement réalistes. Les performances de l'optimisation dynamique sont comparées à celles résultant des meilleures conditions de fonctionnement statiques. Les améliorations entre le mode de fonctionnement optimisé et le meilleur mode usuel peuvent s'élever à plusieurs dizaines de pourcent. Différentes formes de l'analyse de la sensibilité des paramètres du modèle soulignent la validité des résultats optimaux dans des conditions opératoires qui diffèrent de celles idéalement représentées dans le modèle des réacteurs considérés. Pour la mise en oeuvre de la commande optimale, des techniques de reconstruction de l'état et une loi de commande optimale en boucle fermée ont été mises au point.

Abstract

Electrochemical processes are significantly used in chemical industry. Previous studies have however shown that the traditional operating mode, *i.e.* at constant potential or constant current, is not always the best. An interesting method to improve the operating mode of electrochemical processes is to determine the best time-varying control variables by means of dynamic optimisation methods.

In this study, a methodology of dynamic optimisation and optimal control for batch electrochemical processes is presented. The objective is to formulate and solve dynamic optimisation problems of electrochemical reactors, to analyse the sensitivity of the optimisation criteria and control variables to the parameters of the model and to apply the optimal control profiles in the most realistic conditions. To illustrate this methodology, some electrochemical problems such as energy consumption minimisation, yields or selectivity maximisation or time optimal control are presented.

All the methods used are based on the Maximum Principle. A non-exhaustive review of the computational techniques to solve dynamic optimisation problems and their specific features is described. The resulting optimal profiles are realistic since the most important physical constraints are considered. The performances of the optimised operating modes are compared to those of the best static modes. The resulting improvements rise upto several tens of percent. Several kinds of sensitivity analysis point out the validity of the optimal conditions even when operating conditions deviate from their ideal values used in the model. In order to implement the optimal control profiles in a closed-loop control, various state observers and a optimal state feedback law are designed.

Table des matières

Avant-propos	3
Résumé	5
Abstract	7
Liste des figures	11
Liste des tableaux	17
Notations	21
Introduction générale	25
1 Procédés électrochimiques	29
1.1 Introduction	29
1.2 Quelques éléments de Génie Électrochimiques	29
1.2.1 Réacteurs et leur fonctionnement	29
1.2.2 Spécificités des réacteurs électrochimiques	30
1.3 Modèles Électrochimiques	33
1.3.1 Bilans dans les réacteurs électrochimiques	33
1.3.2 Modèle cinétique	34
1.4 Problèmes d'optimisation	45
1.4.1 Simple réaction	45
1.4.2 Série de deux réactions	47
2 Optimisation dynamique	51
2.1 Méthodes d'optimisation dynamique	51
2.1.1 Introduction	51
2.1.2 Optimisation dynamique	53
2.1.3 Développement des conditions d'optimalité	59
2.2 Procédures de résolution	66
2.2.1 Forme Continue-Continue	67
2.2.2 Forme Continue-Paramétrée	76
2.2.3 Forme Paramétrée-Paramétrée	81
2.2.4 Conclusions	88

3	Fonctionnement optimal	89
3.1	Propriétés numériques	89
3.1.1	Itérations sur les conditions limites (BCI)	89
3.1.2	Itérations sur le vecteur de commande (CVI)	100
3.1.3	Paramétrisation du vecteur de commande (CVP)	106
3.1.4	Collocation orthogonale	110
3.1.5	Conclusions	115
3.2	Système AB	116
3.2.1	Conditions optimales de fonctionnement	116
3.2.2	Comparaison des fonctionnements statiques et optimisés	118
3.2.3	Influence des paramètres opératoires	119
3.2.4	Conclusions	125
3.3	Système ABD	126
3.3.1	Maximisation de la concentration de B à taux de conversion de A libre	126
3.3.2	Maximisation de la concentration de B à taux de conversion de A imposé	133
3.3.3	Minimisation du temps opératoire à sélectivité de B imposée	140
3.3.4	Conclusions	142
3.4	Conclusions	143
4	Mise en oeuvre de la commande optimale	145
4.1	Analyse de la sensibilité	145
4.1.1	Introduction	145
4.1.2	Sensibilité du critère optimal	149
4.1.3	Sensibilité des trajectoires	158
4.1.4	Conclusions	162
4.2	Observateur d'État	164
4.2.1	Introduction	164
4.2.2	Observateur de Luenberger	167
4.2.3	Filtre de Kalman	171
4.2.4	Observateur passif	178
4.2.5	Conclusions	181
4.3	Commande optimale	182
4.3.1	Introduction	182
4.3.2	Faisceau de trajectoires	185
4.3.3	Système linéaire à critère quadratique	187
4.3.4	Loi de commande classique	190
4.3.5	Loi de commande optimale	192
4.3.6	Application au réacteur électrochimique	195
4.3.7	Performance de la commande classique	195
4.3.8	Performance de la commande optimale	199
4.3.9	Conclusions	213
5	Conclusions	215
	Bibliographie	218

A	Application du Principe du Maximum	225
A.1	Problème ABD-CB	225
A.2	Problème AB-ENERG sous contrainte terminale	226
A.3	Problème ABD-CB sous contrainte terminale	226
A.4	Problème ABD-CB sous contrainte d'inégalité	227
A.5	Problème ABD-TF	230
A.6	Problème ABD-RDTE	230
B	Programmation quadratique successive (SQP)	233
C	Dérivées du système électrochimique AB	235
C.1	Système <i>AB</i> et ses dérivées	235
D	Dérivées du système électrochimique ABD	237
D.1	Définition du système <i>ABD</i>	237
D.2	Dérivées par rapport à la commande	238
D.2.1	Dérivées premières	238
D.2.2	Dérivées secondes	239
D.3	Dérivées par rapport aux paramètres	240
D.3.1	Calcul des dérivées partielles $\frac{\partial \cdot}{\partial p}$	240
D.3.2	Calcul des dérivées partielles $\frac{\partial^2 \cdot}{\partial p \partial u}$	242

Liste des figures

1.1	Réacteur Piston.	30
1.2	Réacteur batch.	30
1.3	Surtensions entre deux électrodes.	31
1.4	Régimes de fonctionnement.	32
1.5	Courbe Intensité-Potentiel type.	34
1.6	Courbe $I - E$ du dégagement d'oxygène: Modèle de Tafel.	39
1.7	Courbe $I - E$ de la déposition du Cuivre: Modèle de Newman.	40
1.8	Courbe $I - E$ de la déposition du Cuivre: Modèle de Scott.	41
1.9	Courbe $I_1 - E$ de la réduction de l'acide oxalique: Modèle de Scott.	44
1.10	Courbe $I_2 - E$ de la réduction de l'acide glyoxilique: Modèle de Scott.	44
1.11	Courbe $I - E$ de la réduction des acides: Modèle de Scott.	44
2.1	Direction optimale.	74
2.2	Influence de (α, β) sur la position des points de collocation.	84
3.1	Convergence de la méthode du nombre d'or (BCI).	90
3.2	Fonction EBC pour différents λ_0 au voisinage de λ_0^{opt}	91
3.3	H vs u pour $\tau = 0.0, 0.1, 0.2, \dots, 1.0$	93
3.4	H vs u pour $\tau = 0.0, 0.2, 0.4$	93
3.5	H vs u pour $\tau = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$	93
3.6	H vs u pour $\tau = 1.0$	93
3.7	Max $C_B(t_f)$: Convergence de la méthode flexiplex (BCI).	95
3.8	Unicité du minimum de la fonction EBC (BCI).	95
3.9	$H(u)$ pour $\tau = 0.0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ et 1.0	96
3.10	$H(u)$ au voisinage du maximum.	96
3.11	Max $C_B(t_f)$: Condition de Maximalité.	97
3.12	Min t_f : Convergence de la méthode flexiplex (BCI).	98
3.13	Max $C_B(t_f)$: Hamiltonien $H(u)$ en présence de contrainte d'inégalité sur u	99
3.14	Max $C_B(t_f)$: Convergence vers le profil optimal de la procédure CVI.	102
3.15	Fonction de pondération $w(t)$	103
3.16	Commandabilité Q^{-1} vs itérations pour 3 coefficients de transferts k_{dA}	103
3.17	Max $C_B(t_f)$: Influence de ϵ_ϕ sur δJ_0	104
3.18	Max $C_B(t_f)$: Influence de ϵ_ϕ sur $\delta \phi_1$	104
3.19	Max $C_B(t_f)$: Influence de la contrainte $u(t) - u_{min} \geq 0$ sur $u(t)$	104
3.20	CVP: Influence du nombre de plateaux N	107
3.21	Influence de (α, β) sur le profil borné de $u(t)$	112
3.22	Influence de N sur le profil borné de $u(t)$	112
3.23	Disparition des oscillations sur le profil borné de $u(t)$	114
3.24	Exemple de trajectoire optimale du taux de conversion de A	117

3.25	Exemple de profil de commande optimale.	117
3.26	Exemple de trajectoire optimale des surtensions.	117
3.27	Exemple de trajectoire optimale de la tension de cellule.	117
3.28	Comparaison de u constant et du profil de la variable de commande u . . .	118
3.29	Comparaison à u constant, des profils de l'intensité I	118
3.30	Comparaison à $I = cst$, des profils de la variable de commande u	119
3.31	Comparaison de $I = cst$ et du profil de l'intensité I	119
3.32	Comparaison I constant, profil optimal et uniforme/borné de l'intensité I . .	120
3.33	Influence de R_e , profil optimal de l'intensité I	120
3.34	Influence de R_e , amélioration par rapport au fonctionnement à u constante. .	120
3.35	Influence de k_{dA} , profil optimal de l'intensité I	121
3.36	Influence de k_{dA} , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant. .	121
3.37	Influence de k_{dA} , trajectoires optimales de la concentration C_A	122
3.38	Influence de r_k , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant. .	123
3.39	Influence de X_{Af} , profil optimal de la variable de commande u	124
3.40	Influence de X_{Af} , profil optimal de l'intensité I	124
3.41	Influence de X_{Af} , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant. .	125
3.42	Influence de k_{dA} sur le profil optimal de u	127
3.43	Influence de k_{dA} sur le profil optimal de x_A	127
3.44	Influence de k_{dA} sur le profil optimal de x_B	127
3.45	Influence de k_{dA} sur la valeur finale optimale de x_A	128
3.46	Influence de k_{dA} sur la valeur finale optimale de $C_B(t_f)$	128
3.47	Influence de r_k sur le profil optimal de u	129
3.48	Influence de r_k sur le profil optimal de x_A	130
3.49	Influence de r_k sur le profil optimal de x_B	130
3.50	Influence de t_f sur le profil optimal de u	130
3.51	Influence de t_f sur le profil optimal de C_B	131
3.52	Influence de t_f sur la valeur finale optimale de x_A	132
3.53	Influence de t_f sur la valeur finale optimale de $C_B(t_f)$	132
3.54	Profil optimal de commande (potentiel).	133
3.55	Trajectoires optimales des états (titres).	133
3.56	Trajectoire optimale de l'intensité I et répartition.	134
3.57	Vérification des conditions de flux diffusionel.	134
3.58	Influence de k_{dA} sur le profil optimal de commande.	135
3.59	Influence de k_{dA} sur l'optimalité.	135
3.60	Influence de k_{dA} sur la trajectoire optimale de x_A	135
3.61	Influence de k_{dA} sur la trajectoire optimale de x_B	135
3.62	Influence de r_k sur le profil optimal de commande.	136
3.63	Influence de r_k sur l'optimalité.	136
3.64	Influence de X_{Af} sur le profil optimal de commande.	137
3.65	Influence de X_{Af} sur la concentration finale optimale.	138
3.66	Influence de X_{Af} sur l'optimalité.	138
3.67	Influence de t_f sur le profil optimal de commande.	139
3.68	Influence de t_f sur la trajectoire optimale de C_B	139
3.69	Influence de t_f sur la concentration finale optimale.	139
3.70	Influence de t_f sur l'optimalité.	139
3.71	Influence de la sélectivité sur t_f et sur le profil optimal de u	140
3.72	Amélioration relative du temps opératoire t_f	140

3.73	Influence de la sélectivité sur la concentration finale optimale.	141
3.74	Influence de la sélectivité sur l'optimalité des concentrations.	141
3.75	Chemin optimal pour atteindre, en temps minimum, une sélectivité égale à 2.	142
3.76	Trajectoire optimale pour atteindre, en temps minimum, une sélectivité égale à 2.	142
4.1	Sensibilité du critère aux coefficients de transfert de matière.	155
4.2	Sensibilité de la contrainte aux coefficients de transfert de matière.	155
4.3	Sensibilité du critère aux facteurs de fréquence.	155
4.4	Sensibilité de la contrainte aux facteurs de fréquence.	155
4.5	Sensibilité du critère aux coefficients énergétiques.	155
4.6	Sensibilité de la contrainte aux coefficients énergétiques.	155
4.7	Sensibilité de l'amélioration aux coefficients de transfert de matière.	156
4.8	Sensibilité de l'amélioration aux facteurs de fréquence.	156
4.9	Sensibilité de l'amélioration aux coefficients énergétiques.	156
4.10	Sensibilité des états aux coefficients de transfert de matière.	160
4.11	Sensibilité de la commande aux coefficients de transfert de matière.	160
4.12	Sensibilité des états aux facteurs de fréquence.	160
4.13	Sensibilité de la commande aux facteurs de fréquence.	160
4.14	Sensibilité des états aux coefficients énergétiques.	160
4.15	Sensibilité de la commande aux coefficients énergétiques.	160
4.16	Observateur d'état d'un système.	165
4.17	Erreur d'estimation de l'état \mathbf{x}	170
4.18	États estimé et réel.	170
4.19	Erreur de reconstruction de la sortie y	170
4.20	Sorties estimée et réelle.	170
4.21	Influence de K_{l1} sur \hat{x}_1	172
4.22	Influence de K_{l2} sur \hat{x}_1	172
4.23	Influence de K_{l1} sur \hat{x}_2	172
4.24	Influence de K_{l2} sur \hat{x}_2	172
4.25	Influence de K_{l1} sur \hat{y}	172
4.26	Influence de K_{l2} sur \hat{y}	172
4.27	Variance des erreurs d'estimation P_{ii} $i = 1, 2$	175
4.28	Gain du filtre de Kalman K_{fi} $i = 1, 2$	175
4.29	Erreur d'estimation de l'état \mathbf{x}	176
4.30	États estimé et réel.	176
4.31	Erreur de reconstruction de la sortie y	176
4.32	Sorties estimée et réelle.	176
4.33	Erreur d'estimation de l'état \mathbf{x}	177
4.34	États estimé et réel.	177
4.35	Erreur de reconstruction de la sortie y	177
4.36	Sorties estimée et réelle.	177
4.37	Erreur d'estimation de l'état \mathbf{x}	180
4.38	États estimé et réel.	180
4.39	Erreur de reconstruction de la sortie y	180
4.40	Sorties estimée et réelle.	180
4.41	Influence de K_{l2} sur \hat{x}_2	180

4.42	<i>Min</i> énergie: Faisceau de trajectoires minimisantes en conditions rapides de transfert.	185
4.43	<i>Min</i> énergie: Faisceau de trajectoires minimisantes en conditions lentes de transfert.	185
4.44	<i>Mint_f</i> : Faisceau de trajectoires optimales paramétrées.	186
4.45	Trajectoire régulée de l'état x_1	197
4.46	Trajectoire régulée de l'état x_2	197
4.47	Trajectoire régulée de la commande u	197
4.48	Trajectoire régulée de la sortie y	197
4.49	Gain du régulateur.	199
4.50	Déviaton de l'état.	200
4.51	État de référence et état régulé.	200
4.52	Déviaton de la commande.	200
4.53	Commande de référence et commande optimale.	200
4.54	Déviaton de la sortie.	200
4.55	Sortie de référence et sortie optimale.	200
4.56	Gain K_x du régulateur optimal	201
4.57	Écarts des états.	202
4.58	État de référence et état régulé.	202
4.59	Écarts de commande.	202
4.60	Commande de référence et commande optimale.	202
4.61	Écarts de sortie.	202
4.62	Sortie de référence et sortie optimale.	202
4.63	Écarts des états.	204
4.64	État de référence et état régulé.	204
4.65	Écarts de commande.	204
4.66	Commande de référence et commande optimale.	204
4.67	Écarts de sortie.	204
4.68	Sortie de référence et sortie optimale.	204
4.69	Schéma de régulation optimale avec observateur d'état	206
4.70	Observation: Déviaton de l'état x_1	208
4.71	État x_1 optimal, modélisé et reconstruit.	208
4.72	Observation: Déviaton de l'état x_2	208
4.73	État x_2 optimal, modélisé et reconstruit.	208
4.74	Observation: Déviaton de la sortie y	208
4.75	Sortie y optimale, modélisée et reconstruite.	208
4.76	Régulation: Déviaton de l'état x	209
4.77	États x optimaux et régulés.	209
4.78	Régulation: Correction de la commande y	209
4.79	Commande optimale et régulée.	209
4.80	Régulation: Déviaton de la sortie y	209
4.81	Sortie y optimale et régulée.	209
4.82	Observation: Déviaton de l'état x_1	211
4.83	État x_1 optimal, modélisé et reconstruit.	211
4.84	Observation: Déviaton de l'état x_2	211
4.85	État x_2 optimal, modélisé et reconstruit.	211
4.86	Observation: Déviaton de la sortie y	211
4.87	Sortie y optimale, modélisée et reconstruite.	211

4.88	Régulation: Déviation de l'état x .	212
4.89	États x optimaux et régulés.	212
4.90	Régulation: Correction de la commande y .	212
4.91	Commande optimale et régulée.	212
4.92	Régulation: Déviation de la sortie y .	212
4.93	Sortie y optimale et régulée.	212

Liste des tableaux

1.1	Dimensions et conditions opératoires du réacteur AB .	38
1.2	Données cinétiques du modèle de Tafel pour l'électrolyse de l'eau.	39
1.3	Données cinétiques du modèle de Newman pour la déposition du cuivre.	40
1.4	Données cinétiques du modèle de Scott pour la déposition du cuivre.	41
1.5	Dimensions et conditions opératoires du réacteur ABD .	43
1.6	Données cinétiques de l'électroréduction des acides organiques.	43
1.7	Conditions opératoires complémentaires du réacteur AB .	46
2.1	État des points de collocation	87
2.2	Utilisation des fonctions résiduelles	87
3.1	Max $C_B(t_f)$: Initialisation de la procédure BCI.	94
3.2	Min t_f : Initialisation de la procédure BCI.	97
3.3	Conditions adjointes et temps optimaux.	100
3.4	BCI: Temps de calcul CPU.	100
3.5	Max $C_B(t_f)$: Initialisation de la procédure CVI.	101
3.6	CVI: Temps de calcul CPU en fonction de la proportion ϵ_ϕ .	103
3.7	Min t_f : Initialisation de la procédure CVI.	105
3.8	CVI: Temps de calcul CPU.	106
3.9	CVP: Temps de calcul CPU.	108
3.10	Max $C_B(t_f)$, Min t_f : Initialisation de la collocation orthogonale.	111
3.11	Influence de N sur les valeurs optimales du critère et de la contrainte.	113
3.12	Collocation: Temps de calcul CPU (Station HP-UX 9000/712).	114
3.13	Meilleurs potentiels uniformes pour différents temps opératoires.	131
4.1	Conditions de l'analyse de sensibilité.	153
4.2	Contribution de la contrainte aux coefficients de sensibilité globale du critère	157
4.3	Initialisation de l'observateur de Luenberger.	168
4.4	Initialisation de l'observateur de Kalman	174
4.5	Initialisation des bruits blancs gaussien sur le modèle et la sortie.	196
4.6	Conditions opératoires ABD .	196
4.7	Optimalité des trajectoires régulées.	198
4.8	Optimalité des trajectoires régulées.	203
4.9	Paramètres de perturbation de la sortie.	206
4.10	Initialisation de l'observateur.	207

Notations

Notations électrochimiques

A, B, D	: constituants A (réactif), B (produit) et D	
A_e	: aire active de l'électrode	m^2
C	: concentration molaire	$mol.m^{-3}$
E	: potentiel d'électrode	V
F	: constante de Faraday	$96500 C.mol^{-1}$
i	: densité de courant	$A.m^{-2}$
I	: intensité du courant	A
I_L	: courant limite diffusionnel	A
k_d	: coefficient de transfert de matière	$m.s^{-1}$
k_{fi0}, k_{bi0}	: facteurs de fréquence	$m.s^{-1}$
k_{fi}, k_{bi}	: constante de vitesse de réaction	$m.s^{-1}$
K	: gains	S.I
P	: puissance électrique	W
Q	: quantité d'électricité	C
r_k	: rapport de coefficients de transfert	S.I
R	: constante des gaz parfaits	$8.32 J.mol^{-1}.K^{-1}$
T	: température	K
t_f	: temps final	s
U_c	: tension de cellule	V
U_0	: tension réversible	V
V	: volume du réacteur	m^3
X	: taux de conversion	S.I
x	: titre molaire	S.I
Z	: potentiel adimensionnel	S.I

Notations électrochimiques (grecque)

α	: coefficient énergétique (réaction d'oxydation)	
β	: coefficient énergétique (réaction de réduction)	
η	: surtension	V
ν	: nombre d'électrons	
τ	: temps normalisé	

Notations générale

A, B, C, D	: matrices
f	: fonction d'état
F	: terme intégral du critère
g	: contrainte algébrique
G	: terme terminal du critère
h	: fonction de la sortie
H, \mathcal{H}	: Hamiltonien
I	: indice d'optimalité
J	: critère
\bar{J}	: critère augmenté
K	: gains de régulation
K_l	: gains du filtre de Luenberger
K_f	: gains du filtre de Kalman
L	: Lagrangien
m	: dimension de la commande
n	: dimension de l'état
p	: paramètre du modèle
P	: matrice de covariance
q	: nombre de contraintes
Q	: matrice de commandabilité
R	: matrice de Riccati (contrainte)
S	: matrice de Riccati
S	: écart du critère J normalisé
u	: variable de commande
v	: variable uniforme de commande
w	: coefficient de pondération
x	: variable (différentielle) d'état
y	: variable (algébrique) d'état
z	: variable formelle

Notations générale: symboles grecs

α, β	: coefficients de Jacobi
ϵ	: erreur, précision, constante
ζ	: variable
ν	: multiplicateur de Lagrange
σ	: précision de mesure, écart de contrainte normalisée
λ, Λ	: variables adjointes (différentielles)
ϕ, Φ	: contrainte
ψ, Ψ	: variable adjointe (algébrique)
ω	: constante de pondération

Indices

0	: initial
b	: réaction rebours
f	: réaction directe
f	: final
kf	: filtre de Kalman
lbg	: filtre de Luenberger
psf	: observateur passif
n	: nominal
p	: perturbé

Exposant

0	: référence
-	: avant mesure
+	: après mesure
(s)	: au coeur de la solution
(e)	: à la surface de l'électrode
opt	: conditions optimales

Abbréviations

AB	: système électrochimique $A \rightleftharpoons B$
ABD	: système électrochimique $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$
BCI	: Itérations sur les conditions limites <i>Boundary Condition Iterations</i>
CVI	: Itérations sur le vecteur de commande <i>Control Vector Iterations</i>
CVP	: Paramétrisation du vecteur de commande <i>Control Vector Parametrisation</i>
OCP	: Problème de commande optimale <i>Optimal Control Problem</i>
ODE	: Equation aux dérivées ordinaires <i>Ordinary Differential Equation</i>
PDE	: Equation aux dérivées partielles <i>Partial Differential Equation</i>
$TPBVP$: Problème aux conditions limites partagées <i>Two Point Boundary Value Problem</i>

Notation mathématique

x	: variable x
\mathbf{x}	: vecteur x
\bar{x}	: vecteur modifié ou augmenté
\hat{x}	: vecteur estimé
\tilde{x}	: coordonnée colloquée
\dot{x}	: dérivée de x par rapport au temps
$x^{(r)}$: dérivée d'ordre r de x par rapport au temps
x^T	: transposée de x
$diag$: matrice diagonale
$\frac{\partial f}{\partial x}$: dérivée partielle de $f(x)$ par rapport à x

Introduction générale

L'optimisation dynamique et la commande optimale sont des domaines anciens. Leurs applications à des systèmes électrochimiques sont toutefois tout à fait nouvelles et relativement récentes. Les premiers travaux ont été entrepris au sein du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique vers la fin des années quatre-vingt. En effet, dans le courant de l'année 1988, suite au théorème de Tondeur et Kvaalen (1987) sur l'équipartition des flux dans les échangeurs de chaleur et procédés de séparation, Storck (1989) s'était intéressé à l'utilisation de ce théorème pour les procédés électrochimiques, statiques et soumis à une contrainte d'égalité (flux). Latifi et al. (1991) ont ensuite appliqués ce théorème à des procédés fortement non-linéaires et souvent soumis à plusieurs types de contraintes (intensité, flux, temps,...). C'était le début de l'optimisation dynamique des procédés électrochimiques. Deux années plus tard, deux chercheurs américains, Bakshi et Fedkiw (1993) publiaient leur premier article dans le domaine. Depuis, plusieurs travaux de recherches ont été reportés dans la littérature (Latifi et Storck, 1993; Bakshi et Fedkiw, 1994; Fournier et Latifi, 1998a,b) prouvant ainsi que l'optimisation dynamique des systèmes électrochimiques est en plein développement.

Historique

Les procédés électrochimiques sont utilisés industriellement depuis plus d'un siècle. Les premières productions étaient des productions minérales comme la dorure, l'argenture ou encore la production électrolytique d'aluminium. Ces procédés se distinguent des procédés exclusivement chimiques par l'utilisation de l'énergie électrique en complément de l'énergie thermique et mécanique pour activer les phénomènes réactionnels.

Dans les années quarante, le récent développement du Génie chimique introduisait une approche globale des phénomènes mis en jeu dans les installations industrielles. Cette approche classe les phénomènes en opérations unitaires. Les premiers développements du Génie électrochimique sont naturellement apparus quelques années après. La même approche globale des phénomènes a été exploitée et est venue compléter l'approche électrochimique classique qui étudie essentiellement les phénomènes réactionnels locaux à la surface des électrodes. Cette approche globale a conduit à des études mettant ainsi en commun les compétences des différents domaines impliqués plus spécifiquement dans les procédés électrochimiques tels que l'électrochimie, la thermodynamique, la physique. A partir de cette période, le Génie des Procédés électrochimiques a connu un développement tant académique qu'industriel. Ces développements ont montré que l'électrochimie pouvait largement dépasser le cadre des simples méthodes analytiques (polarographie), des schémas réactionnels élémentaires (Kolbe) ou d'alternative à l'oxydation/réduction des groupements fonctionnels. L'électrochimie s'est ainsi largement ouverte à tous les types de productions industrielles, minérales et organiques.

Les crises pétrolières et les exigences strictes de productivité ont ensuite largement contribué à l'essor du Génie des Procédés électrochimiques. Les industriels ont en effet été conduits à ré-examiner toutes les alternatives des procédés répondant à ces nouvelles exigences. Les efforts des précédentes décennies dans cette discipline ont, à ce stade, trouvé leur aboutissement. Les applications du Génie des Procédés électrochimiques se sont ainsi étendues aux électrosynthèses organiques (adiponitrile, anthraquinone ...) de tonnage (Baizer, 1980) concurrençant aujourd'hui les synthèses plus classiques. La contribution des procédés électrochimiques à la production de composés pharmaceutiques ou de composés organiques à haute valeur ajoutée est également un de ses atouts.

Actuellement, la concurrence commerciale et les nouvelles préoccupations en matière de qualité, sécurité et propreté maintiennent la mobilisation des industriels dans la recherche de nouveaux procédés ou de procédés plus performants. Elles doivent permettre d'assurer au Génie des Procédés électrochimiques une position industrielle importante.

Fonctionnement des procédés électrochimiques

Ce contexte historique souligne la nécessité de répondre à temps aux exigences des industriels. Les atouts du Génie des Procédés électrochimiques ne lui procurent pas un avenir prometteur sans un effort perpétuel de modernisation.

À l'heure actuelle, les procédés électrochimiques sont présents dans des modes de fonctionnement *continus* et *discontinus* et opèrent, à l'échelle du laboratoire comme à l'échelle industrielle, à intensité ou à tension constante.

L'amélioration du fonctionnement de ces procédés consiste à étudier l'influence de différents paramètres opératoires (densité de courant, tension, débits, concentrations, ...) sur un critère donné pour en déterminer la *meilleure valeur*. Une étude préliminaire réalisée par Latifi et al. (1991) a cependant montré que ce type de fonctionnement où le profil de la variable de commande (potentiel ou intensité) est uniforme, n'est pas toujours optimal. De plus, l'utilisation de l'énergie électrique pour déclencher les phénomènes réactionnels dans les procédés électrochimiques offre une alternative de plus par rapport aux procédés chimiques. Les grandeurs électriques sont plus faciles à contrôler que les grandeurs thermiques. Cet avantage dynamique n'est cependant pas exploité dans les modes potentiostatiques et galvanostatiques.

Une alternative pour améliorer le fonctionnement des procédés électrochimiques consiste à déterminer le *meilleur profil*, par opposition à la meilleure valeur, du courant ou du potentiel d'électrode qui optimise le critère choisi (consommation énergétique, rendement, sélectivité), sous des contraintes données (taux de conversion, limitations physiques du potentiel ou du courant). Les méthodes qui permettent de déterminer des profils de variable qui optimisent un critère sont appelées méthodes d'optimisation dynamiques. Les deux principales théories connues dans ce domaine sont le *Principe du Maximum* (Pontryagin, 1964) et le *Principe de Bellman* (Bellman, 1957). Proposés il y a plus de quarante ans, ils ont été appliqués pour optimiser le fonctionnement dynamique de nombreux procédés chimiques tels que les réacteurs continus (Lee, 1964), les réacteurs catalytiques à lit fixe (Asrar et Moharir, 1991) mais également à des procédés biochimiques (Lee et Ramirez, 1994) ou encore à des procédés de polymérisation (Tieu et al., 1994). Le récent essor des techniques de calcul a d'ailleurs permis, depuis les années 80, de les appliquer à des systèmes de complexité et d'intérêt industriel croissants. Paradoxalement, ces méthodes n'ont pas ou ont très peu été appliquées à des problèmes mettant en jeu des procédés

électrochimiques. Seules quelques études ont été présentées dans ce domaine (Latifi et al., 1991; Latifi et Storck, 1993; Bakshi et Fedkiw, 1993).

Objectifs

Cette étude vise à étendre ces résultats préliminaires de Latifi et al. (1991), en proposant une méthodologie de l'optimisation dynamique et de la commande optimale dans le cas des procédés électrochimiques discontinus. On cherche ainsi à formuler et résoudre les problèmes d'optimisation du fonctionnement dynamique des réacteurs électrochimiques, à analyser les différentes sensibilités des paramètres du modèle et à appliquer les profils optimaux de commande en boucle fermée dans des conditions expérimentales aussi réalistes que possible.

Ce mémoire s'articule autour de quatre principaux chapitres. Le premier chapitre présente tout d'abord les deux réacteurs électrochimiques considérés et précise les problèmes d'optimisation dynamique étudiés. Il délimite ainsi le cadre de notre étude. Le second chapitre décrit les trois principales méthodes d'optimisation dynamique ainsi que leur origine. Un inventaire détaillé des différentes techniques qui permettent de résoudre ce type de problème est présenté dans la deuxième partie de ce même chapitre. Les principales caractéristiques des méthodes employées, les conditions optimales de fonctionnement des réacteurs électrochimiques et l'influence des paramètres opératoires du système sont ensuite décrites et discutées dans le troisième chapitre. Pour prendre en compte l'imperfection de la modélisation, le quatrième chapitre présente l'analyse de la sensibilité des résultats optimaux. Dans ce même chapitre, des techniques de reconstruction de l'état et la construction d'une loi de commande optimale en boucle fermée sont ensuite présentées, en vue d'une validation expérimentale.

Chapitre 1

Procédés électrochimiques

1.1 Introduction

Ce chapitre présente les problèmes d'optimisation dynamique étudiés. Après une brève présentation de quelques éléments de Génie Électrochimique, les bilans de matière dans les réacteurs discontinus ainsi que les cinétiques électrochimiques des réactions étudiées sont abordés. Les critères d'optimisation, les variables d'action (variable de commande) et les contraintes spécifiques à chacun des problèmes sont ensuite détaillés.

1.2 Quelques éléments de Génie Électrochimiques

1.2.1 Réacteurs et leur fonctionnement

Une des caractéristiques communes du Génie Électrochimique avec le Génie de la réaction est la classification des réacteurs en fonction de leurs modes de fonctionnement. Les classes les plus fréquemment utilisées sont les suivantes :

- type de fonctionnement de l'alimentation-soutirage : continu - discontinu (*batch*)
En mode discontinu, les réactifs sont introduits en début d'opération et le système n'échange ensuite plus de matière avec l'extérieur jusqu'à la fin de l'opération où le mélange est ensuite traité.
En mode continu, le système est alimenté en permanence en réactifs et les produits sont également soutirés au cours de l'opération.
Cette distinction possède un mode intermédiaire, mode semi-continu (*fedbatch*), où les réactifs sont ajoutés ou les produits soutirés en cours d'opération. Ce mode de fonctionnement est souvent considéré comme une variante du mode discontinu.
- mode de mélangeage : réacteur parfaitement agité - réacteur à écoulement piston
Ces deux écoulements idéaux servent de référence dans l'analyse des procédés, même complexes.
Le réacteur parfaitement agité est caractérisé par le fait que les conditions à l'entrée du réacteur s'homogénéisent instantanément avec celles au coeur du réacteur ; celles en sortie du système étant identiques à celles au coeur du réacteur.

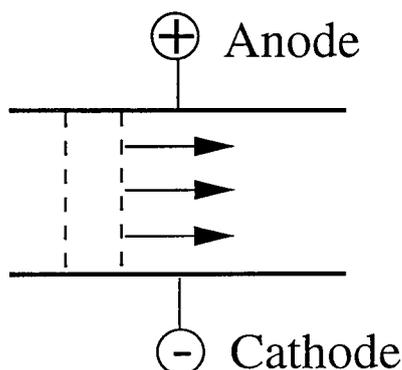


Figure 1.1: Réacteur Piston.

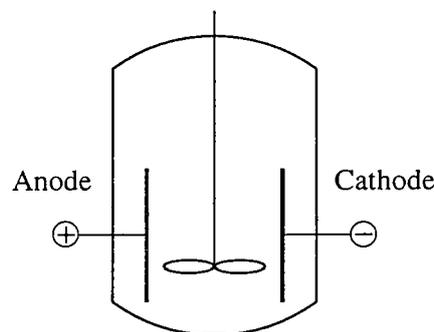


Figure 1.2: Réacteur batch.

Le réacteur à écoulement piston correspond à un système, souvent cylindrique, où les composants évoluent dans le réacteur en couches parallèles sans échange entre elles, à la manière d'un piston.

Ces deux types d'écoulement sont deux extrêmes dans une échelle des représentations des écoulements. L'utilisation d'une cascade de réacteurs parfaitement agités, en série ou en parallèle, avec ou sans recirculation, permet de représenter de nombreux systèmes complexes, éloignés de l'idéalité de ces deux réacteurs de référence.

- mode de fonctionnement temporel : régime stationnaire - régime transitoire

Cette distinction fait intervenir la caractéristique temporelle du système considéré. Le régime stationnaire correspond à un mode de fonctionnement du système où toutes les variations par rapport au temps sont nulles. À l'opposé, le régime transitoire correspond à un mode de fonctionnement où tous les phénomènes peuvent dépendre du temps. Le cas du réacteur discontinu est l'exemple type du fonctionnement en régime transitoire. Le démarrage d'un procédé devant fonctionner en régime stationnaire, correspond également à un cas de régime transitoire fréquent.

- mode de fonctionnement électrique de la cellule : potentiostatique - galvanostatique

Cette distinction est spécifique aux systèmes électrochimiques mais peut être rapprochée de la distinction pour les procédés chimiques entre le fonctionnement isotherme et non-isotherme. Actuellement, les procédés électrochimiques fonctionnent soit à potentiel constant (potentiostatique), soit à intensité constante (galvanostatique). Le mode potentiostatique est facile à mettre en oeuvre à l'échelle du laboratoire mais plus délicat à l'échelle industrielle en raison du coût et du manque de fiabilité des potentiostats de forte puissance.

Dans cette étude, nous n'utiliserons que la distinction entre les systèmes commandés par action sur le potentiel ou par action sur le courant, sans que celui-ci soit forcément constant.

1.2.2 Spécificités des réacteurs électrochimiques

Les procédés électrochimiques diffèrent quelque peu des procédés chimiques. Il est donc important de préciser les notions spécifiques au Génie des Procédés.

La principale différence qui existe entre les procédés chimiques et électrochimiques provient du fait que les phénomènes qui engendrent les réactions ne sont plus seulement

d'origine thermique mais également d'origine électrique. Cette différence apparaît dès la formulation du premier et du deuxième principe de la thermodynamique.

Les développements de ces principes ne sont pas nécessaires à la compréhension des phénomènes mais une brève description des principales notions électrochimiques n'est pas inutile. À titre d'exemple, la figure 1.3 illustre schématiquement, l'évolution du potentiel électrique entre deux électrodes.

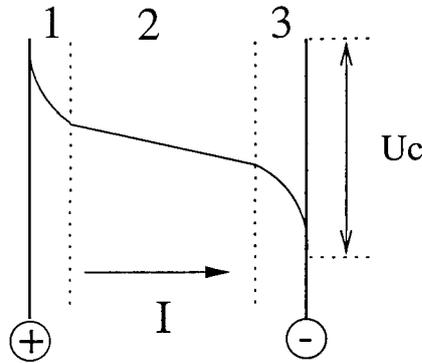


Figure 1.3: Surtensions entre deux électrodes.

À l'équilibre, les courants qui circulent entre les deux électrodes annulent leurs effets et le système est caractérisé par une différence de potentiel, appelée tension réversible U_0 .

La présence des phénomènes réactionnels électrochimiques à l'électrode se traduit par des gradients de potentiels et de concentrations couplés. La complexité des phénomènes provient notamment de leur superposition. On distingue généralement plusieurs zones entre les deux électrodes à travers lesquelles circule le courant.

1. couche limite anodique.
2. zone de chute ohmique.
3. couche limite cathodique.

Les surtensions dans les couches limites correspondent à la superposition des tensions réversibles et surtensions irréversibles.

La tension de cellule U_c , différence de potentiel $E_c - E_a$ entre les deux électrodes, est ainsi composée de quatre contributions.

$$U_c = E_c - E_a = U_0 + \eta_a + |\eta_c| + R_e I \quad (1.1)$$

avec η les surtensions globales aux électrodes et R_e la résistance de la solution électrolytique.

Remarque: *Dans la pratique, la mesure d'un potentiel n'est possible que par rapport à une électrode de référence. Dans notre étude, lorsqu'il est fait mention de potentiels ou de surtensions, il est évident que ces grandeurs sont rapportées à une électrode de référence; cette précision est cependant volontairement omise.*

En plus de ces phénomènes d'origine électrique, les phénomènes classiques de diffusion interviennent. La figure 1.4 schématise les trois régimes diffusionnels considérés dans notre étude. Elle présente l'allure du profil de concentration entre la surface de l'électrode et le cœur de la solution électrolytique. On distingue ainsi :

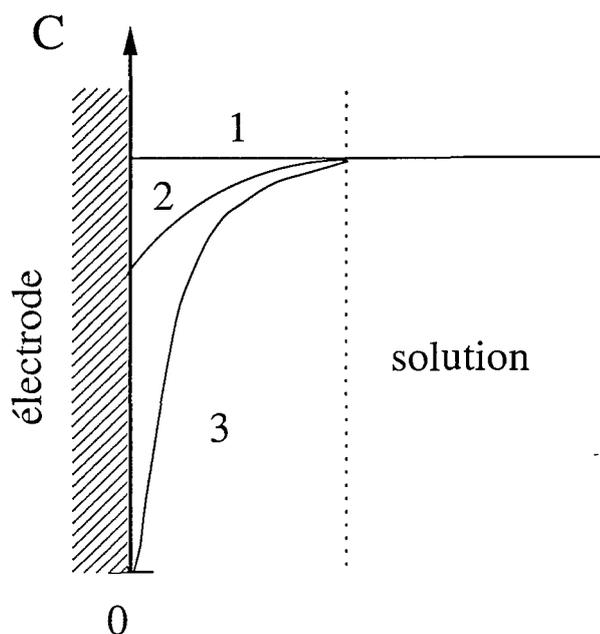


Figure 1.4: Régimes de fonctionnement.

1. le régime cinétique pur qui correspond à l'absence de limitation par le transfert de matière à l'interface. La concentration est alors homogène.
2. le régime cinétique général où le contrôle de la réaction est réalisé au moyen du potentiel ou du courant.
3. le régime diffusionnel où les flux de production ou de consommation sont limités par les flux de diffusion des réactifs du coeur de la solution vers la surface de l'électrode (concentrations nulles à la surface de l'électrode).

La particularité de la modélisation en électrochimie consiste donc à relier l'évolution des conditions électriques (intensités, tensions et surtensions) aux phénomènes réactionnels, diffusionnels, convectifs, ...

La combinaison des connaissances des spécialistes d'électrochimie et de Génie des Procédés a permis d'établir de nombreux modèles cinétiques qui permettent de caractériser les phénomènes réactionnels électrochimiques aux interfaces électrode-électrolyte, dans leur multitude et leur complexité.

Les études conduisent ainsi à des modèles adaptés aux différents systèmes réactionnels, aux différents types de réacteurs et aux différents modes de fonctionnement. Ces modèles peuvent être utilisés pour étudier et améliorer les performances des installations industrielles, mêmes complexes.

Dans l'étude qui est présentée dans ce document, le but n'est pas d'établir un nouveau modèle cinétique des systèmes électrochimiques considérés mais d'utiliser des modèles existants sur la base de considérations très diverses. D'une part, le modèle utilisé, doit représenter une grande gamme de systèmes électrochimiques. D'autre part, il doit prendre en compte les paramètres du système importants dans la mise en oeuvre industrielle. Enfin, il doit permettre la résolution des problèmes numériques envisagés.

Notre étude porte plus spécifiquement sur deux systèmes réactionnels. Le premier de ces systèmes est le schéma d'électrodéposition du cuivre et correspond au schéma *AB*.

Le second schéma étudié est la production sélective d'acide glyoxilique par réduction de l'acide oxalique et correspond au schéma *ABD*. Les modèles de ces deux systèmes réactionnels sont donnés dans les sections suivantes.

1.3 Modèles Electrochimiques

1.3.1 Bilans dans les réacteurs électrochimiques

Les réacteurs électrochimiques qui seront considérés dans cette étude sont des réacteurs discontinus parfaitement agités de volume V .

Les réacteurs discontinus sont en effet très répandus dans l'industrie, et notamment dans l'industrie électrochimique. C'est plus particulièrement le cas, dans les productions en faibles quantités de produits à haute valeur ajoutée comme les produits organiques (pharmaceutiques, molécules complexes, ...). Une analyse exhaustive de l'importance des réacteurs discontinus est présentée par Rippin (1983)

Les problèmes considérés sont posés dans une perspective industrielle très précise. Dans un souci de généralisation des résultats, les composants sont notés d'une manière formelle A , B et D .

Deux schémas réactionnels sont principalement considérés dans cette étude. Le premier correspond à une simple réaction réversible et le second, à deux réactions réversibles en série.

La simplicité de ces systèmes réactionnels ne nuit pas à la généralité de notre étude puisque dans la pratique, ce type de schéma est rencontré dans un grand nombre de procédés industriels.

Les vitesses de production et de consommation des espèces sont directement reliées aux flux d'électrons de chacune des réactions. Le bilan de matière des espèces en solution conduit à décrire l'évolution des concentrations de ces espèces en fonction des courants électriques engendrés par ces transferts d'électrons par une relation de la forme :

$$\text{débit de production} = \frac{\text{courant } (C.s^{-1})}{[\text{nombre d}'e^-] \cdot [\text{quantité d'électricité } (C.mol^{-1})]} \quad (1.2)$$

où le courant correspond à un flux de quantité d'électricité ($[I] = [A] = [C.s^{-1}]$).

- **Simple réaction réversible**



Dans le cas d'une seule réaction réversible, le bilan matière du constituant A s'écrit ainsi :

$$V \frac{dC_A^{(s)}}{dt} = -\frac{I}{\nu F} \quad (1.4)$$

où l'exposant (s) exprime une concentration au coeur de la solution électrolytique.

Un bilan global dans ce réacteur fermé permet par ailleurs de déduire immédiatement la concentration de B à partir de celle de A :

$$C_A^{(s)} + C_B^{(s)} = C_T^0 \quad (1.5)$$

où C_T^0 est la concentration totale initiale.

• Série de deux réactions réversibles



Pour ce système réactionnel ABD , le bilan de matière instantané, exprimé pour chaque constituant, est donné par :

$$V \frac{dC_A^{(s)}}{dt} = -\frac{I_1}{\nu_1 F} \quad (1.7)$$

$$V \frac{dC_B^{(s)}}{dt} = \frac{I_1}{\nu_1 F} - \frac{I_2}{\nu_2 F} \quad (1.8)$$

$$C_T^0 = C_A^{(s)} + C_B^{(s)} + C_D^{(s)} \quad (1.9)$$

La transposition du réacteur parfaitement agité discontinu au réacteur tubulaire à écoulement piston en fonctionnement continu et permanent est immédiate en remplaçant la variable indépendante temporelle t par la variable indépendante spatiale z .

1.3.2 Modèle cinétique

Les phénomènes de transfert d'électrons sont associés à des différences de potentiels (sur-tensions) entre les électrodes où se produisent les réactions. Les potentiels d'électrode correspondants sont soit à l'origine, soit la conséquence de ces courants en fonction du mode de fonctionnement du procédé (courant ou potentiel imposé). La cinétique d'une réaction est ainsi caractérisée par une courbe intensité-potentiel spécifique à chaque couple réactif-produit. Chaque courbe est de plus fonction du matériau d'électrode utilisé qui précise le potentiel de référence considéré. On distingue alors les valeurs des potentiels en précisant dans l'unité (V), le type d'électrode: l'Électrode Normale à Hydrogène (H_2/H^+), l'Électrode au Calomel Saturé ($Hg/Hg_2Cl_2/KCl$), l'Électrode de mercure Hg ($Hg/Hg_2SO_4/K_2SO_4$) ...

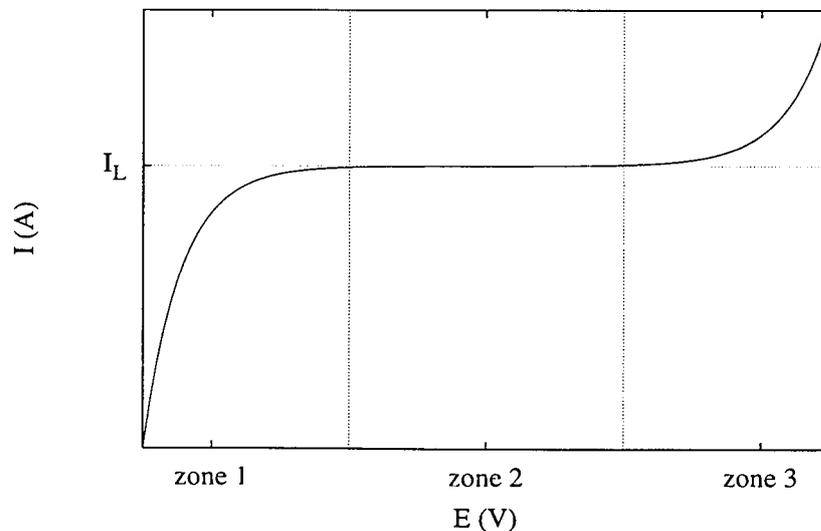


Figure 1.5: Courbe Intensité-Potentiel type.

La forme type d'une courbe intensité-potentiel est généralement composée de trois zones distinctes comme le montre la figure 1.5.

- la première zone correspond à une évolution exponentielle du potentiel en fonction du courant. Cette zone traduit le contrôle cinétique des phénomènes réactionnels.
- la seconde zone correspond à un plateau qui s'explique par la limitation diffusionnelle de la réaction. La cinétique est alors contrôlée par l'apport diffusionnel de réactif à la surface de l'électrode. Ce plateau est souvent utilisé en électrochimie analytique pour déterminer soit la concentration d'un composant, soit le coefficient de transfert de matière par mesure du courant limite de diffusion ($I_L \propto k_{dA} C_A$)
- La troisième zone caractérise le démarrage d'une seconde réaction. En effet, dans le cas de schémas de réactions plus complexes, les phénomènes réactionnels se traduisent au niveau de cette courbe $I-E$ par une superposition (plus ou moins apparente) des profils spécifiques à chaque réaction.

Dans la pratique, lorsque le potentiel est utilisé pour contrôler les réactions, le domaine d'étude est souvent limité à un intervalle réduit $[E_{min}, E_{max}]$. Cette limitation permet ainsi de négliger l'influence des réactions qui ne présentent pas d'intérêt dans la production considérée (réactions *parasites*). Inversement, lorsque le courant est utilisé pour contrôler une réaction, il est usuel d'imposer la valeur limite supérieure à la valeur du courant limite de diffusion I_L . Dans le cas d'une réaction $A \rightleftharpoons B$, cette limite revient à imposer un rendement électrique de 100% (i.e. le courant électrique sert uniquement à la réaction concernée). Dans le cas de plusieurs réactions, l'une des réactions peut être limitée par la vitesse de transfert d'une espèce vers/depuis la surface de l'électrode. Il convient donc de vérifier, pour chaque réaction, si ces conditions sont rencontrées afin de déterminer la nature du régime réactionnel.

D'un point de vue modélisation, il existe de multiples manières d'exprimer les relations qui relient les courants au potentiel d'électrode.

Pour une réaction $A \rightleftharpoons B$, les considérations thermodynamiques des phénomènes électrochimiques qui se produisent dans une cellule conduisent à une des relations les plus courantes en électrochimie, l'équation de *Butler-Volmer*.

$$I = I_0 \left[\exp \left(\alpha \frac{\nu_e F}{RT} \eta \right) - \exp \left(-(1 - \alpha) \frac{\nu_e F}{RT} \eta \right) \right] \quad (1.10)$$

I_0 est le courant d'échange, α , le coefficient de transfert de charge et η la surtension électrochimique.

Cette relation est établie en absence de limitation par le transfert de matière. Le couplage entre la cinétique électrochimique et la cinétique physique conduit à une expression plus générale qui prend en compte ces phénomènes (1.11).

$$I = I_0 \left[\frac{C_B^{(e)}}{C_B^{(s)}} \exp \left(\alpha \frac{\nu_e F}{RT} \eta \right) - \frac{C_A^{(e)}}{C_A^{(s)}} \exp \left(-(1 - \alpha) \frac{\nu_e F}{RT} \eta \right) \right] \quad (1.11)$$

Un cas limite de la relation (1.11) est obtenu en considérant un système électrochimique en absence de limitation diffusionnelle et soumis à une surtension élevée (positive ou négative). L'évolution du potentiel est alors donnée en fonction du courant par une relation logarithmique, par exemple pour une réaction anodique :

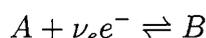
$$I = I_0 \exp \left(\alpha \frac{\nu F}{RT} \eta \right) \quad (1.12)$$

Cette relation est plus connue sous le nom de *loi de Tafel*. Cette loi est une relation très simple qui permet dans de nombreux cas d'approximer la relation intensité-potentiel dans une gamme réduite, mais essentielle, de fonctionnement. Dans notre étude, ce type de modèle n'est pas utilisé pour représenter les principaux phénomènes réactionnels. Il est cependant utilisé pour caractériser les phénomènes réactionnels de contre-réaction lorsque cela est nécessaire.

Dans notre étude, trois variantes du modèle électrochimique sont utilisées. La première correspond à la loi de Tafel, la seconde est proposée par Newman (1973) et la troisième par Scott (1985).

Simple Réaction

On considère un schéma réactionnel simple constitué d'une seule réaction réversible.



Modèle cinétique de Newman La loi cinétique proposée par Newman (1973) est basée sur l'expression :

$$I = A_e i_0^0 C_A^{(e)\beta} \left[\exp\left(\alpha_1 \frac{\nu F}{RT} E^{(s)}\right) - \exp\left(-\alpha_2 \frac{\nu F}{RT} E^{(s)}\right) \right] \quad (1.13)$$

Afin de prendre en compte les limitations dues aux phénomènes diffusionnels à l'interface liquide/solide, le courant peut être exprimé en fonction du gradient de concentration entre la surface de l'électrode et le coeur de la solution :

$$I = \nu F k_{dA} A_e \left(C_A^{(s)} - C_A^{(e)} \right) \quad (1.14)$$

La surtension à la surface de l'électrode $E^{(s)}$ est reliée à la surtension globale de cette même électrode par :

$$E = E^{(s)} - \log\left(1 - \frac{I}{I_L}\right) \quad (1.15)$$

où I_L est le courant limite de diffusion. Ce courant correspond au cas où les phénomènes sont limités par la vitesse de transfert des espèces à la surface de l'électrode ($C_A^{(e)} = 0$).

Modèle cinétique de Scott Le modèle électrochimique proposé par Scott (1985) est utilisé dans la majeure partie des études réalisées sur l'optimisation dynamique des procédés électrochimiques.

Dans le cas d'une seule réaction réversible $A \rightleftharpoons B$, la relation intensité-potentiel proposée par Scott est basée sur des coefficients cinétiques utilisant une loi du type *Arrhenius*. La nature électrochimique des phénomènes conduit cependant à faire intervenir en plus de la température, le potentiel d'électrode. Le courant (débit de production) est alors donné par une forme classique :

$$\frac{I_1}{\nu_1 F} = A_e \left[k_{f1} C_A^{(e)} - k_{b1} C_B^{(e)} \right] \quad (1.16)$$

où les coefficients cinétiques sont sous la forme :

$$k_{f1} = k_{f1}^0 \exp\left(-\beta \frac{\nu_1 F}{RT} E\right) \quad (1.17)$$

$$k_{b1} = k_{b1}^0 \exp\left(\alpha \frac{\nu_1 F}{RT} E\right) \quad (1.18)$$

Comme dans le modèle de Newman, la limitation diffusionnelle est prise en compte en exprimant les courants en fonction des conditions de transfert de matière à l'interface de l'électrode :

$$I_1 = \nu F k_{dA} A_e [C_A^{(s)} - C_A^{(e)}] \quad (1.19)$$

Le courant est alors donné par une expression générale de la forme :

$$I_1 = \frac{\nu_1 F A_e [k_{f1} C_A^{(s)} - k_{b1} C_B^{(s)}]}{\left[1 + \frac{k_{f1}}{k_{dA}} + \frac{k_{b1}}{k_{dB}} \right]} \quad (1.20)$$

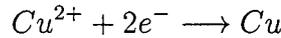
On constate que pour des valeurs importantes du potentiel ($E \rightarrow -\infty$) et en absence de limitation diffusionnelle ($k_d \rightarrow \infty$) cette forme est équivalente au modèle de Tafel :

$$I_1 = \nu_1 F A_e [k_{f1} C_A^{(s)}] \quad (1.21)$$

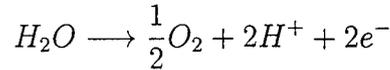
Application à l'électrodéposition du cuivre

Description Pour illustrer le schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B$, on considère le cas de l'électrodéposition du cuivre sur une électrode de cuivre en milieu aqueux acide (Storck et Coeuret, 1984; Latifi et al., 1991). Les réactions impliquées dans cette électrodéposition sont :

- à la cathode



- à l'anode



Le dégagement d'oxygène gazeux est souvent utilisé comme contre-réaction anodique. L'utilisation du solvant est en effet très pratique notamment lorsqu'il s'agit de l'eau.

L'objectif est de faire passer la concentration en A d'une concentration initiale C_{A0} à une concentration finale C_{Af} en un temps fixé t_f en minimisant un critère énergétique J donné (Latifi et al., 1991).

On se place dans le cas d'un fonctionnement où le taux de conversion du réactif A est imposé et où le procédé est contrôlé au moyen de l'intensité du courant I qui circule dans la cellule électrolytique.

Les dimensions et les conditions opératoires du réacteur (Latifi et al., 1991) sont présentées dans le tableau 1.1.

Bilan Les modèles électrochimiques présentés dans la section précédente sont exploités de manière à utiliser, si possible, des grandeurs adimensionnelles ou au moins, des grandeurs normalisées.

Le bilan matière est ainsi réécrit sous la forme :

$$\dot{x} = \frac{dx}{d\tau} = \frac{t_f}{t_c} u (1 - x) \quad (1.22)$$

paramètre	valeur	unité
V	10^{-3}	(m^3)
A_e	$8.0 \cdot 10^{-4}$	(m^2)
T	293.15	(K)
t_f	$2475.28 \cdot 10^3$	(s)
k_{dA}	$5.0 \cdot 10^{-5}$	$(m \cdot s^{-1})$
$r_k = k_{dB}/k_{dA}$	1.0	$(S.I)$
C_{A0}	100.0	$(mol \cdot m^{-3})$
C_{Af}	1.0	$(mol \cdot m^{-3})$

Tableau 1.1: Dimensions et conditions opératoires du réacteur AB .

avec $x = 1 - C_A/C_{A0}$, le taux de conversion de A , $\tau = t/t_f$ le temps normalisé variant de 0 à 1, $u = I/I_L$, l'intensité du courant normalisée et $t_c = V/(k_d A)$ une constante de temps.

Il existe un temps minimal pour faire passer la concentration en A de C_{A0} (resp. x_0) à C_{Af} (resp. x_f). Ce temps minimal est obtenu en opérant au courant limite de diffusion I_L (resp. $u = 1$). En intégrant l'équation d'état dans ces conditions, on obtient le temps limite t_L :

$$t_L = -t_c \ln(1 - x_f) \quad (1.23)$$

Pour vérifier la contrainte $I < I_L$ ($u < 1$), le temps opératoire doit donc être supérieur à t_L . On introduit alors la constante $k^* = -\ln(1 - x_f)$ et $t^* = t_f/t_L$. L'équation d'état s'écrit alors:

$$\dot{x} = k^* t^* u (1 - x) \quad (1.24)$$

avec la contrainte $t^* > 1$

Modèle cinétique Les modèles électrochimiques (1.12), (1.13), (1.20) sont normalisés en introduisant les variables:

$$\begin{aligned} Z_c &= -\frac{\nu F}{RT} E_c \\ Z_a &= \frac{\nu F}{RT} E_a \end{aligned} \quad (1.25)$$

• *Modèle pour l'électrolyse du solvant*

Le modèle (1.12) qui est utilisé pour représenter la contre-réaction anodique, s'écrit alors:

$$g_a(Z_a, x, u) = Z_a - a - b \ln[u(1 - x)] = 0 \quad (1.26)$$

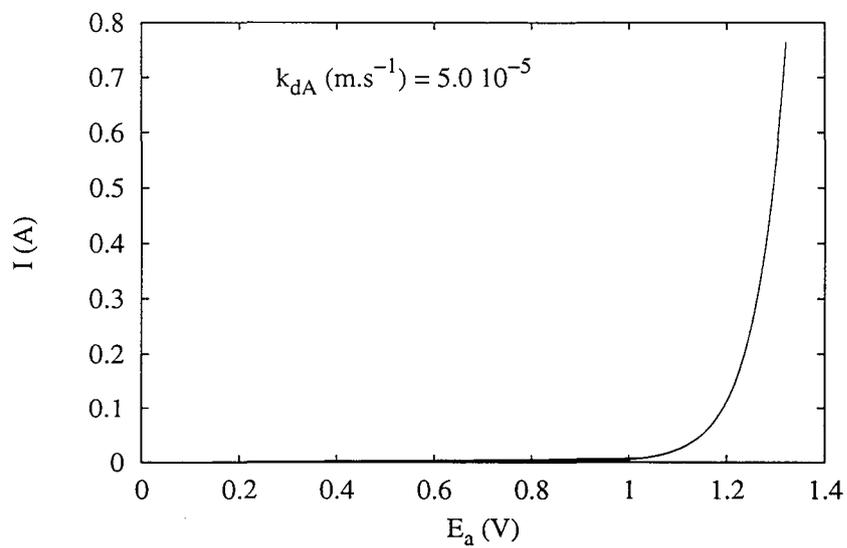
avec $a = b \ln(I_{L0}/I_0)$ et $b = 1/\alpha$.

Les données numériques utilisées pour caractériser la cinétique du dégagement d'oxygène sont données dans le tableau 1.2 (Latifi et al., 1991).

La figure 1.6 illustre le profil de la courbe intensité-potential correspondant aux données numériques du tableau 1.2.

paramètre	valeur	unité
α	0.2	(S.I)
I_0	$-8.0 \cdot 10^{-7}$	(A)

Tableau 1.2: Données cinétiques du modèle de Tafel pour l'électrolyse de l'eau.

Figure 1.6: Courbe $I - E$ du dégagement d'oxygène: Modèle de Tafel.

En ce qui concerne la réaction principale d'électrodéposition du cuivre, les formulations de Newman et de Scott ont été envisagées.

• *Modèle de Newman pour l'électrodéposition du cuivre*

Le modèle (1.13) est utilisé pour représenter la cinétique de l'électrodéposition du cuivre. Sa forme adimensionnelle s'écrit :

$$g_c(Z_C, x, u) = K(1-x)^{(1-\beta)}u - (1-u)^{(\beta-\alpha_1)} \left[\exp(\alpha_1 Z_c) - (1-u)^{(\alpha_1+\alpha_2)} \right] = 0 \quad (1.27)$$

avec $K = -I_{L0}/(A_e i_0^0 C_{A0}^\beta)$

paramètre	valeur	unité
α_1	0.84	(S.I)
α_2	1.16	(S.I)
β	0.42	(S.I)
i_0^0	1.445	(S.I)

Tableau 1.3: Données cinétiques du modèle de Newman pour la déposition du cuivre.

Les données numériques utilisées pour ce modèle sont rassemblées dans le tableau 1.3 (Latifi et al., 1991).

L'utilisation de ces données pour reconstruire les courbes intensité-potentiel en fonction de la concentration instantanée dans la solution conduit à la figure 1.7.

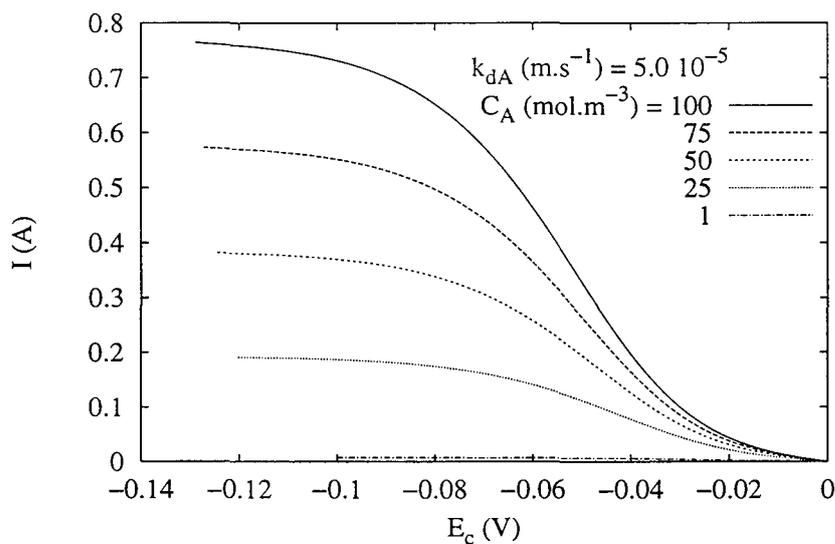


Figure 1.7: Courbe $I - E$ de la déposition du Cuivre: Modèle de Newman.

• *Modèle de Scott pour l'électrodéposition du cuivre*

En utilisant les grandeurs adimensionnelles introduites, le modèle (1.20) pour l'électrodéposition du cuivre s'écrit alors :

$$g_c(Z_C, x, u) = (1 - x) u - \frac{K_A [\exp(\beta Z_c)(1 - x) - \exp(-\alpha Z_c)x]}{[1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)]} = 0 \quad (1.28)$$

avec $K_A = k_{f10}/k_{dA}$ et $K_B = k_{b10}/k_{dB}$

paramètre	valeur	unité
α	0.84	(S.I)
β	1.16	(S.I)
k_{f10}	$1.0 \cdot 10^{-7}$	($m.s^{-1}$)
k_{b10}	$1.0 \cdot 10^{-7}$	($m.s^{-1}$)

Tableau 1.4: Données cinétiques du modèle de Scott pour la déposition du cuivre.

Les données numériques utilisées pour ce modèle sont rassemblées dans le tableau 1.4. Elles sont obtenues par analogie avec celles du modèle précédent.

La figure 1.8 est l'équivalent de la figure 1.7, obtenue en utilisant le modèle de Scott.

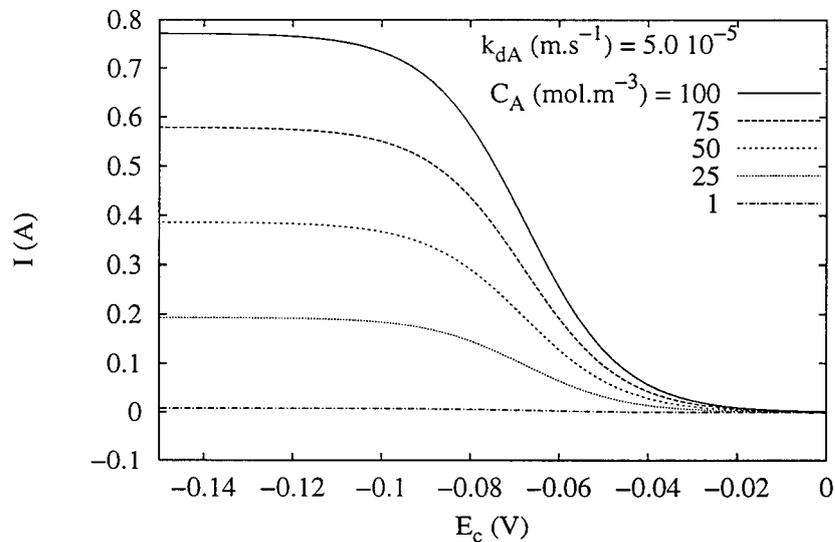


Figure 1.8: Courbe $I - E$ de la déposition du Cuivre: Modèle de Scott.

Série de deux réactions

On considère la série de deux réactions réversibles :



Pour ce schéma réactionnel, seule la formulation de Scott (1985) est utilisée. Dans le cas de deux réactions en série, le formalisme utilisé pour le cas d'une seule réaction, conduit à exprimer les débits de production sous la forme :

$$\frac{I_1}{\nu_1 F} = A_e [k_{f1} C_A^{(e)} - k_{b1} C_B^{(e)}] \quad (1.30)$$

$$\frac{I_2}{\nu_2 F} = A_e [k_{f2} C_B^{(e)} - k_{b2} C_D^{(e)}] \quad (1.31)$$

La description de ces phénomènes en termes de transfert de matière (diffusionnel) conduit cette fois à :

$$\frac{I_1}{\nu_1 F} = k_{dA} A_e [C_A^{(s)} - C_A^{(e)}] \quad (1.32)$$

$$\frac{I_1}{\nu_1 F} - \frac{I_2}{\nu_2 F} = k_{dB} A_e [C_B^{(e)} - C_B^{(s)}] \quad (1.33)$$

$$\frac{I_2}{\nu_2 F} = k_{dD} A_e [C_D^{(e)} - C_D^{(s)}] \quad (1.34)$$

En combinant ces équations pour éliminer les concentrations à la surface de l'électrode, les vitesses de réactions s'expriment par :

$$\frac{I_1}{\nu_1 F} = A_e [a_1 C_A^{(s)} + a_2 C_B^{(s)} + a_3 C_D^{(s)}] \quad (1.35)$$

$$\frac{I_2}{\nu_2 F} = A_e [b_1 C_A^{(s)} + b_2 C_B^{(s)} + b_3 C_D^{(s)}]$$

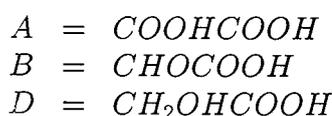
Les coefficients a_i et b_i sont des fonctions non-linéaires du potentiel d'électrode, données en annexe à la page 238

La distinction entre concentration en surface et en solution n'est à cette étape plus nécessaire. L'exposant (s) est donc abandonné.

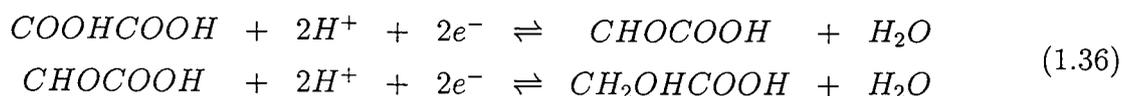
L'intérêt d'utilisation de ce type de modèle pour représenter la cinétique est multiple. D'une part, son extension à des schémas réactionnels plus complexes est immédiate. Son analogie avec les modèles de cinétique chimique peut de plus être un atout dans le traitement numérique des systèmes mixtes chimiques-électrochimiques. Un autre intérêt réside dans la nature explicite du courant exprimé en fonction du potentiel. Cette nature explicite simplifie en effet le traitement numérique en évitant la résolution d'une ou de plusieurs équations algébriques non-linéaires.

Application à la production d'acide glyoxilique

Description Pour illustrer le schéma réactionnel ABD , on considère le cas de l'électroréduction de l'acide oxalique en acide glyoxilique suivie par l'électroréduction de l'acide glyoxilique en acide glycolique (Pickett et Yap, 1974).



Les réactions impliquées dans ce schéma sont :



La production considérée est celle du constituant intermédiaire B (acide glyoxilique). Le procédé est contrôlé au moyen du potentiel d'électrode $u = E$ (par rapport à une électrode de référence).

On se réserve la possibilité d'imposer le taux de conversion du réactif.

paramètre	valeur	unité
V	$0.157 \cdot 10^{-3}$	(m^3)
A_e	$22.0 \cdot 10^{-4}$	(m^2)
T	293.15	(K)
t_f	3600	(s)
k_{dA}	$5.0 \cdot 10^{-5}$	$(m.s^{-1})$
$r_k = k_{dB}/k_{dA}$	1.0	$(S.I)$
C_{A0}	680.0	$(mol.m^{-3})$
C_{B0}	0.0	$(mol.m^{-3})$
C_{D0}	0.0	$(mol.m^{-3})$

Tableau 1.5: Dimensions et conditions opératoires du réacteur ABD .

Les dimensions et conditions opératoires associées à ce procédé batch sont résumées dans le tableau 1.5.

Modélisation Pour ce système, seul le modèle de Scott (1.35) est utilisé. On considère un schéma irréversible de réduction des acides ($k_{bi0} = \alpha_i = 0$).

paramètre	valeur	unité
k_{f10}	10^{-13}	$(m.s^{-1})$
k_{f20}	$3.33 \cdot 10^{-14}$	$(m.s^{-1})$
β_1	0.162	$(S.I)$
β_2	0.157	$(S.I)$

Tableau 1.6: Données cinétiques de l'électroréduction des acides organiques.

Les données cinétiques associées aux deux réactions de réduction sont fournies dans le tableau 1.6. Ces données expérimentales ont été déduites d'une étude publiée par Pickett et Yap (1974) et reprise par Scott (1985).

Les figures 1.9 et 1.10 illustrent la nature des deux réactions électrochimiques correspondant à ces données cinétiques. Elles présentent les profils intensité-potential spécifiques à chaque réaction, pour différentes compositions de la solution.

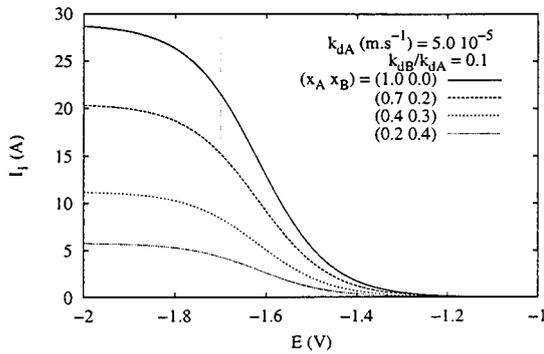


Figure 1.9: Courbe $I_1 - E$ de la réduction de l'acide oxalique: Modèle de Scott.

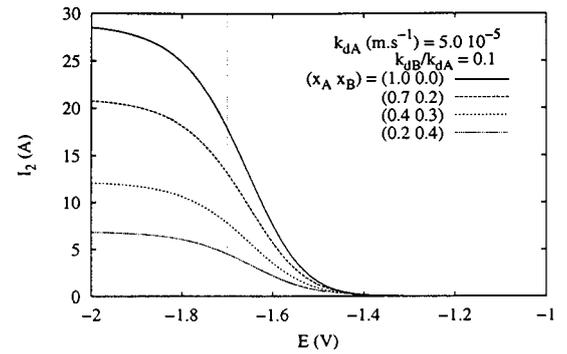


Figure 1.10: Courbe $I_2 - E$ de la réduction de l'acide glyoxilique: Modèle de Scott.

On constate que ces courbes intensité-potential présentent une allure similaire. Cette similitude est due à l'hypothèse de cinétiques très proches l'une de l'autre (Scott, 1985). Compte tenu de cette remarque, il est évident que le problème de la sélectivité dans ce type de système réactionnel est primordial. Les courbes intensité (total)-potential associées à ces deux réactions sont données sur la figure 1.11.

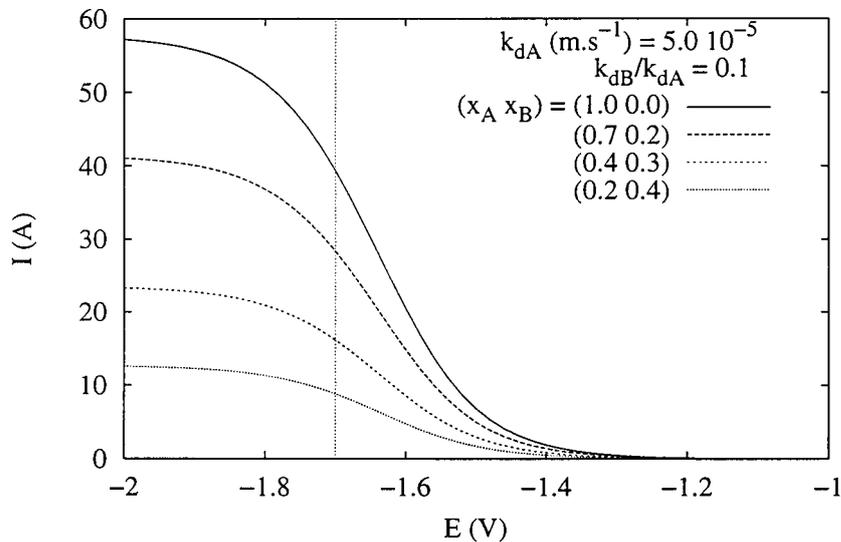


Figure 1.11: Courbe $I - E$ de la réduction des acides: Modèle de Scott.

Pour représenter le système sous une forme adimensionnelle, on introduit les titres x_i des espèces A , B et D :

$$\begin{aligned} x_1 &= \frac{C_A}{C_{T0}} \\ x_2 &= \frac{C_B}{C_{T0}} \\ x_3 &= \frac{C_D}{C_{T0}} = 1 - x_1 - x_2 \end{aligned} \quad (1.37)$$

Pour des raisons précisées plus loin, le potentiel est pour sa part toujours exprimé en Volt. Le modèle cinétique (1.35) couplé au bilan matière dans le réacteur conduit à l'équation d'état :

$$\begin{aligned} \dot{x}_1 &= \frac{dx_1}{d\tau} = k^* [(a_3 - a_1) x_1 + (a_3 - a_2) x_2 - a_3] \\ \dot{x}_2 &= \frac{dx_2}{d\tau} = k^* [(a_1 - b_1 + b_3 - a_3) x_1 + (a_2 - b_2 + b_3 - a_3) x_2 + a_3 - b_3] \end{aligned} \quad (1.38)$$

avec $k^* = A_e t_f / V$ et $\tau = t / t_f$.

Dans la suite, cette équation d'état est notée sous la forme :

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u, \tau) = A(u) \mathbf{x} + B(u) \quad (1.39)$$

On exprime également l'intensité du courant, qui correspond à une grandeur mesurée du système, sous une forme matricielle :

$$I = I_1 + I_2 = C(u) \mathbf{x} + D(u) \quad (1.40)$$

Les éléments de A , B , C et D sont détaillés en annexe à la page 237

Les critères envisagés pour l'amélioration du fonctionnement des procédés sont assez spécifiques au système. Ils sont donc décrits dans les sections respectives.

Comme il a déjà été précisé dans la description des procédés électrochimiques, les variables peuvent être soumises à un certain nombre de limitations. En effet, d'un point de vue physique, le mode de fonctionnement du procédé peut et doit être limité pour en maîtriser l'évolution (sécurité, normes, spécifications du fonctionnement). De plus, le domaine de validité du modèle qui représente le procédé est restreint. On étudie les modes de fonctionnement du procédé à l'intérieur de ce domaine limité afin de garantir la faisabilité des conditions opératoires proposées. Ces précautions se traduisent donc par des contraintes sur les variables du système considéré (concentrations, potentiels, courants). Ces contraintes ont donc une origine assez générale mais leurs expressions sont suffisamment spécifiques pour qu'elles soient détaillées d'une manière individuelle pour chaque système.

1.4 Problèmes d'optimisation

1.4.1 Simple réaction

Dans la cas d'un schéma composé d'une unique réaction réversible, les problèmes d'optimisation sont relativement peu nombreux.

L'amélioration du fonctionnement du procédé d'électrodéposition du cuivre est envisagée sous l'aspect énergétique. On cherche en effet à minimiser un critère J qui correspond à la consommation globale d'énergie électrique nécessaire à une conversion donnée du réactif A (Cu^{2+}) en B (Cu).

Critère

La consommation globale d'énergie dans la cellule électrochimique est donnée par l'intégrale de la puissance électrique :

$$J = \int_0^1 U_c I d\tau \quad (1.41)$$

avec U_c la tension de cellule décrite par la relation (1.1). Elle s'exprime en fonction des surtensions aux électrodes, de la tension réversible et de la chute ohmique.

$$J = \int_0^1 (U_0 + E_a + |E_c| + R_e I) I d\tau \quad (1.42)$$

La décomposition de cette tension en fonction des différentes contributions et l'utilisation des grandeurs normalisées définies à la page 38 conduit à réécrire le critère sous la forme :

$$J = J_0 \int_0^1 (Z_0 + Z_a + Z_c) u(1-x) + r^* u^2(1-x)^2 d\tau \quad (1.43)$$

avec les constantes :

$$\begin{aligned} J_0 &= RT k_{dA} A_e C_{A0} t_f \\ Z_0 &= \frac{\nu F}{RT} U_0 \\ r^* &= R_e \frac{(\nu F)^2 k_{dA} A_e C_{A0}}{RT} \end{aligned} \quad (1.44)$$

paramètre	valeur	unité
U_0	0.9	(V)
R_e	5.0	(Ω)

Tableau 1.7: Conditions opératoires complémentaires du réacteur AB .

Les conditions opératoires nécessaires pour caractériser le système et son critère sont données dans le tableau 1.7.

Contraintes électrochimiques

Dans la description du modèle AB , la validité n'est garantie que si la seule réaction qui se produit dans le réacteur est la conversion réversible de A en B . Pour cela, il faut vérifier que le rendement électrique de la réaction est toujours de 100%. Deux contraintes sont ainsi introduites.

La première correspond au temps minimum nécessaire pour pouvoir opérer à rendement électrique de 100%. L'introduction de la constante de temps t_L ((1.23)) permet d'exprimer cette contrainte sous la forme :

$$t^* = \frac{t_f}{t_L} \geq 1 \quad (1.45)$$

La satisfaction de cette contrainte est donc faite *a priori* en choisissant un temps opératoire adapté.

La contrainte précédente ne permet de satisfaire la condition du rendement que d'une manière globale. L'utilisation d'un profil temporel d'intensité du courant peut conduire à violer localement cette condition. Il est donc nécessaire d'imposer la condition de rendement à chaque instant. Cette contrainte s'exprime simplement par la condition :

$$u = \frac{I(t)}{I_L(t)} \geq 1 \quad (1.46)$$

Du point de vue du fonctionnement, le critère envisagé est un critère de type énergétique. Il va de soi que ce type de critère ne peut être optimisé que dans le cas où un "objectif" est fixé. Dans le cas contraire, la solution est triviale: pour minimiser l'énergie, il suffit de ne rien faire. Dans le cas présent, on impose le taux de conversion du réactif A . Cette condition se traduit par une contrainte terminale du type:

$$x(1) = x_f \quad (1.47)$$

Formulation

Tous les précédentes définitions permettent ainsi de formuler le problème de la minimisation de la consommation globale d'énergie électrique pour convertir A dans les conditions mentionnées, sous la forme:

Problème AB-ENERG:

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} J &= \int_0^1 (Z_0 + Z_a + Z_c) u(1-x) + r^* u^2 (1-x)^2 d\tau \\ \text{soumis à: } \dot{x} &= k^* t^* (1-x)u \\ x(0) &= x_0 \\ x(1) &= x_f \\ 0 &= g_c(Z_c, x, u) \\ 0 &= g_a(Z_a, x, u) \\ 0 \leq u(t) &\leq 1 \end{aligned} \quad (1.48)$$

1.4.2 Série de deux réactions

Critères

Dans le cadre de l'étude du système réactionnel ABD , nous avons envisagé plusieurs approches pour l'amélioration du fonctionnement de ce procédé *batch*. Notre étude porte les problèmes de:

- (i) Maximisation de la production du constituant intermédiaire B en imposant ou non le taux de conversion du réactif A .

Le critère d'optimisation est alors défini par $J = C_B(t_f)$ ou dans sa forme adimensionnelle $J = x_2(1)$.

- (ii) Minimisation du temps opératoire pour atteindre une sélectivité donnée.

Le critère à optimiser est alors $J = t_f$ et la sélectivité est imposée en fixant le taux de conversion X_A et la concentration (resp. le titre) finale $C_B(t_f)$ (resp. $x_2(1)$).

- (iii) Maximisation du rendement chimique en imposant ou non le taux de conversion du réactif A .

Le critère est donné par: $J = C_B(t_f)/(C_{A0} - C_A(t_f))$.

- (iv) Maximisation du rendement électrique en imposant ou non le taux de conversion du réactif A .

Le critère est donné par: $J = I_1/(I_1 + I_2)$.

Contraintes électrochimiques

L'étude expérimentale de ce système (Pickett et Yap, 1974) a montré que, pour éviter les réactions parasites, le potentiel d'électrode doit être limité à l'intervalle $[-1.7, -1.0]$ V. On considère donc le *domaine admissible* de la commande, \mathcal{U} , défini par :

$$\mathcal{U} = [u_{min}, u_{max}] = [-1.7, -1.0] \quad (1.49)$$

C'est d'ailleurs en raison de cet ordre de grandeur proche de l'unité, que la variable u n'est pas exprimée sous une forme adimensionnelle.

Comme mentionné précédemment, le taux de conversion $X_A = (C_{A0} - C_A(t_f))/C_{A0}$ du réactif A peut être imposé. Ce type de contrainte peut en effet être nécessaire lorsque :

- le coût du réactif A est élevé
- on est soumis à des normes de rejet (procédé propre)
- le procédé de séparation des différents constituants du mélange réactionnel est difficile à mettre en oeuvre.

Cette condition est exprimée par la contrainte terminale :

$$\frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}} = X_{Af} \quad (1.50)$$

La condition équivalente au rendement électrique de 100% s'exprime, dans le cas de deux réactions en série, par une condition entre le courant partiel I_i et le flux de diffusion vers ou à partir de la surface de l'électrode. En termes de concentrations (titre), cette condition exprime la nécessité de maintenir les concentrations de chaque espèce à la surface de l'électrode, positives. On doit ainsi vérifier les conditions suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{I_1}{\nu_1 F} &\leq (A_e k_{dA} C_{T0}) x_1 \\ \frac{I_2}{\nu_2 F} - \frac{I_1}{\nu_1 F} &\leq (A_e k_{dB} C_{T0}) x_2 \\ \frac{I_2}{\nu_2 F} &\geq (A_e k_{dD} C_{T0}) (1 - x_1 - x_2) \end{aligned} \quad (1.51)$$

Afin de ne pas alourdir la formulation du problème, ces dernières conditions ne sont pas intégrées dans la résolution mais elles sont vérifiées *a posteriori*.

Formulations

Les critères énumérés dans la section précédente correspondent alors aux formulations des problèmes d'optimisation dynamique suivants :

1. Problème ABD-CB: Maximisation de la production.

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} J &= x_2(1) \\ \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u)\mathbf{x} + B(u) \\ \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\ X_{Af} &= \frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}} \\ -1.7 \leq u(t) &\leq -1.0 \end{aligned} \quad (1.52)$$

2. Problème ABD-TF : Minimisation du temps opératoire à sélectivité imposée.

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t), t_f} J &= t_f \\
 \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u)\mathbf{x} + B(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 X_{Af} &= \frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}} \\
 x_2(1) &= x_{2f} \\
 -1.7 \leq u(t) &\leq -1.0
 \end{aligned} \tag{1.53}$$

3. Problème ABD-RDTC : Maximisation du rendement chimique.

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= \frac{x_2}{(x_{10} - x_1)} \\
 \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u)\mathbf{x} + B(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 X_{Af} &= \frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}} \\
 -1.7 \leq u(t) &\leq -1.0
 \end{aligned} \tag{1.54}$$

4. Problème ABD-RDTE : Maximisation du rendement électrique.

Le problème ABD-RDTE est volontairement exprimé sous une forme algèbro-différentielle en introduisant un vecteur \mathbf{y} de dimension 2 :

$$\begin{aligned}
 y_1 &= \frac{I_1}{\nu_1 F} \\
 y_2 &= \frac{I_2}{\nu_2 F}
 \end{aligned} \tag{1.55}$$

Le fonctionnement du réacteur est alors décrit par le système :

$$\begin{aligned}
 \dot{x}_1 &= -y_1 \\
 \dot{x}_2 &= y_1 - y_2 \\
 0 &= y_1 - (a_1 - a_3) x_1 - (a_2 - a_3) x_2 - a_3 \\
 0 &= y_2 - (b_1 - b_3) x_1 - (b_2 - b_3) x_2 - b_3
 \end{aligned} \tag{1.56}$$

La formulation du problème devient alors :

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= -x_2 \\
 \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= \bar{A} \mathbf{y} \\
 0 &= \mathbf{y} - \bar{C}(u) \mathbf{x} - \bar{D}(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 X_{Af} &= \frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}} \\
 -1.7 \leq u(t) &\leq -1.0
 \end{aligned} \tag{1.57}$$

avec

$$\begin{aligned}\bar{A} &= \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \\ \bar{C} &= \begin{pmatrix} a_1 - a_3 & a_2 - a_3 \\ b_1 - b_3 & b_2 - b_3 \end{pmatrix} \\ \bar{D} &= \begin{pmatrix} a_3 \\ b_3 \end{pmatrix}\end{aligned}\tag{1.58}$$

Chapitre 2

Optimisation dynamique

2.1 Méthodes d'optimisation dynamique

Dans notre étude du fonctionnement optimal des procédés électrochimiques, l'optimisation concerne :

- (i) la détermination des profils optimaux de commande (courant, potentiel)
(commande qui optimise le critère).
- (ii) l'observation des états (concentrations)
(minimisation des erreurs d'estimation),
- (iii) la commande en boucle fermée (commande optimale)
(commande qui optimise le critère en tenant compte des perturbations).

Ce chapitre est consacré aux méthodes de détermination de profils optimaux de commande. Il est constitué d'une partie consacrée à la description des méthodes d'optimisation dynamique et d'une partie présentant les différentes techniques qui permettent de résoudre les problèmes résultants. Ces informations sont appliquées en vue de l'amélioration du fonctionnement des réacteurs électrochimiques discontinus. La variable à optimiser est, soit l'intensité, soit le potentiel.

2.1.1 Introduction

L'optimisation du fonctionnement des procédés est une recherche permanente dans les différentes branches du Génie des Procédés. L'optimisation qualifie la démarche qui consiste à améliorer une performance (un critère) par rapport à un état de référence sous l'action d'un paramètre (variable). Cette optimisation peut être abordée de deux manières :

- par une démarche expérimentale de type essai-erreur.
Elle consiste à trouver d'une manière plus ou moins empirique, un meilleur mode de fonctionnement par une succession d'essais qui viennent compléter la connaissance du système.
- par une démarche méthodique.

La détermination de paramètres qui améliorent la performance est réalisée par un calcul selon des règles précises (algorithmes). Cette catégorie représente le très vaste ensemble des méthodes numériques d'optimisation.

On distingue également deux types d'optimisation en fonction de la nature de la variable optimisée :

- Lorsque la démarche consiste à déterminer la meilleure valeur du paramètre u (constante) qui optimise un critère, on parle d'optimisation *statique*. Il s'agit, encore à l'heure actuelle, de l'optimisation la plus fréquemment rencontrée en Génie des Procédés et le qualificatif statique est souvent omis.
- Lorsque la démarche consiste à déterminer la meilleure fonction $u(.)$ qui optimise le critère, on parle d'optimisation *dynamique*. Ce type d'optimisation est plus complexe et ses premières applications pratiques sont apparues dans la détermination des trajectoires optimales de mise en orbite des satellites.

Les méthodes d'optimisation dynamique sont elle mêmes classées en trois catégories :

- Principe de Bellman (Bellman, 1957)
- Méthodes variationnelles (Smith, 1974; Bryson et Ho, 1975)
- Principe du Maximum (Pontryagin, 1964).

Proposées il y a plus de quarante ans, elles ont été appliquées pour optimiser le fonctionnement dynamique de nombreux procédés chimiques et biochimiques pendant cette période. Le récent essor des techniques de calcul a cependant permis, depuis les années 80, de les appliquer à des systèmes de complexité et d'intérêt industriel croissants. Les résultats des méthodes variationnelles et ceux du Principe du Maximum reposent sur des bases théoriques similaires. La méthode de Bellman a, en revanche, des fondements théoriques sensiblement différents. On peut toutefois passer de l'une à l'autre. Ces trois méthodes ne donnent cependant que des conditions nécessaires d'optimalité. Le choix de l'une ou l'autre de ces méthodes dépend alors de considérations techniques (moyens de calcul) et théoriques (nature et dimensions du problème, non-linéarités, contraintes).

En Génie des Procédés, toutes ces méthodes ont été appliquées pour déterminer les conditions optimales de fonctionnement. En Génie des Procédés électrochimiques, les méthodes d'optimisation statique ont conduit à déterminer les meilleures *valeurs* du potentiel d'électrode ou de l'intensité du courant. Une étude préliminaire réalisée par Latifi et al. (1991) a cependant montré que ce fonctionnement statique n'est pas toujours optimal. De plus, le meilleur mode de fonctionnement statique n'exploite pas la rapidité de la dynamique des systèmes électrochimiques. L'utilisation de l'énergie électrique pour déclencher les phénomènes réactionnels se révèle en effet un atout majeur dans ce domaine.

L'utilisation des méthodes d'optimisation dynamique apparaît alors comme un moyen d'investigation plus approfondi de l'optimisation du fonctionnement de ces procédés électrochimiques. Paradoxalement, seules quelques études (Storck, 1989; Latifi et al., 1991; Bakshi et Fedkiw, 1993) ont été présentées dans ce domaine avant le début de ces travaux.

2.1.2 Optimisation dynamique

Position du problème

Modèle du procédé Un problème d'optimisation est naturellement associé à un procédé ou à un modèle du procédé. Dans tout ce qui suit, on considère un système dynamique régi par l'équation différentielle (2.1). $\mathbf{x} \in \mathbb{R}^n$ est l'état du système, u la variable de commande et t le temps (ou toute autre variable indépendante). Cette forme générale n'impose ainsi aucune propriété particulière au système étudié.

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u) \quad \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \quad (2.1)$$

Critères Le choix du (ou des) critère(s) d'optimisation est la première étape d'un problème de commande optimale. Il est courant de représenter le critère au moyen de la relation générale (2.2) composée d'un terme terminal G et d'un terme intégral F .

$$J[u(t)] = G[\mathbf{x}(t_f)] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u) dt \quad (2.2)$$

G représente l'objectif à atteindre et le terme intégral représente les moyens mis en oeuvre pour le réaliser.

Dans ces formulations, les fonctions f et F sont considérées comme autonomes (ne dépendant pas explicitement du temps). Cela ne nuit cependant pas à la généralité du système car ces fonctions sont fréquentes dans le domaine du Génie des Procédés.

Contraintes Les problèmes d'optimisation dynamique sont généralement associés à des contraintes de différents types sur l'état ou sur la commande.

On distingue six types de contraintes (Goh et Teo, 1988; Chen et Hwang, 1990; Teo et al., 1991):

(i) Contrainte d'égalité de dimension infinie :

$$\phi(\mathbf{x}, u, t) = 0 \quad t \in [0, t_i], \quad t_i \leq t_f \quad (2.3)$$

(ii) Contrainte d'inégalité de dimension infinie

$$\phi(\mathbf{x}, u, t) \geq 0 \quad t \in [0, t_i], \quad t_i \leq t_f \quad (2.4)$$

(iii) Contrainte d'égalité intérieure

$$\phi(\mathbf{x}, u, t_i) = 0 \quad t_i \in [0, t_f] \quad (2.5)$$

(iv) Contrainte d'inégalité intérieure

$$\phi(\mathbf{x}, u, t_i) \geq 0 \quad t_i \in [0, t_f] \quad (2.6)$$

(v) Contrainte d'égalité terminale

$$\phi(\mathbf{x}, u, t_f) = 0 \quad (2.7)$$

(vi) Contrainte d'inégalité terminale

$$\phi(\mathbf{x}, u, t_f) \geq 0 \quad (2.8)$$

Toutes ces contraintes peuvent être représentées dans une forme canonique qui correspond à la forme générale du critère d'optimisation (2.2) pour lequel on réserve l'indice $i = 0$.

$$J_i[u(t)] = G_i[\mathbf{x}(t_f)] + \int_{t_0}^{t_f} F_i(\mathbf{x}, u) dt \quad (2.9)$$

Les différents types de contraintes, leur forme canonique et la condition équivalente à la contrainte satisfaite, sont présentés dans le récapitulatif suivant :

(i) Contrainte d'égalité de dimension infinie :

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= 0, F_i(\mathbf{x}, u) = \omega [\phi(\mathbf{x}, u, t)]^N \\ J_i[u(t)] &= 0 \end{aligned} \quad (2.10)$$

(ii) Contrainte d'inégalité de dimension infinie

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= 0, F_i(\mathbf{x}, u) = \omega \min [0, \phi(\mathbf{x}, u, t)] \\ J_i[u(t)] &= 0 \end{aligned} \quad (2.11)$$

La fonction \min introduite n'est pas continue. Pour éviter les problèmes liés au traitement d'une fonction raide en $\phi = 0$ (discontinuité), il est aussi possible d'utiliser une fonction \min avec un ordre N supérieur à 1 :

$$F_i(\mathbf{x}, u) = \omega (\min [0, \phi(\mathbf{x}, u, t)])^N \quad (2.12)$$

ou d'utiliser une fonction modifiée :

$$\begin{aligned} F_i(\mathbf{x}, u) &= \omega \phi(\mathbf{x}, u, t) && \text{si } \phi(\mathbf{x}, u, t) < -\epsilon \\ F_i(\mathbf{x}, u) &= -\omega (\phi(\mathbf{x}, u, t) - \epsilon)^2 / 4\epsilon && \text{si } -\epsilon \leq \phi(\mathbf{x}, u, t) \leq \epsilon \\ F_i(\mathbf{x}, u) &= 0 && \text{si } \phi(\mathbf{x}, u, t) > \epsilon \end{aligned} \quad (2.13)$$

(iii) Contrainte d'égalité intérieure

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= \phi(\mathbf{x}, u, t_i), F_i(\mathbf{x}, u) = 0 \\ J_i[u(t)] &= 0 \end{aligned} \quad (2.14)$$

(iv) Contrainte d'inégalité intérieure

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= \phi(\mathbf{x}, u, t_i), F_i(\mathbf{x}, u) = 0 \\ J_i[u(t)] &\geq 0 \end{aligned} \quad (2.15)$$

(v) Contrainte d'égalité terminale

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= \phi(\mathbf{x}, u, t_f), F_i(\mathbf{x}, u) = 0 \\ J_i[u(t)] &= 0 \end{aligned} \quad (2.16)$$

(vi) Contrainte d'inégalité terminale

$$\begin{aligned} G_i[\mathbf{x}(t_f)] &= \phi(\mathbf{x}, u, t_f), F_i(\mathbf{x}, u) = 0 \\ J_i[u(t)] &\geq 0 \end{aligned} \quad (2.17)$$

ω est un facteur de pondération positif et ajustable.

Formulation La formulation d'un problème d'optimisation en commande se résume par la forme générale (2.18).

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} J &= G[\mathbf{x}(t_f)] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u) dt \\ \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, u) \\ \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \end{aligned} \quad (2.18)$$

et l'utilisation de la forme canonique permet de traiter les contraintes comme un critère supplémentaire.

Principe de Bellman

Le Principe de Bellman (Bellman, 1957) est à l'origine de nombreuses études depuis quelques années. Il est connu depuis les années 50 mais son application n'est possible que depuis les progrès des moyens de calcul que nous connaissons depuis 10 ans. Les travaux de Bojkov et Luus sont incontournables dans ce domaine depuis le début des années 90 (Luus et Tremblay, 1989; Luus, 1990, 1991, 1993b; Bojkov et al., 1993; Luus et Bojkov, 1994; Bojkov et Luus, 1994a,b; Luus et al., 1995; Bojkov et Luus, 1996). Les premières applications ont été développées sur des problèmes et des systèmes relativement simples (réacteurs chimiques discontinus (Luus et Tremblay, 1989)). Les études ont cependant rapidement permis de résoudre une grande variété de problèmes (réacteurs *quench* (Hartig et Keil, 1994), électrochimiques (Latifi et Fournier, 1997)) dont la complexité est toujours croissante (temps optimal (Luus et Bojkov, 1994; Bojkov et Luus, 1994a,b, 1996), systèmes de grandes dimensions (Luus, 1993b; Fikar et al., 1997b,a), systèmes avec retards (Luus et al., 1995)).

L'énoncé du Principe de Bellman, bien que mathématiquement fondé, repose sur une notion qui est intuitivement évidente. On peut l'énoncer ainsi :

Theorème 1 *Toute trajectoire d'un point M à un point N, extraite d'une trajectoire optimale MNP, est elle-même optimale.*

L'algorithme de la programmation dynamique itérative (Iterative Dynamic Programming) consiste à utiliser un corollaire de cet énoncé.

Theorème 2 *Parmi toutes les trajectoires qui relient les points M à P en passant par la portion de trajectoire quelconque MN, la trajectoire optimale est celle qui suit la sous-trajectoire qui relie N et P de manière optimale.*

L'approche de IDP consiste globalement à découper l'intervalle de temps en N sous-intervalles où la commande est constante. À partir de P trajectoires d'état "arbitrairement" réparties dans l'espace, la démarche consiste à choisir les sous-politiques optimales de commande qui conduisent à la meilleure valeur du critère. La procédure est répétée afin de converger vers l'optimum global.

Au niveau implantation, un des avantages majeurs de cette méthode est son indépendance vis-à-vis du modèle. En effet, lorsque l'algorithme est mis au point pour un système et un critère donné, il peut être utilisé pour n'importe quel autre système ou critère

moyennant des modifications rudimentaires. L'absence de gradient dans l'algorithme rend cette méthode polyvalente puisqu'aucune dérivation n'est nécessaire.

Ses inconvénients majeurs résident dans la nécessité de disposer de moyens de calcul puissants et de moyens de stockage importants. Les trajectoires intermédiaires sont quasi-optimales. Elles ne peuvent cependant être utilisées que lorsque le "maillage" de l'espace est suffisamment fin, c'est-à-dire à la fin du processus itératif. D'autre part, si la convergence de ce processus est garantie, il n'existe pas de critère de convergence pour arrêter le processus itératif lorsque la solution est optimale. Il est courant de fixer *a priori* le nombre d'itérations de la procédure.

Méthodes variationnelles

Les résultats des méthodes variationnelles sont résumés par les équations d'*Euler-Lagrange*. Elles sont analogues aux équations classiquement rencontrées dans les problèmes d'optimisation statique dont un très succinct résumé est donné.

Dans le cas de l'optimisation statique, la condition d'optimalité pour déterminer le vecteur $\mathbf{u} = (u_1 \dots u_m)^T$ qui optimise l'indice de performance $L(\mathbf{u})$ est donnée par :

$$\frac{\partial L}{\partial \mathbf{u}} = 0 \quad (2.19)$$

En présence de contraintes du type $f(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 0$, où \mathbf{x} représente l'état du système, le Lagrangien \mathcal{L} (Eq. (2.20)) et les *multiplicateurs de Lagrange* λ sont introduits.

$$\mathcal{L} = L + \lambda f \quad (2.20)$$

La condition d'optimalité devient :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{u}} = 0 \quad (2.21)$$

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{x}} = 0 \quad (2.22)$$

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \lambda} = 0 \quad (2.23)$$

Dans ce système, la condition (2.21) est équivalente à la condition d'optimalité du cas sans contrainte, (2.22) permet de définir les multiplicateurs de Lagrange et la condition (2.23) correspond à la contrainte $f(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 0$.

Dans la formulation du problème d'optimisation dynamique (Eq. (2.18)), les paramètres de la formulation précédente sont remplacés par des variables fonctions du temps. La forme dynamique du problème conduit ainsi à des expressions étendues mais les notions restent les mêmes. L'équation d'état est considérée comme une contrainte (différentielle) du problème de minimisation de J . On définit ainsi la fonction \mathcal{L} :

$$\mathcal{L} = F(\mathbf{x}, u) + \lambda [\dot{\mathbf{x}} - f(\mathbf{x}, u)] \quad (2.24)$$

Les conditions d'optimalité du système dynamique sont données par les équations d'*Euler-Lagrange* appliquées au Lagrangien \mathcal{L} , ce qui conduit au système (2.25) (2.26) (2.27).

$$\frac{d\mathcal{L}}{d\lambda_i} - \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\lambda}_i} \right] = 0 \quad i = 1, \dots, n \quad (2.25)$$

$$\frac{d\mathcal{L}}{dx_i} - \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{x}_i} \right] = 0 \quad i = 1, \dots, n \quad (2.26)$$

$$\frac{d\mathcal{L}}{du_i} - \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{u}_i} \right] = 0 \quad i = 1, \dots, m \quad (2.27)$$

La condition (2.25) correspond à la contrainte différentielle (équations d'état), (2.27) permet de définir la commande optimale et la relation (2.26) fournit l'équation différentielle qui régit les multiplicateurs de Lagrange λ . Les conditions aux limites de (2.26) sont données par les conditions de transversalité du système (Boudarel et al., 1969).

$$\begin{aligned} (\delta x \lambda)_{t_0} &= 0 \\ (\delta x \lambda)_{t_f} &= 0 \end{aligned} \quad (2.28)$$

Ces dernières expriment l'orthogonalité des trajectoires adjointes aux variations de l'état aux limites.

Principe du Maximum

Les développements du Principe du Maximum (PMP) ont été établis par Pontryagin (1964). La rigueur mathématique de cette théorie a conduit de nombreux auteurs à mentionner systématiquement ce principe dans les ouvrages traitant de l'optimisation dynamique de procédés (Lee et Markus, 1967; Boudarel et al., 1969; Ray et Szekeley, 1973).

Il permet de déterminer le vecteur de commande $\mathbf{u}(t)$ du domaine admissible \mathcal{U} qui :

- pour un système soumis à des contraintes d'égalité (équations d'état) données par :

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \quad (2.29)$$

où $\mathbf{x} \in \mathbb{R}^n$ est le vecteur d'état et $\mathbf{u} \in \mathbb{R}^m$ le vecteur de commande.

- optimise un critère J donné sous la forme :

$$J(\mathbf{u}) = G[\mathbf{x}(t_f)] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) dt \quad (2.30)$$

Pour avoir une écriture plus homogène du problème, on augmente la dimension de l'état \mathbf{x} avec la variable x_0 tel que :

$$\dot{x}_0 = F(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \quad x_0(t_0) = 0 \quad (2.31)$$

formant ainsi le vecteur d'état étendu : $\boldsymbol{\chi} = (x_0, \mathbf{x}^T)^T$.

On définit alors le *Hamiltonien* $H(\boldsymbol{\chi}, \mathbf{u}, \Lambda)$ et le vecteur *adjoint* $\Lambda = (\lambda_0, \lambda_1, \dots, \lambda_n)^T$ du système.

$$H(\boldsymbol{\chi}, \mathbf{u}, \Lambda) = \lambda_0 F(\boldsymbol{\chi}, \mathbf{u}) + \sum_{i=1}^n \lambda_i f_i(\boldsymbol{\chi}, \mathbf{u}, t) \quad (2.32)$$

$$\dot{\Lambda} = - \frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\chi}^T} \quad (2.33)$$

$$\lambda_i(t_f) = \frac{\partial G}{\partial x_i} \quad i = 1, \dots, n \quad (2.34)$$

Le qualificatif *hamiltonien* est donné à la fonction H en raison de la structure du système résultant.

$$\begin{aligned}\dot{\chi} &= \frac{\partial H}{\partial \Lambda} \\ \dot{\Lambda} &= -\frac{\partial H}{\partial \chi}\end{aligned}\quad (2.35)$$

Le Principe du Maximum s'énonce alors de la manière suivante :

Pour que la commande $u(t)$ et la trajectoire $\chi(t)$ soient optimales, il est nécessaire qu'il existe un vecteur fonction $\Lambda(t) = (\lambda_0(t), \lambda_1(t), \dots, \lambda_r(t))$ continu et non nul, tel que :

1. *quel que soit t , $t_0 < t < t_f$, la fonction $H(\chi(t), \Lambda(t), u(t))$ de la variable $u \in \mathcal{U}$ atteigne son maximum :*

$$H(\chi(t), \Lambda(t), u(t)) = \mathcal{M}(\chi(t), \Lambda(t)) \quad (2.36)$$

2. *à l'instant final t_f soient vérifiées les relations :*

$$\lambda_0(t_f) \leq 0 \quad (2.37)$$

$$\mathcal{M}(\chi(t_f), \Lambda(t_f)) = 0$$

Par ailleurs, si les grandeurs $\chi(t)$, $\Lambda(t)$ et $u(t)$ satisfont au système Hamiltonien (2.35) et à la condition $u(t) \in \mathcal{U}$, les fonctions $\lambda_0(t)$ et $\mathcal{M}(\chi(t), \Lambda(t))$ de la variable t sont constantes, de sorte qu'on puisse vérifier les relations (2.37) à n'importe quel instant t , $t_0 \leq t \leq t_f$.

la valeur de λ_0 est arbitrairement fixée. La valeur couramment choisie est -1 de sorte que la condition $\lambda_0(t) < 0$ soit satisfaite.

Le temps initial t_0 est généralement donné lorsqu'il s'agit d'un problème d'origine physique. En revanche, le temps final, dans le cadre de l'optimisation de procédés électrochimiques discontinus, n'est pas, *a priori*, fixé. Dans le cas où t_f est fixé, la réduction de la dimension du problème se traduit par la disparition de la deuxième condition de l'équation (2.37).

La condition nécessaire d'optimalité est donc liée à la résolution du système suivant :

$$\dot{x}_i = \frac{\partial H}{\partial \lambda_i} \quad i = 1, \dots, n \quad (2.38)$$

$$\dot{\lambda}_i = -\frac{\partial H}{\partial x_i} \quad i = 1, \dots, n \quad (2.39)$$

$$0 = \frac{\partial H}{\partial u_j} \quad j = 1, \dots, m \quad u \in \mathcal{U} \quad (2.40)$$

avec les conditions limites :

$$\begin{aligned}x(t_0) &= x_0 \\ \lambda(t_f) &= \frac{\partial G}{\partial x^T}\end{aligned}$$

et la condition supplémentaire $\mathcal{M} = 0$ pour un problème à temps t_f libre.

Les hypothèses d'application de ce principe sont quelque peu différentes (plus restrictives) des conditions d'application des équations d'*Euler-Lagrange*. Les développements sont cependant très proches et la transition d'une formulation à l'autre est immédiate. On vérifie d'ailleurs que la méthode du calcul des variations conduit exactement au même système. Les équations (2.38) (2.39) et (2.40) correspondent respectivement aux équations (2.25), (2.26) et (2.27).

La difficulté du problème réside dans le fait que ces $2n$ conditions limites ne sont pas données pour la même extrémité. Le système à résoudre est donc un problème souvent non-linéaire et aux conditions limites séparées (en anglais, **Two Point Boundary Value Problem**). Ce type de problème est beaucoup plus difficile, théoriquement et numériquement, à résoudre que les problèmes de conditions initiales (**Initial Value Problem**), théoriquement car il n'existe aucune démonstration générale de l'existence et de l'unicité de la solution des TPBVP, numériquement car il n'existe pas d'approche pour obtenir systématiquement la solution quand elle existe.

2.1.3 Développement des conditions d'optimalité

Le théorème établi par Pontryagin (1964) a été énoncé dans la section précédente. La difficulté du Principe du Maximum réside dans la résolution du problème aux conditions limites partagées (TPBVP). Pour cela, de nombreuses méthodes ont été étudiées mais leur mise au point est basée sur les propriétés des variables du principe. Il est donc nécessaire de décrire précisément l'origine des différents éléments qui constituent ce principe. Les descriptions sont en effet nombreuses dans la littérature mais elles présentent les résultats dans des approches souvent spécifiques au problème traité ou à la technique de résolution employée. Les résultats présentés dans ce document nécessitent eux aussi une description spécifique.

Les démonstrations des résultats de Pontryagin sont des plus rigoureuses mais elles n'offrent pas la dimension physique des résultats que l'on peut souhaiter lorsque le principe est utilisé dans un contexte précis. Le Principe du Maximum est donc présenté dans une forme mathématiquement moins générale par l'approche variationnelle (Bryson et Ho, 1975). Ceci permet cependant d'expliquer l'origine des variables introduites et la manière dont sont traitées les différentes formes que peuvent prendre les problèmes d'optimisation (avec contraintes, paramètres, algèbro-différentiels ...).

Systeme différentiel simple

La formulation (2.18) est considérée comme le problème d'optimisation dynamique le plus élémentaire. Il correspond néanmoins à un système sous contrainte puisque l'équation d'état est indissociable du problème.

Le Principe du Maximum est basé sur l'introduction du Hamiltonien H :

$$H(x, \lambda, u) = F(x, u) + \lambda^T f(x, u) \quad (2.41)$$

Le critère peut ainsi s'écrire :

$$J(x, \lambda, u) = G[x(t_f)] + \int_0^{t_f} [H(x, \lambda, u) - \lambda^T f(x, u)] dt \quad (2.42)$$

Les variations $\delta u(t)$ de la variable de commande provoquent des variations δJ du critère données par :

$$\begin{aligned} \delta J = & \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right)_{t_f} + \int_0^{t_f} \left(-\delta \lambda^T f - \lambda^T \delta f \right) dt \\ & + \int_0^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial H}{\partial \lambda^T} \delta \lambda + \frac{\partial H}{\partial u} \delta u \right) dt \end{aligned} \quad (2.43)$$

Comme $\delta f = \delta \dot{x}$, les variations s'écrivent également :

$$\begin{aligned} \delta J = & \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right)_{t_f} \\ & + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt + \int_0^{t_f} \left[\delta \lambda^T \left(\frac{\partial H}{\partial \lambda^T} - f \right) \right] dt \\ & + \int_0^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x - \lambda^T \delta \dot{x} \right) dt \end{aligned} \quad (2.44)$$

En posant $\dot{\lambda} = -\frac{\partial H}{\partial x^T}$, on obtient :

$$\delta J = \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right)_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt - \int_0^{t_f} \frac{d}{dt} \left(\lambda^T \delta x \right) dt \quad (2.45)$$

Ainsi :

$$\delta J = \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x \right)_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt - \left(\lambda^T \delta x \right)_{t_f} + \left(\lambda^T \delta x \right)_0 \quad (2.46)$$

Comme les conditions initiales de l'état sont fixées, $\delta x_0 = 0$.

$$\delta J = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt \quad (2.47)$$

La condition nécessaire pour que la commande $u(t)$ soit optimale est que les variations de δJ soient nulles quelles que soient les variations $\delta u(t)$ (cf. $\partial J / \partial u = 0$). Les conditions nécessaires qui permettent de vérifier $\delta J = 0$ sont explicitement données par le développement précédent. On retrouve ainsi la définition des variables adjointes (2.39), la condition d'optimalité de u (2.40) et les conditions terminales adjointes (2.34).

Les variations de J sont ainsi réparties en deux contributions. La première est relative aux conditions terminales adjointes (2.34) et est peu explicite. Elle donne cependant aux variables adjointes terminales la dimension d'un gradient du critère terminal G par rapport à l'état x .

La seconde contribution traduit l'influence de $u(t)$ sur le terme intégral de J . Elle donne à la fonction H une signification plus explicite. La dérivée $\partial H / \partial u$ traduit en effet les variations de J par rapport u .

Cette remarque est à mettre en parallèle avec l'équation qui régit les variables adjointes : $\dot{\lambda} = -\partial H / \partial x$. L'intégration des variables λ traduit aussi les variations de J par rapport à x .

Une des propriétés importantes du système optimal peut être déduite de la différentiation du Hamiltonien H le long de la trajectoire optimale.

$$\begin{aligned} \frac{dH}{dt} = \dot{H} &= \frac{\partial H}{\partial t} + \frac{\partial H}{\partial x} \dot{x} + \frac{\partial H}{\partial \lambda} \dot{\lambda} + \frac{\partial H}{\partial u} \dot{u} \\ \dot{H} &= \frac{\partial H}{\partial t} + \left(\frac{\partial H}{\partial x} + \dot{\lambda} \right) \dot{x} + \frac{\partial H}{\partial u} \dot{u} \end{aligned} \quad (2.48)$$

Compte tenu de (2.39) et de (2.40) et si H ne dépend pas explicitement du temps ($\partial H/\partial t = 0$) alors :

$$\dot{H} = 0 \quad (2.49)$$

la fonction H est donc constante le long de la trajectoire optimale.

Le système résultant de ces conditions d'optimalité est un problème aux conditions limites partagées (TPBVP). Il est composé de n équations d'état dont les n conditions initiales sont connues, de n équations différentielles adjointes dont les n conditions terminales sont fournies et de m équations algébriques qui caractérisent la commande optimale u . La résolution exacte de ce TPBVP consiste à déterminer le profil de commande qui satisfait les conditions aux limites.

Une application des conditions d'optimalité au problème ABD-CB sans contrainte de conversion, présenté à la page 48, est décrite dans l'annexe A, page 225.

Système différentiel sous contrainte

Une des lacunes du Principe du Maximum est son inaptitude à traiter, d'une manière simple, les problèmes avec contraintes. Les problèmes d'optimisation sous contraintes ne sont cependant pas rares. Il est donc nécessaire de déterminer les conditions d'optimalité associées à ce type de problème. Une forme canonique des différents types de contraintes a été présentée à la page 54. Grâce à cette forme canonique, on peut faire correspondre à chaque contrainte, un Hamiltonien H_i et un vecteur adjoint λ_i .

$$H_i = F_i(x, u) + \lambda_i^T f_i(x, u) \quad (2.50)$$

$$\dot{\lambda}_i = -\frac{\partial H_i}{\partial x^T} \quad (2.51)$$

$$\lambda_i^T(t_f) = \left[\frac{\partial G_i}{\partial x^T} \right]_{t_f} \quad (2.52)$$

L'inclusion des contraintes dans le problème d'optimisation dynamique est réalisée en augmentant le critère initial par chacune des contraintes pondérées.

$$\bar{J} = J_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i J_i \quad (2.53)$$

Le choix du vecteur de coefficients de pondération ν doit naturellement être optimal.

Le développement des variations de \bar{J} provoquées par une variation de $u(t)$ est alors similaire à celui du critère original J . Les variations s'écrivent alors sous la forme :

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} &= \delta J_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \delta J_i \\ &= \left[\left(\frac{\partial G_0}{\partial x^T} - \lambda_0^T + \sum_{i=1}^q \nu_i \left[\frac{\partial G_i}{\partial x^T} - \lambda_i^T \right] \right) \delta x \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] \delta u \, dt \end{aligned} \quad (2.54)$$

On introduit le Hamiltonien H (2.55) le vecteur adjoint λ (2.56) et les conditions terminales $\lambda(t_f)$ définies comme la somme pondérée des variables attachées au critère et de celles associées aux contraintes.

$$H = H_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i H_i \quad (2.55)$$

$$\lambda = \lambda_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \lambda_i \quad (2.56)$$

$$\lambda(t_f) = \lambda_0(t_f) + \sum_{i=1}^q \nu_i \lambda_i(t_f) \quad (2.57)$$

L'utilisation de ces grandeurs globales permet également d'écrire les variations de \bar{J} d'une manière condensée identique à la forme (2.47).

$$\delta \bar{J} = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u \, dt \quad (2.58)$$

Cette forme permet de superposer les contraintes au problème d'optimisation. La résolution du problème consiste à déterminer les conditions aux limites manquantes de ce TPBVP. La résolution peut être abordée, soit d'une manière globale en déterminant le vecteur λ , soit d'une manière individuelle en déterminant le vecteur ν .

Les termes $\partial H_i / \partial u$ traduisent alors l'influence de u sur le critère J_0 et sur les contraintes $J_i, i = 1, q$.

Le système résultant de ces conditions d'optimalité est toujours un TPBVP. Il est composé de n équations d'état dont les n conditions initiales sont connues, de $n(q+1)$ équations différentielles adjointes dont les $n(q+1)$ conditions terminales sont fournies et de $q+1$ coefficients de pondération permettant de définir l'équation algébrique caractérisant la commande optimale u .

Trois applications de ces conditions d'optimalité sont présentées dans l'annexe A pages 226, 227 et 229. La première correspond au problème de minimisation de la consommation d'énergie électrique dans le schéma réactionnel AB . La seconde correspond au problème de maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ sous contrainte de conversion X_A dans le schéma ABD . La troisième application illustre le même cas avec en plus une contrainte d'inégalité (cas de la borne inférieure du potentiel).

Système différentiel paramétré

L'optimisation dynamique d'un système peut aussi impliquer l'optimisation de variables qui ne sont pas des fonctions du temps. Ce type d'optimisation met en jeu l'optimisation *statique* et *dynamique*. Il est toutefois possible de les réaliser conjointement en considérant les variations d'un critère provoquées par des perturbations de la variable de commande et par des perturbations des paramètres du système (Chen et Hwang, 1990).

La forme générale (2.2) est modifiée pour faire apparaître la présence d'un vecteur de paramètres p dans le système.

$$J[u(t), p] = G[x(t_f), p] + \int_{t_0}^{t_f} F(x, u, p) dt \quad (2.59)$$

Le Hamiltonien H est alors donné par (2.60) et est utilisé pour réécrire le critère J sous la forme (2.61).

$$H(x, \lambda, u, p) = F(x, u, p) + \lambda^T f(x, u, p) \quad (2.60)$$

$$J(x, \lambda, u, p) = G[x(t_f), p] + \int_0^{t_f} [H(x, \lambda, u, p) - \lambda^T f(x, u, p)] \, dt \quad (2.61)$$

Dans les conditions optimales par rapport à $u(t)$, les variations δp du vecteur de paramètres provoquent des variations δJ du critère données par :

$$\delta J = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x - \lambda \right) + \frac{\partial G}{\partial p^T} \delta p \right]_{t_f} + \frac{\partial x_0}{\partial p} \lambda(0) \delta p + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial p} \delta p dt \quad (2.62)$$

Les simplifications sont les mêmes que dans le cas précédent à l'exception du terme $\partial x_0 / \partial p \lambda(0) \delta p$ qui provient de l'éventuelle influence de p sur les conditions initiales ($\delta x_0 \neq 0$).

Le cas le plus fréquemment rencontré dans ce type de problème est naturellement le problème de commande en temps optimal. Le paramètre à optimiser est alors $p = t_f$ et le critère $G[p] = t_f$. Dans ce cas, le paramètre t_f n'intervient pas sur les conditions initiales. L'application des résultats précédents conduit aux variations données par (2.63).

$$dJ = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda \right) dx + \left(\frac{\partial G}{\partial t_f} - H \right) dt_f \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt \quad (2.63)$$

Les conditions d'optimalité relatives au temps optimal correspondent à l'unicité de la valeur de la fonction H à l'instant final. H doit, par ailleurs, être optimal et lorsque le système hamiltonien est satisfait, il est constant le long de la trajectoire optimale. Cette condition correspond donc à $\mathcal{M} = 1$, avec \mathcal{M} , le maximum de la fonction H .

À la résolution du problème de commande optimal, s'ajoute ainsi la détermination des paramètres optimaux qui annulent les variations de J dépendant de p .

L'exemple de la minimisation du temps pour atteindre une sélectivité donnée illustre ce cas en annexe A page 230.

Système algébro-différentiel

La commande optimale n'implique pas systématiquement des modèles purement différentiels (Chen et Hwang, 1990). De nombreux procédés sont en effet représentés par un système d'équations algébro-différentiel du type :

$$\dot{x} = f(x, y, u) \quad x(0) = x_0 \quad (2.64)$$

$$0 = g(x, y, u) \quad (2.65)$$

où y est le vecteur des variables algébriques.

La contrainte algébrique est traitée de la même manière que la contrainte différentielle. On introduit un vecteur adjoint ψ associé aux contraintes algébriques et le Hamiltonien H devient :

$$H(x, y, \lambda, \psi, u) = F(x, y, u) + \lambda^T f(x, y, u) + \psi^T g(x, y, u) \quad (2.66)$$

Comme précédemment, la relation (2.66) est utilisée pour réécrire le critère J sous la forme :

$$J(x, y, \lambda, \psi, u) = G[x, y]_{t_f} + \int_0^{t_f} \left[H(x, y, \lambda, \psi, u) - \lambda^T f(x, y, u) - \psi^T g(x, y, u) \right] dt \quad (2.67)$$

La perturbation de $u(t)$ conduit à une perturbation de J donnée par la relation :

$$\begin{aligned} \delta J = & \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial G}{\partial y^T} \delta y \right)_{t_f} \\ & + \int_0^{t_f} \left(-\delta \lambda^T f - \lambda^T \delta f - \delta \psi^T g - \psi^T \delta g \right) dt \\ & + \int_0^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial H}{\partial y^T} \delta y + \frac{\partial H}{\partial \lambda^T} \delta \lambda + \frac{\partial H}{\partial \psi^T} \delta \psi + \frac{\partial H}{\partial u} \delta u \right) dt \end{aligned} \quad (2.68)$$

En utilisant l'égalité $\delta f = \delta \dot{x}$:

$$\begin{aligned} \delta J = & \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial G}{\partial y^T} \delta y \right)_{t_f} \\ & + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt + \int_0^{t_f} \left[\delta \lambda^T \left(\frac{\partial H}{\partial \lambda^T} - f \right) \right] dt + \int_0^{t_f} \left[\delta \psi^T \left(\frac{\partial H}{\partial \psi^T} - g \right) \right] dt \\ & + \int_0^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial x^T} \delta x - \lambda^T \delta \dot{x} \right) dt + \int_0^{t_f} \left(\frac{\partial H}{\partial y^T} \delta y - \psi^T \delta g \right) dt \end{aligned} \quad (2.69)$$

En posant comme précédemment $\frac{\partial H}{\partial x^T} = -\dot{\lambda}$ et $\frac{\partial H}{\partial y^T} = 0$ et comme $\left(\frac{\partial H}{\partial \psi^T} - g \right)$ et δg sont nuls :

$$\delta J = \left(\frac{\partial G}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial G}{\partial y^T} \delta y \right)_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt - \left(\lambda^T \delta x \right)_{t_f} + \left(\lambda^T \delta x \right)_0 \quad (2.70)$$

Les conditions initiales de l'état étant fixées, $\delta x_0 = 0$.

$$\delta J = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x + \frac{\partial G}{\partial y^T} \delta y \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt \quad (2.71)$$

Les variations de y peuvent être exprimées en termes de variations de x et u d'après $g = 0$:

$$\begin{aligned} \delta g = & \frac{\partial g}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial g}{\partial y^T} \delta y + \frac{\partial g}{\partial u} \delta u = 0 \\ \Rightarrow \delta y = & - \left(\frac{\partial g}{\partial y^T} \right)^{-1} \left[\frac{\partial g}{\partial x^T} \delta x + \frac{\partial g}{\partial u} \delta u \right] \quad \text{à condition que } \frac{\partial g}{\partial y^T} \neq 0 \end{aligned} \quad (2.72)$$

La condition $\partial g / \partial y \neq 0$ traduit dans la formulation, la nécessité que le Jacobien du système algébrique soit non nul c'est-à-dire que le système algèbro-différentiel doit être d'index 1. Si le système $g(x, y, u) = 0$ ne conduit pas à une solution y , il faut recourir à une réduction d'index en dérivant le système.

Les variations de J sont ainsi données par :

$$\begin{aligned} \delta J = & \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \frac{\partial G}{\partial y^T} \left(\frac{\partial g}{\partial y^T} \right)^{-1} \frac{\partial g}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} \\ & - \left[\frac{\partial G}{\partial y^T} \left(\frac{\partial g}{\partial y^T} \right)^{-1} \frac{\partial g}{\partial u} \right] \delta u_{t_f} \\ & + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u \, dt \end{aligned} \quad (2.73)$$

Les conditions d'optimalité d'un système algèbro-différentiel sont donc plus complexes que celles du système purement différentiel. Les principales caractéristiques sont :

- L'analogie avec les conditions d'optimalité d'un système purement différentiel. À chaque variable d'état correspond une variable adjointe différentielle. De même, les variables adjointes ψ des variables algébriques y sont elles aussi algébriques.
- Les conditions terminales des variables adjointes différentielles sont corrigées par un terme qui met en jeu la contrainte algébrique.
- Le terme intégral $\partial H/\partial u$ est augmenté d'un terme qui lui aussi met en jeu la contrainte algébrique.

La résolution de ce système ne diffère pas beaucoup de celle du système purement différentiel. Les conditions d'optimalité présentent des coefficients de correction et la résolution tant de l'état que des variables adjointes est augmentée d'un système algébrique.

Une première application de ces conditions est présentée en utilisant la formulation du problème ABD-RDTE de la page 49. Cette formulation est cependant artificielle et ne représente pas exactement un système réellement algèbro-différentiel.

Ces développements des conditions d'optimalité ont également été validés dans le cas d'un système biochimique dont les résultats font souvent référence (Fishman et Biryukov, 1974; Chen et Hwang, 1990; Luus, 1993a; Fu et Barford, 1974; Hartig et al., 1995)

2.2 Procédures de résolution des problèmes d'optimisation dynamique

Les différentes formes des conditions d'optimalité ont été présentées dans la section précédente. Le Principe du Maximum conduit généralement à un TPBVP non-linéaire (état et adjoint) couplé à des équations algébriques (u optimale). La difficulté de l'optimisation dynamique dans cette approche est principalement liée à la résolution de ce type de problème. Les origines de ces difficultés résident principalement dans les trois caractéristiques suivantes du système à résoudre :

- les équations sont *non-linéaires*
- le système est *différentiel* (voire *algébro-différentiel*)
- les *conditions aux limites* sont *partagées* (TPBVP).

La non-linéarité des systèmes considérés est un aspect important des problèmes d'optimisation étudiés. En effet, les développements de la théorie des systèmes linéaires sont déjà très anciens mais l'intérêt de la communauté scientifique envers les systèmes non-linéaires est beaucoup plus récent.

De plus, la forme des systèmes non-linéaires rencontrés dans les publications de commande et de Génie des Procédés est souvent du type (2.74). Le procédé étant souvent commandé au moyen de variables représentant des flux (débits de fluide caloporteur, d'alimentation, taux de reflux, ...).

$$\dot{x} = f(x) + g(x) u \quad (2.74)$$

Dans le cadre des systèmes électrochimiques, on utilise une forme du système plus générale (2.75).

$$\dot{x} = f(x, u) \quad (2.75)$$

Les études consacrées aux systèmes de cette forme ne sont plus rares à la fin des années 90 mais elles restent cependant récentes et trop peu nombreuses malgré la variété des procédés qui correspondent à cette description.

Un des problèmes majeurs qu'engendre la résolution du Principe du Maximum provient de l'intégration des équations différentielles du système.

D'une part, l'intégration des équations d'état et des équations adjointes à l'encontre de leur conditions aux limites naturelles est une cause d'instabilité (Ray et Szekely, 1973). Les équations d'état sont, en effet, stables dans le sens d'intégration direct et les équations adjointes stables dans le sens d'intégration à rebours. Cette instabilité est fréquente même si elle n'est pas systématique. L'expérience montre que cette instabilité dépend de la forme du système considéré.

D'autre part, le temps de calcul consacré à l'intégration des équations différentielles peut représenter jusqu'à 85% du temps de calcul global pour la résolution. L'implantation en ligne de la commande optimale sur des procédés industriels est donc fortement tributaire de cette caractéristique.

Les TPBVP constituent enfin la grande difficulté dans la résolution des problèmes d'optimisation dynamique avec l'approche du Principe du Maximum. Il existe plusieurs techniques qui permettent de les résoudre lorsque le système est linéaire. Ces techniques ne sont cependant plus adaptées lorsque le problème est non-linéaire. On a alors recours à

des techniques itératives dont la convergence n'est pas garantie et est souvent lente. Pour éviter cela, il est courant de recourir à des solutions approximatives du problème original dites sous-optimales ou quasi-optimales.

Le plan de cette section est construit en fonction de la nature des méthodes utilisées pour résoudre les problèmes d'optimisation dynamique. On distingue les méthodes où :

- l'état et la commande sont continus,
- l'état est continu et la commande paramétrée,
- l'état et la commande sont paramétrés.

Ainsi, la suite de cette section est consacrée, dans un premier temps, aux méthodes permettant de résoudre les TPBVP résultant du Principe du Maximum. Puis, les différentes techniques mettant en jeu des solutions optimales approximatives et permettant d'éviter les problèmes précédemment cités, sont présentées.

2.2.1 Forme Continue-Continue

Cette section est consacrée aux différentes techniques qui permettent de résoudre les TPBVP résultant de l'application du Principe du Maximum. Seules deux de ces techniques ont effectivement été utilisées pour la résolution des problèmes d'optimisation des procédés électrochimiques mais la présentation de l'ensemble de ces méthodes met en évidence la grande variété des approches.

Dans toute notre étude, les équations différentielles associées aux solutions continues du problème sont intégrées avec une méthode de type prédicteur-correcteur (*Haming*). L'utilisation d'une méthode à pas fixe n'est pas indispensable mais elle a été préférée. Elle permet en effet de contrôler précisément le déroulement des processus itératifs de résolution. Le choix du nombre de points permet lorsque cela est nécessaire d'ajuster la précision des résultats.

Immersion Invariante

L'approche de l'immersion invariante (Lee, 1968) (en anglais *Invariant Imbedding*) consiste à transformer le système d'équations différentielles ordinaires aux conditions limites partagées en un système d'équations aux dérivées partielles aux conditions initiales. Cette transformation connaît des développements très étendus lorsqu'il s'agit de traiter un système linéaire aux conditions limites partagées mais la démarche peut également s'appliquer à un système d'équations aux dérivées ordinaires (*Ordinary Differential Equations*) non-linéaires. La différence réside dans la complexité de l'équation aux dérivées partielles (*Partial Differential Equations*) à résoudre. Cette technique n'a pas été utilisée pour résoudre les systèmes étudiés et sa description ne sera que succincte.

Pour illustrer l'approche de l'immersion invariante, on considère le TPBVP non-linéaire :

$$\dot{x} = f(x, \lambda, t) \quad (2.76)$$

$$\dot{\lambda} = g(x, \lambda, t) \quad (2.77)$$

avec les conditions limites :

$$x(0) = c \quad (2.78)$$

$$\lambda(t_f) = 0 \quad (2.79)$$

La solution de ce problème peut être représentée par la condition initiale manquante $\lambda(0)$. L'idée consiste à résoudre ce problème en considérant une famille de valeurs initiales a de la variable indépendante t auxquelles on associe une famille de solution du problème (2.76) (2.77) avec les conditions limites (2.80) (2.79).

$$x(a) = c \quad (2.80)$$

Cette famille de conditions initiales manquantes est une fonction de a mais aussi de la valeur de l'état initial c . Elle est notée :

$$\lambda(a) = r(c, a) \quad (2.81)$$

Les développements en série de Taylor des conditions limites $x(a)$ et $\lambda(a)$ suivis de quelques manipulations, conduisent à une équation aux dérivées partielles qui caractérise la fonction r .

$$f(c, r(c, a), a) \frac{\partial r(c, a)}{\partial c} + \frac{\partial r(c, a)}{\partial a} = g(c, r(c, a), a) \quad (2.82)$$

avec la condition limite :

$$r(c, t_f) = 0 \quad (2.83)$$

La solution du TPBVP initial est ainsi obtenue après résolution du problème de condition terminale de l'équation aux dérivées partielles (2.82). Cette solution est d'autant plus intéressante qu'elle fournit la solution exacte $\lambda(0)$ mais aussi toutes les solutions dans un voisinage $r(c, a)$, $a \in [0, t_f]$, $c \in [c - \epsilon, c + \epsilon]$, $\epsilon \in \mathfrak{R}$. L'inconvénient de ce type d'approche réside dans les difficultés qui peuvent être rencontrées lors de la résolution du système d'équations aux dérivées partielles et dans son inadéquation pour les systèmes de grande dimension.

Quasi-linéarisation

La technique de quasi-linéarisation (Lee, 1968) n'a pas été utilisée pour la résolution exacte des problèmes traités. Elle semble, avec le recul, être une voie très attractive qui mérite d'être analysée précisément afin d'en déterminer les avantages et les limites.

La quasi-linéarisation étend la procédure Newton-Raphson des systèmes algébriques aux systèmes différentiels et transforme le TPBVP non-linéaire en une séquence de TPBVP linéaires. Pour illustrer cette méthode, on considère le TPBVP non-linéaire régi par le système ODE :

$$\dot{x} = f(x(t), t) \quad (2.84)$$

avec les conditions initiales et terminales séparées où $n - m$ conditions initiales et m conditions terminales sont spécifiées.

On pose $x_0(t)$, une approximation raisonnable de la solution de ce système ODE. Le terme de droite est développé, autour de $x_0(t)$, en utilisant le développement en séries de Taylor dont les termes d'ordre supérieur ou égal à 2 sont omis.

$$f(x(t), t) = f(x_0(t), t) + (x(t) - x_0(t)) \mathcal{J}(x_0(t)) \quad (2.85)$$

avec $\mathcal{J}(x_0(t))$ le Jacobien \mathcal{J} défini par (2.86) et estimé sur la trajectoire $x_0(t)$.

$$\mathcal{J} = \frac{\partial f}{\partial x} = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial x_1} & \dots & \frac{\partial f_1}{\partial x_n} \\ & \vdots & \\ \frac{\partial f_n}{\partial x_1} & \dots & \frac{\partial f_n}{\partial x_n} \end{pmatrix} \quad (2.86)$$

Le TPBVP non-linéaire initial peut ainsi être approximé par le TPBVP linéaire (2.87) qui peut être résolu par des méthodes plus classiques ("Sweep", superposition, différence finie, ...)

$$\dot{x} = \mathcal{J}(x_0(t)) x(t) + (f(x_0(t), t) - x_0(t) \mathcal{J}(x_0(t))) \quad (2.87)$$

La fonction $x_0(t)$ permet ainsi de déterminer une fonction $x_1(t)$ qui peut à son tour être utilisée comme référence pour un développement de Taylor et conduire à un TPBVP linéaire. La convergence de la série de TPBVP linéaire ainsi engendrée est théoriquement plus complexe à démontrer mais les moyens numériques actuels permettent de mettre en oeuvre rapidement cette méthode et de vérifier par la pratique s'il y a convergence.

Itération sur les conditions limites

Pour résoudre les problèmes aux conditions limites partagées (TPBVP), l'idée la plus immédiate est de chercher les conditions limites manquantes à une extrémité. On utilise ensuite une des procédures d'intégration des problèmes de valeur initiale. Les conditions manquantes ainsi estimées à une extrémité, doivent cependant être en accord avec les conditions spécifiées à l'autre extrémité. On introduit ainsi la fonction d'erreur sur les conditions limites *EBC* (*Error in the Boundary Conditions*):

$$EBC = \sum_{i=1}^r (z_i(t_i) - z_i^*)^2 \quad (2.88)$$

où, r et z_i^* sont: le nombre et la valeur des états (x ou λ) spécifiés à l'extrémité t_i (0 ou t_f).

La résolution consiste alors à minimiser la fonction *EBC* en itérant sur les conditions limites à l'extrémité opposée. Cette méthode est ainsi appelée itération sur les conditions limites (**B**oundary **C**onditions **I**teration). L'algorithme de résolution du TPBVP associé au Principe du Maximum se décompose de la manière suivante:

- (i) fixer la valeur estimée des conditions manquantes,
- (ii) intégrer le système à partir de cette extrémité en résolvant à chaque itération la condition d'optimalité $\partial H / \partial u = 0$,
- (iii) évaluer la fonction *EBC* à l'autre extrémité,
- (iv) retourner à l'étape (i) tant que $EBC \geq \epsilon$.

Une méthode d'optimisation essai-erreur basée sur la recherche directe est utilisée. En effet, compte tenu de la non-linéarité du TPBVP, il est très difficile de prévoir le comportement d'une extrémité par rapport à l'autre. La méthode BCI nécessite donc des temps de calcul très importants.

De plus, la sensibilité de la fonction *EBC* est parfois telle que la valeur d'initialisation de la procédure itérative doit être quasiment la même que la solution finale pour observer le minimum de *EBC*. La précision ϵ nécessaire pour obtenir une solution reproductible est souvent de l'ordre de 10^{-8} .

La convergence de cette technique est, en théorie, un problème majeur car la stabilité de l'intégration numérique n'est *a priori* pas assurée. En effet, l'intégration des équations d'état ou des variables adjointes n'est théoriquement stable que dans le sens respectant leurs conditions aux limites naturelles. Dans cette méthode itérative, au moins la moitié

des équations est intégrée à l'encontre de son sens naturel. L'utilisation de cette technique n'a cependant pas révélé de tels problèmes, le sens physique des équations et des variables d'état et l'intuition, permettant de réduire le domaine de recherche de la solution. Certaines adaptations spécifiques au problème traité permettent ainsi de garantir une convergence quasi-systématique.

Les propriétés numériques de cette technique sont présentées en détail dans le chapitre (3) à partir de la page 89.

Itération sur le vecteur de commande

La procédure BCI consiste à déterminer les conditions limites du TPBVP en résolvant à chaque instant, la condition d'optimalité $\partial H/\partial u = 0$. Cette résolution est cependant très coûteuse en temps de calcul puisqu'elle intervient à l'intérieur même du processus d'intégration numérique des équations différentielles. De plus, l'initialisation des conditions limites manquantes est difficile.

Une autre approche consiste à l'inverse à imposer un profil de commande pour pouvoir intégrer les équations d'état et adjointes dans leur sens respectif et à partir de leurs conditions limites optimales. Une procédure qui corrige ce profil de commande est ensuite mise en oeuvre de telle sorte que ce dernier satisfasse la condition d'optimalité du Hamiltonien H par rapport à la commande $u(t)$. Cette procédure d'itération sur le vecteur de commande (en anglais, **Control Vecteur Iteration**) dépend de la nature de la correction qui est appliquée sur la solution intermédiaire $u(t)$. La présentation de cette technique est divisée en trois parties. La première partie correspond au cas le plus simple et permet d'illustrer clairement le principe de base de la correction dans cette procédure. La seconde partie montre comment sont traités les problèmes avec contraintes et enfin, la troisième partie présente la procédure à adopter lorsque le temps final est libre.

Algorithmes CVI Optimisation sans contrainte

La procédure CVI est basée sur l'expression des variations du critère δJ en présence de variations du profil de la commande δu autour d'une trajectoire $u(t)$ estimée. Ces variations sont données par (2.47) et rappelées ici :

$$\delta J = \left[\left(\frac{\partial G}{\partial x^T} - \lambda^T \right) \delta x \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt$$

Lorsque les équations adjointes sont résolues à partir des conditions terminales $\lambda(t_f)$ qui satisfont :

$$\lambda^T(t_f) = \left[\frac{\partial G}{\partial x^T} \right]_{t_f} \quad (2.89)$$

les variations du critère sont données par le terme :

$$\delta J = \int_0^{t_f} \frac{\partial H}{\partial u} \delta u dt \quad (2.90)$$

Lorsqu'un minimum (resp. maximum) de J est recherché, la correction δJ à chaque itération doit être négative (resp. positive). La fonction $\delta u(t)$ qui permet de réduire J doit être choisie de telle sorte que le terme intégral soit négatif (resp. positif). La forme évidente pour satisfaire cette condition est :

$$\delta u(t) = -w^{-1} \frac{\partial H}{\partial u} ; \quad w > 0 \quad (2.91)$$

Les variations sont alors données par :

$$\delta J = - \int_0^{t_f} w^{-1} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right]^2 dt \quad (2.92)$$

L'algorithme de la procédure CVI est le suivant :

- (i) fixer un profil de commande $u^0(t)$ représentant la solution approximative du problème.
- (ii) intégrer les équations d'état de $t = 0$ à $t = t_f$, à partir des conditions x_0
- (iii) intégrer les équations adjointes de $t = t_f$ à $t = 0$, à partir des conditions λ_f
- (iv) évaluer la fonction $\partial H / \partial u$ et appliquer la correction correspondante $\delta u(t)$:

$$u^{n+1}(t) = u^n(t) + \delta u(t) \quad (2.93)$$

- (v) évaluer δJ et retourner à l'étape (ii) jusqu'à ce que $\delta J < \epsilon$.

Les corrections de la commande sont ainsi réalisées à l'extérieur des processus d'intégration numérique et la vitesse de convergence de cette technique en est fortement améliorée.

Lorsque la procédure itérative a convergé, toutes les conditions du Principe du Maximum sont satisfaites. À la différence de la procédure BCI, les solutions intermédiaires ne sont cependant pas optimales. La non-optimalité des solutions intermédiaires impose néanmoins une précision ϵ "suffisamment" grande pour que la procédure s'arrête lorsque la solution est "suffisamment" optimale.

L'initialisation du profil de commande $u^0(t)$ est arbitraire. Il est cependant courant d'initialiser ce profil par un profil uniforme souvent au milieu du domaine faisable. Les qualités de convergence de la procédure CVI conduisent rapidement à la solution optimale. La valeur de u^0 doit naturellement être choisie dans un domaine où le modèle est stable mais elle peut toutefois être choisie hors du domaine faisable sans que cela ne pose de problèmes de convergence. D'une manière générale, plus les réglages des autres paramètres de la procédure sont approximatifs, plus le profil initial $u(t)$ doit être proche de l'optimum.

Le choix du facteur w permet de régler la vitesse de convergence de la méthode en exploitant plus ou moins l'écart à l'optimum que quantifie la dérivée partielle $\partial H / \partial u$. Ce choix peut être fait en comparant les écarts δJ prédits par (2.90) et observés. Si l'écart est trop important, la pondération w doit être augmentée et réduite dans le cas contraire. Ce facteur de pondération w est volontairement maintenu sous le signe intégrale des expressions. En effet, la seule condition qui lui est attachée est $w > 0$. Le choix d'un facteur constant positif permet de garantir cette condition mais il est également possible d'utiliser une fonction de pondération. La forme de cette fonction est alors difficile à déterminer. On montre cependant que l'utilisation de la fonction de pondération :

$$w(t) = \epsilon_u \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right] \quad 0 < \epsilon_u \leq 1 \quad (2.94)$$

sous réserve que cette dérivée seconde soit strictement positive, améliore notablement la convergence de la procédure. Afin de se soustraire à la distinction entre Principe du Maximum et Principe du Minimum, la valeur absolue de la dérivée seconde est utilisée et

la condition de positivité est ainsi satisfaite. Le choix du coefficient de proportionnalité ϵ_u suit les mêmes règles que celui de la pondération w lorsque celle-ci est uniforme.

Optimisation sous contrainte

La même technique peut être adoptée pour résoudre les TPBVP résultant de l'application du Principe du Maximum à un système avec contrainte. La procédure est similaire mais elle est appliquée au critère augmenté par les contraintes (2.53). Elle consiste à construire une série de profils $u(t)$ et de vecteurs ν qui réduisent à chaque itération, le critère augmenté \bar{J} .

Les variations du profil de la commande δu autour d'une trajectoire $u(t)$ se traduisent par des variations du critère δJ données par (2.54) et rappelées ci-dessous.

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} &= \delta J_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \delta J_i \\ &= \left[\left(\frac{\partial G_0}{\partial x^T} - \lambda_0^T + \sum_{i=1}^q \nu_i \left[\frac{\partial G_i}{\partial x^T} - \lambda_i^T \right] \right) \delta x \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] \delta u \, dt \end{aligned}$$

Le profil de $u(t)$ peut être utilisé pour intégrer les équations adjointes à partir des conditions qui annulent le terme *terminal* de $\delta \bar{J}$. Les variations sont alors exprimées par le terme intégral de la relation (2.54).

Comme précédemment, on cherche à construire une série de profils de commande qui réduisent J_0 (*i.e.* $\delta J_0 \leq 0$) et satisfont les contraintes J_i . En choisissant la correction $\delta u(t)$ telle que :

$$\delta u(t) = -w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right]; \quad w > 0 \quad (2.95)$$

Les variations de \bar{J} sont négatives sauf si le terme intégral s'annule.

Le vecteur ν est choisi de telle sorte que chaque contrainte J_i , $i = 1, q$ soit satisfaite, c'est à dire :

$$0 = \delta J_i = - \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial u} w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] dt \quad (2.96)$$

Le vecteur ν qui satisfait cette égalité est donc $\nu = -Q^{-1} g$ avec la matrice Q et le vecteur g définis par :

$$\begin{aligned} Q &= \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial u} w^{-1} \frac{\partial H_i}{\partial u} dt & i = 1, \dots, q \\ g &= \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial u} w^{-1} \frac{\partial H_0}{\partial u} dt & i = 1, \dots, q \end{aligned} \quad (2.97)$$

L'existence de l'inverse de la matrice Q est appelée *condition de commandabilité*. Si Q^{-1} n'existe pas, cela signifie, en effet, qu'il n'est pas possible de satisfaire une des contraintes imposées (Bryson et Ho, 1975).

La procédure itérative pour résoudre les TPBVP résultant de l'optimisation des systèmes avec contraintes se résume par l'algorithme :

- (i) fixer un profil de commande $u^0(t)$ représentant la solution approximative du problème.
- (ii) intégrer les équations d'état de $t = 0$ à $t = t_f$, à partir des conditions x_0
- (iii) intégrer les équations adjointes de $t = t_f$ à $t = 0$, à partir des conditions λ_f

(iv) évaluer le scalaire I_{JJ} , le vecteur $I_{\phi J} \in \mathbb{R}^q$ et la matrice symétrique $I_{\phi\phi} \in \mathbb{R}^{q \times q}$:

$$I_{JJ} = \int_0^{t_f} w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} \right]^2 dt \quad (2.98)$$

$$I_{\phi J} = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_i}{\partial u} w^{-1} \frac{\partial H_0}{\partial u} \right] dt \quad (2.99)$$

$$I_{\phi\phi} = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_i}{\partial u} w^{-1} \frac{\partial H_j}{\partial u} \right] dt \quad (2.100)$$

choisir la correction nécessaire sur les contraintes δJ_i pour que la solution $u(t)$ converge vers $J_i = 0$. Par exemple :

$$\delta J_i = \epsilon_\phi J_i \quad 0 < \epsilon_\phi \leq 1 \quad (2.101)$$

évaluer le vecteur ν à partir de :

$$\nu = -I_{\phi\phi}^{-1} [\delta J_i + I_{\phi J}] \quad (2.102)$$

calculer la correction $\delta u(t)$ du profil avec :

$$\delta u(t) = -w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] \quad (2.103)$$

(v) appliquer la correction correspondante $\delta u(t)$:

$$u^{n+1}(t) = u^n(t) + \delta u(t) \quad (2.104)$$

(vi) retourner à l'étape (ii) jusqu'à convergence c'est à dire

$$\begin{aligned} J_i &\leq \epsilon \\ I_{JJ} - I_{J\phi} I_{\phi\phi}^{-1} I_{\phi J} &\leq \epsilon \end{aligned} \quad (2.105)$$

Comme dans le cas sans contrainte, il est possible d'utiliser une fonction de pondération $w(t)$. Elle est également construite à partir de la dérivée seconde du Hamiltonien. Mais dans ce cas, il faut utiliser le Hamiltonien global du système :

$$w(t) = \epsilon_u \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right] = \epsilon_u \left[\frac{\partial^2 H_0}{\partial u^2} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial^2 H_i}{\partial u^2} \right] \quad 0 < \epsilon_u \leq 1 \quad (2.106)$$

Au cours du processus itératif, il y a compétition entre minimisation du critère et satisfaction des contraintes. Cette compétition est illustrée par le schéma 2.1 qui montre les directions qui minimisent J (segment OA) et celles qui satisfont la contrainte (segment OB). Le facteur de proportionnalité ϵ_ϕ permet de choisir une direction intermédiaire (segment OC) qui est un compromis entre les deux problèmes. Les valeurs faibles conduisent le processus itératif à favoriser la minimisation du critère en se préoccupant peu des contraintes non satisfaites. À l'inverse, un facteur élevé conduit à chercher des solutions intermédiaires qui satisfont plus rapidement les contraintes. Ce paramètre conduit à la

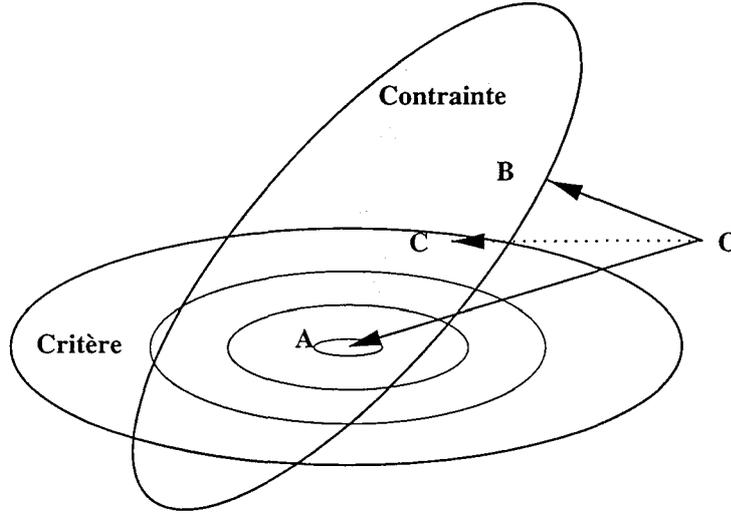


Figure 2.1: Direction optimale.

même solution optimale mais il permet en quelque sorte de choisir le chemin préférentiel qui mène à cette solution.

Optimisation à temps final libre

La procédure de résolution des problèmes à temps final libre est établie à partir de l'expression (2.63) des variations du critère d'un système paramétré. La démarche est identique à la précédente à l'exception du fait qu'il s'agit de déterminer maintenant la fonction $u(t)$ et le paramètre t_f qui minimisent le critère, *i.e.* provoquent des variations négatives à chaque itération. Les variations du critère J_0 et des contraintes J_i sont données par l'équation (2.63) qui est rappelée ici :

$$dJ_i = \left[\left(\frac{\partial G_i}{\partial t} + H_i \right) dt_f \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial u} \delta u dt \quad (2.63)$$

Les conditions adjointes terminales sont volontairement omises car un des avantages de la procédure CVI est d'intégrer les équations adjointes à partir de leurs conditions terminales optimales.

L'adjonction des contraintes au critère permet de déduire les corrections de $u(t)$ et de t_f qui vérifient $\delta \bar{J} = \delta J_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i J_i \leq 0$. Cette démarche conduit à :

$$\delta u(t) = -w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] \quad (2.107)$$

$$dt_f = -b^{-1} \left[\frac{\partial G_0}{\partial t} + H_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \left(\frac{\partial G_i}{\partial t} + H_i \right) \right]_{t_f} \quad (2.108)$$

Comme précédemment, les coefficients ν_i sont choisis pour satisfaire les contraintes :

$$\nu = - \left[Q + \frac{1}{b} S \right]^{-1} \left[g + \frac{1}{b} r \right] \quad (2.109)$$

avec Q et g définis par (2.97) et la matrice S , le vecteur r donnés par :

$$\begin{aligned} S_{ij} &= \left[\left(\frac{\partial G_i}{\partial t} + H_i \right) \left(\frac{\partial G_j^T}{\partial t} + H_j \right) \right]_{t_f} \\ r_i &= \left[\left(\frac{\partial G_i}{\partial t} + H_i \right) \left(\frac{\partial G_0}{\partial t} + H_0 \right) \right]_{t_f} \end{aligned} \quad (2.110)$$

avec $i, j = 1, \dots, q$.

La définition des variables adjointes et de leurs conditions limites permettent de transformer l'écriture du terme $(\partial G_i / \partial t + H_i)$ à t_f :

$$\begin{aligned} \left[\frac{\partial G_i}{\partial t} + H_i \right]_{t_f} &= \frac{\partial G_i}{\partial t} + (\lambda_{f_i} f + F_i) \\ &= \frac{\partial G_i}{\partial t} + \frac{\partial G_i}{\partial \mathbf{x}^T} \frac{d\mathbf{x}}{dt} + F_i \\ &= \frac{dG_i}{dt} + F_i \end{aligned} \quad (2.111)$$

où F est le terme sous l'intégrale dans la formulation initiale. Dans le cas présent, on ne considère que des problèmes sous contrainte terminale d'égalité *i.e.* les contraintes s'écrivent sous leur forme canonique avec les fonctions $G[\mathbf{x}(t_f), t_f] = \phi[\mathbf{x}(t_f), t_f]$ et $F_i(\mathbf{x}, u) = 0$.

La procédure itérative pour résoudre les TPBVP résultant de l'optimisation des systèmes avec contraintes est décrite par l'algorithme suivant :

- (i) fixer un profil de commande $u^n(t)$ et un temps final t_f^n ($n = 0$).
- (ii) intégrer les équations d'état de $t = 0$ à $t = t_f^n$, à partir des conditions \mathbf{x}_0
- (iii) intégrer les équations adjointes de $t = t_f^n$ à $t = 0$, à partir des conditions λ_f
- (iv) évaluer le scalaire I_{JJ} , le vecteur $I_{\phi J} \in \mathbb{R}^q$ et la matrice symétrique $I_{\phi\phi} \in \mathbb{R}^{q \times q}$.

choisir la correction nécessaire sur les contraintes dJ_i pour que la solution $u(t)$ converge vers $J_i = 0$. Par exemple :

$$dJ_i = \epsilon_\phi J_i \quad 0 < \epsilon_\phi \leq 1 \quad (2.112)$$

évaluer le coefficient ν à partir de :

$$\nu = - \left[I_{\phi\phi} + \frac{1}{b} \frac{dG_i}{dt} \frac{dG_i^T}{dt} \right]^{-1} \left[dJ_i + I_{\phi J} + \frac{1}{b} \left(\frac{\partial G_0}{\partial t} + H_0 \right) \frac{dG_i}{dt} \right] \quad (2.113)$$

calculer les corrections $\delta u(t)$ et dt_f :

$$\delta u(t) = -w^{-1} \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{\partial H_i}{\partial u} \right] \quad (2.114)$$

$$dt_f = -b^{-1} \left[\frac{\partial G_0}{\partial t} + H_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{dG_i}{dt} \right]_{t_f} \quad (2.115)$$

(v) appliquer ces corrections :

$$u^{n+1}(t) = u^n(t) + \delta u(t) \quad (2.116)$$

$$t_f^{n+1} = t_f^n + dt_f \quad (2.117)$$

(vi) retourner à l'étape (ii) jusqu'à convergence, c'est à dire :

$$\begin{aligned} J_i &\leq \epsilon \\ \left[\frac{\partial G_0}{\partial t} + H_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \frac{dG_i}{dt} \right]_{t_f} &\leq \epsilon \\ I_{JJ} - I_{J\phi} I_{\phi\phi}^{-1} I_{\phi J} &\leq \epsilon \end{aligned} \quad (2.118)$$

Le choix du facteur de pondération b est similaire à celui de la pondération w . Si l'écart entre le δJ observé et prédit est trop important, les pondérations w et b doivent être augmentées (réduites dans le cas contraire).

Ces trois formes de la procédure CVI ont été utilisées pour résoudre les problèmes de maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ sous contrainte de conversion dans le schéma ABD et de minimisation du temps pour le même système. Les propriétés de la procédure et l'importance des différents paramètres de réglage sont discutées à partir de la page 100.

La résolution du Principe du Maximum dans sa forme continue ne permet pas de prendre en compte d'une manière simple, la variété des problèmes rencontrés en Génie des Procédés. Il est plus souvent fait appel à des méthodes où les variables sont utilisées dans une forme approximée (par des fonctions splines ou polynomiales). Le problème d'optimisation dynamique est alors transformé en problème de programmation non-linéaire. Compte tenu de sa qualité, l'information fournie par le Principe de Maximum est tout de même exploitée mais sous une forme différente. Les sections suivantes présentent certaines des méthodes de résolution des problèmes d'optimisation dynamique paramétrés.

2.2.2 Forme Continue-Paramétrée

Introduction

La résolution des problèmes d'optimisation dynamique dans leur forme continue est tout à fait réalisable même dans un contexte de commande en boucle fermée. La limitation du Principe du Maximum à résoudre les problèmes sous contraintes est cependant une lacune majeure. Il existe en effet peu de procédés qui ne soient soumis à de telles contraintes.

Les contraintes ont toujours été une source de difficulté dans les problèmes d'optimisation dynamique mais aussi dans les problèmes d'optimisation classique ou de programmation non-linéaire. Nombre de ces difficultés ont été contournées grâce aux nombreuses études réalisées tant dans le cadre des systèmes linéaires d'abord, que dans celui des systèmes non-linéaires ensuite. Il existe maintenant de nombreuses techniques fiables et rapides, pour résoudre certaines classes de problèmes d'optimisation sous contraintes.

L'idée de convertir les problèmes d'optimisation dynamique en problèmes de programmation non-linéaire vient ainsi naturellement. Cette idée a d'ailleurs été appliquée avec succès dans de nombreux cas (Goh et Teo, 1988; Chen et Hwang, 1990; Fikar et al., 1998). Cette conversion est réalisée en approximant les profils des variables du système par des

formes paramétrées plus ou moins complexes (constantes par morceau, linéaires par morceau, polynomiales, ...). Le choix des variables paramétrées (état et/ou commande) et la complexité de l'approximation caractérisent alors cette paramétrisation. La solution du problème paramétré est plus ou moins proche de la solution optimale continue et on parle alors de solution *presque optimale* ou *quasi-optimale*.

Dans cette sous-section, seule la variable de commande du système est paramétrée. La procédure est ainsi appelée paramétrisation du vecteur de commande (en anglais **Control Vector Parametrisation**). Les équations d'état sont résolues par intégration numérique. L'optimisation dynamique est transformée en optimisation des paramètres qui caractérisent l'approximation de la commande.

Dans la section suivante, la commande et l'état seront paramétrés par des formes polynomiales (polynôme de Lagrange). Le problème d'optimisation et le sous problème d'intégration numérique sont tous deux transformés en un problème de programmation non-linéaire sous contraintes.

La méthode choisie pour résoudre le problème d'optimisation non-linéaire sous contrainte est la programmation quadratique successive ou séquentielle (**Successive Quadratic Programming**). La technique de programmation quadratique séquentielle est une méthode mise au point dans les années 70 par Han (1976, 1977) et Powell (1978b,a) sur la base des travaux de Wilson (1963). Elle consiste à approximer le problème d'optimisation non-linéaire sous contraintes par un problème d'optimisation quadratique sous contraintes linéaires. Une brève description de cette méthode qui est utilisée dans notre étude comme un outil est présentée en annexe B. Sa conception est cependant intéressante dans la mesure où elle introduit des variables qui correspondent à celles du Principe du Maximum.

Le programme NLPQL est utilisé pour résoudre tous nos problèmes d'optimisation non-linéaire sous contraintes. Le code NLPQL utilise également des variables auxiliaires et une stratégie d'*ensemble actif* pour les contraintes (gère uniquement les contraintes actives) afin d'améliorer les propriétés de convergence et de réduire le temps de résolution (Schittkowski, 1983).

La méthode SQP est basée sur l'estimation du Hessien de la fonction lagrangienne du problème (B.1). Cette estimation est elle-même construite à partir des gradients du critère f et des contraintes g de ce problème par rapport aux vecteurs de paramètres \boldsymbol{x} . Le code NLPQL dispose d'un algorithme d'estimation des gradients par différence finie. L'utilisation de cette différence finie augmente cependant de manière importante le temps de calcul et n'est pas toujours suffisamment précise pour obtenir la convergence de la solution du sous-problème (B.3) vers la solution du problème (B.1). Les plus grands avantages peuvent être tirés de cette méthode lorsque les gradients sont calculés analytiquement. Dans nos études, les problèmes soumis à NLPQL seront systématiquement associés à un calcul analytique de ces gradients.

Le code NLPQL a été testé sur une grande gamme de problèmes d'optimisation où il a prouvé sa capacité à résoudre de nombreux problèmes en un nombre d'itérations très avantageux (Schittkowski, 1983).

Paramétrisation du vecteur de commande (CVP)

Dans cette section, on considère un problème d'optimisation général du type :

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t), \mathbf{p}} J &= G[\mathbf{x}(t_f), \mathbf{p}] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) dt \\
 \text{soumis à : } \quad \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, \mathbf{y}, u, \mathbf{p}) \\
 0 &= g(\mathbf{x}, \mathbf{y}, u, \mathbf{p}) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 \Phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}, u, \mathbf{p}) &= 0 \quad i = 1, m_e \\
 \Phi_j(\mathbf{x}, \mathbf{y}, u, \mathbf{p}) &\geq 0 \quad j = m_e + 1, m \\
 u(t) - u_{\min} &\geq 0 \\
 u_{\max} - u(t) &\geq 0
 \end{aligned} \tag{2.119}$$

Pour la transformation de ce problème d'optimisation dynamique en problème d'optimisation non-linéaire, seule la variable de commande $u(t)$ est approximée. On peut utiliser un très grand nombre de formes pour cette approximation. Un des critères de choix déterminant est le nombre de paramètres qui caractérisent la forme approximative. Il faut en effet le limiter car il correspond au nombre de paramètres impliqués dans la résolution du problème de programmation non-linéaire. Les résolutions des problèmes d'optimisation dynamique par paramétrisation de la commande sont par ailleurs très fréquents. La pratique a ainsi montré que les formes approximatives les plus simples conduisent à des valeurs optimales du critère équivalentes à celles obtenues par la résolution exacte. Notre étude porte sur la résolution des problèmes où la commande est approximée par des fonctions spline d'ordre 0 c'est à dire constante par morceau (*piecewise constant functions*).

Remarque: Cette approche inclut également toutes les procédures de programmation dynamique itérative puisque ces dernières sont basées sur des profils de commande constants par morceau. La procédure de résolution par IDP n'est cependant pas décrite dans cette section car la procédure CVP utilisée est basée sur des concepts (PMP) qui sont fondamentalement différents de ceux utilisés dans l'IDP.

On partitionne l'intervalle $[0; t_f]$ en segments $I_i, i = 1, N$ tels que $I_i = [t_{i-1}, t_i[$ et $0 < t_1 < t_2 < \dots < t_N = t_f$. Pour cette partition, on définit ainsi la classe des commandes admissibles \mathcal{U} par :

$$\mathcal{U} = \left\{ u(t) \text{ tels que } u(t) = \sum_{j=1}^N u_j \chi_j(t), t \in [0, t_f], u_{\min} \leq u_i \leq u_{\max} \right\} \tag{2.120}$$

avec χ_i définie par :

$$\chi_i(t) = \begin{cases} 1 & t \in I_i \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \tag{2.121}$$

Le profil de la variable de commande est complètement caractérisé par la partition I et par le vecteur de paramètres $\mathbf{v}^T = (u_1 \ u_2 \ \dots \ u_N)$. La résolution du problème (2.119) en se limitant à cette classe de commande admissible conduit au problème d'optimisation

approximé qui consiste à déterminer les vecteurs de paramètres \mathbf{v}^T et \mathbf{p} tels que :

$$\begin{aligned}
 \min_{\mathbf{v}, \mathbf{p}} J &= G[\mathbf{x}(t_f), \mathbf{p}] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, \mathbf{v}, \mathbf{p}) dt \\
 \text{soumis à : } \quad \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{v}, \mathbf{p}) \\
 0 &= g(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{v}, \mathbf{p}) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 \Phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{v}, \mathbf{p}) &= 0 \quad i = 1, m_e \\
 \Phi_j(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{v}, \mathbf{p}) &\geq 0 \quad j = m_e + 1, m \\
 u_i - u_{min} &\geq 0 \quad i = 1, N \\
 u_{max} - u_i &\geq 0 \quad i = 1, N
 \end{aligned} \tag{2.122}$$

Ce problème est résolu à l'aide de la méthode SQP décrite dans l'annexe B à la page 233. Les avantages de l'algorithme lorsque les gradients des fonctions impliquées sont calculés analytiquement ont déjà été mentionnés. Le paragraphe suivant montre comment les variables adjointes et le Hamiltonien peuvent être utilisés pour évaluer ces gradients. Le développement des variations du critère J provoquées par des variations de la commande et des paramètres du système a été donné pour expliquer les relations du Principe du Maximum et l'introduction du Hamiltonien et des variables adjointes. Une forme canonique des contraintes ϕ_i du problème (également notée J_i) a été introduite pour pouvoir appliquer ces développements au critère J_0 et aux contraintes J_i , $i = 1, m$.

Les variations précédemment citées peuvent être reliées aux gradients correspondants par la relation :

$$\nabla_x f = \frac{\partial f}{\partial x} \approx \frac{\delta f}{\delta x} \tag{2.123}$$

Ainsi, à partir des relations (2.47), (2.54), (2.73), on peut déduire l'expression des gradients du critère et des contraintes par rapport à la variable de commande $u(t)$:

$$\nabla_{u(t)} J_i = - \left[\frac{\partial G}{\partial \mathbf{y}^T} \left(\frac{\partial g}{\partial \mathbf{y}^T} \right)^{-1} \frac{\partial g}{\partial u} \right]_{t_f} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial u} d\tau \tag{2.124}$$

On se dégage du terme relatif aux conditions terminales adjointes dans δJ en intégrant les équations adjointes à partir de leurs conditions optimales.

Dans le cas de la commande paramétrée, l'influence d'un des éléments u_j du vecteur \mathbf{v} sur un critère J_i est limitée à l'intervalle I_j . En d'autres termes, le Hamiltonien H_i et les fonctions G et g ne dépendent de ce paramètre qu'à l'intérieur de l'intervalle I_j . Notamment, le terme terminal du gradient ne dépend que du dernier paramètre u_N . Ainsi, le gradient de ce critère par rapport à ces paramètres est donné par :

$$\begin{aligned}
 \nabla_{u_j} J_i &= \int_{I_j} \frac{\partial H_i}{\partial u} d\tau \quad i = 1, N - 1 \\
 \nabla_{u_N} J_i &= \left[\frac{\partial G_i}{\partial u} - \frac{\partial G}{\partial \mathbf{y}^T} \left(\frac{\partial g}{\partial \mathbf{y}^T} \right)^{-1} \frac{\partial g}{\partial u} \right]_{t_f} + \int_{I_N} \frac{\partial H_i}{\partial u} d\tau
 \end{aligned} \tag{2.125}$$

De même, à partir de la relation (2.62), on déduit le gradient par rapport aux paramètres

p_i du système, notamment t_f :

$$\nabla_{p_j} J_i = \frac{\partial G_i}{\partial p_j} - \left[\frac{\partial G}{\partial \mathbf{y}^T} \left(\frac{\partial g}{\partial \mathbf{y}^T} \right)^{-1} \frac{\partial g}{\partial p_j} \right]_{t_f} + \frac{\partial \mathbf{x}_0}{\partial p_j} \lambda_{i0} + \int_0^{t_f} \frac{\partial H_i}{\partial p_j} d\tau \quad (2.126)$$

Les deux premiers termes décrivent l'influence explicite et implicite de p_j sur le critère terminale du problème. Le troisième prend en compte l'influence du paramètre sur les conditions initiales du système et le terme intégral donne l'influence de p_j sur l'histoire du procédé. On constate qu'avec cette interprétation, les relations (2.125) et (2.126) sont équivalentes. En effet, la commande n'intervient pas sur les conditions initiales du problème et en général, le critère terminal G ne dépend explicitement pas de u .

L'algorithme de la procédure CVP associé à la résolution SQP se décompose de la manière suivante :

- (i) choisir une initialisation des vecteurs \mathbf{v} et \mathbf{p} ,
- (ii) intégrer les équations d'état de 0 à t_f ,
- (iii) intégrer les équations adjointes de t_f à 0,
- (iv) calculer les gradients du critère et des contraintes,
- (v) construire le sous-problème quadratique sous contraintes linéaires,
- (vi) déterminer la direction de recherche pour réduire la fonction de mérite,
- (vii) minimiser cette fonction de mérite,
- (viii) utiliser la solution comme point de départ et retourner à l'étape (ii) si nécessaire.

Les étapes (v) à (viii) sont automatisées dans l'algorithme NLPQL et l'opération consiste ainsi à mettre au point les procédures (ii) et (iii) d'intégration des équations différentielles et surtout la procédure (iv) de calcul des gradients.

Les grandeurs adjointes qui apparaissent dans les développements précédents sont strictement identiques à celles introduites dans les développements qui conduisent à formuler la procédure CVI. Les systèmes différentiels à résoudre sont donc les mêmes. Ils ne sont donc pas répétés dans cette section.

Cette similitude dans les systèmes différentiels n'est pas unique. En effet, les procédures CVI et CVP ont de nombreux points en commun. D'une part, elles résultent de l'introduction d'un critère augmenté \bar{J} mais la résolution distingue le critère et les contraintes. D'autre part, la procédure CVI utilise la fonction $\partial H/\partial u$ qui intervient dans la condition d'optimalité pour corriger le profil continu de la commande. Dans le cas CVP, le gradient utilisé pour corriger le "plateau" u_i est l'intégrale de cette fonction dans l'intervalle I_i . Lorsque l'optimum est atteint, on doit avoir $\partial H/\partial u = 0$. On peut ainsi voir la procédure CVP comme une technique qui satisfait la condition d'optimalité *en moyenne* sur un intervalle I_i .

La similitude ne s'arrête cependant pas à ce niveau. En effet, pour tout ce qui concerne le critère J dans CVP, le gradient (la condition d'optimalité) est utilisée par SQP pour construire un sous-problème quadratique. La direction de recherche est alors donnée par le Jacobien de cette approximation quadratique. La procédure CVI de son côté utilise directement le développement de Taylor à l'ordre 1 et utilise la direction indiquée par

le gradient de ce développement. La manière dont sont prises en compte les contraintes, est également proche puisque les développements s'arrêtent dans les deux cas à l'ordre 1. On constate d'ailleurs qu'à l'optimum, les multiplicateurs de Lagrange utilisés pour augmenter le critère dans CVI et dans CVP sont les mêmes.

Sa simplicité de mise en oeuvre, sa convergence, son "optimalité" et son aptitude à gérer les contraintes, font de la méthode CVP une des méthodes les plus performantes, non seulement parmi les méthodes de paramétrisation de la commande mais aussi parmi les différentes approches de l'optimisation dynamique. Cette technique semble être un très bon compromis entre deux exigences fondamentales : la nécessité d'améliorer le fonctionnement du système (optimalité des résultats) et la nécessaire simplicité de mise en oeuvre (bornes, contraintes, rapidité) pour une application sur un site industriel.

Cette méthode possède cependant un inconvénient majeur. Le nombre d'équations différentielles à intégrer $n(2 + q)$ augmente très rapidement avec la dimension de l'état du système et avec le nombre de contraintes. Sa rapidité est donc liée à des systèmes de faibles dimensions. Elle requiert alors un temps de calcul beaucoup plus important que ceux présentés dans le cadre d'un système de dimension 2 soumis à quelques contraintes. Pour éviter cet inconvénient, il faut alors avoir recours à des méthodes de type paramétrée-paramétrée.

Le principal défaut de toutes les méthodes présentées réside dans la nécessité de résoudre des équations différentielles. Cette résolution est en effet très coûteuse en temps de calcul. Il est en revanche possible d'éviter l'intégration en utilisant une forme approximée de l'état. L'intégration numérique est alors transformée en résolution d'équation algébrique. Les techniques d'optimisation dynamique basée sur cette pratique implique alors des solutions où l'état et la commande sont paramétrés.

2.2.3 Forme Paramétrée-Paramétrée

Dans toutes les méthodes précédemment présentées, les processus numériques consacrent la majorité de leur temps à l'intégration des équations différentielles (état/adjoint). Le temps d'intégration dans les problèmes d'optimisation peut en effet représenter jusqu'à 85% du temps global de résolution (Jones et Finch, 1984; Renfro et al., 1987). Pourtant, dans le cadre de la mise en oeuvre de la commande en boucle fermée, la rapidité avec laquelle la solution peut être calculée est un élément primordial. Il vient naturellement l'idée de se dégager de l'intégration numérique exacte en utilisant des grandeurs approximées. À la manière de la paramétrisation de la commande, on cherche une forme approximative qui permet de représenter les solutions du système différentiel. Mais, contrairement à la commande, l'état et les variables adjointes sont soumis à des contraintes d'égalité différentielles strictes. La précision de l'approximation doit donc être choisie en conséquence. La forme constante par morceau est naturellement mal adaptée lorsqu'il s'agit des équations d'état ou des équations adjointes. On conçoit cependant qu'une approximation linéaire par morceau pourrait déjà représenter d'une manière satisfaisante un profil de l'état. Dans les sections suivantes, des approximations polynomiales sont utilisées pour représenter toutes les variables impliquées.

Les méthodes des résidus pondérés (Methods of Weighted Residuals) (Finlayson, 1972; Villadsen et Michelson, 1978) sont des méthodes qui permettent de déterminer les coefficients qui caractérisent la solution approximative du système différentiel. La résolution des équations différentielles est ainsi remplacée par la détermination des coefficients de cette

approximation, c'est-à-dire, la résolution d'un système d'équations algébriques. Cette approximation pouvant être réalisée sur l'ensemble de l'intervalle d'intégration ou sur un ensemble d'*éléments finis* de cet intervalle.

Ces méthodes sont également employées pour résoudre les équations aux dérivées partielles (PDE) pour lesquelles, l'approximation polynomiale est utilisée dans une des deux directions (espace ou temps) (Wong et Luus, 1982). Cette approximation peut aussi être considérée dans le cadre de l'optimisation dynamique de ce même système PDE (Lynn et Zahradnik, 1970). L'optimisation dynamique du critère pour calculer le profil optimal $u(t)$ est, quant à elle, transformée en une optimisation non-linéaire (SQP).

Une autre application de l'approximation polynomiale est l'estimation paramétrique pour les systèmes décrits par des équations aux dérivées ordinaires. L'optimisation des paramètres est alors simultanée à la résolution également algébrique, du système différentiel (Tjoa et Biegler, 1991).

La première application spécifique des méthodes des résidus pondérés qui nous intéresse, consiste à approximer les profils des variables impliquées dans les TPBVP afin d'obtenir une solution approximative mais précise (Shiraishi et al., 1995) de ces systèmes par ailleurs délicats à résoudre.

La deuxième application de ces méthodes qui est envisagée, est de transformer l'aspect différentiel de l'optimisation dynamique en une formulation approximative "algébrique".

Méthodes des résidus pondérés

On considère l'équation différentielle :

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}) \quad \mathbf{x}(0) = \mathbf{x}_0 \quad (2.127)$$

On supposera par la suite que la variable indépendante t varie entre 0 et 1. Afin d'éviter l'intégration numérique de cette équation, on cherche une solution approximative qui satisfait cette équation différentielle. On considère donc une approximation polynomiale d'ordre N , $X(t)$, de la solution $\mathbf{x}(t)$.

On utilise une approximation polynomiale de la forme :

$$\mathbf{X}(t) = \sum_{i=0}^N p_i \mathcal{P}_i(t) \quad (2.128)$$

où \mathcal{P}_i est généralement : une fonction puissance t^i , un polynôme quelconque P_i ou un polynôme de Lagrange ℓ_i , tous deux de degré N . Les p_i sont les coefficients de l'approximation polynomiale notés respectivement a_i , b_i et \tilde{x}_i en fonction du choix de \mathcal{P}_i .

Il est courant dans la littérature de préciser sur chaque polynôme son degré. Cette information est importante dans la description des calculs mais elle alourdit considérablement la notation. L'ordre des polynômes est volontairement omis mais il sera précisé à chaque fois que la distinction sera nécessaire.

Si la solution exacte de (2.127) est de la forme (2.128) alors il existe un vecteur de coefficients p_i tel que :

$$\dot{\mathbf{X}} = f(\mathbf{X}) \quad \mathbf{X}(0) = \mathbf{x}_0 \quad (2.129)$$

Dans le cas le plus fréquent, il existe une erreur d'approximation qui est caractérisée par le résidu $R[p_i]$ de l'équation différentielle :

$$R(p_i) = \dot{\mathbf{X}} - f(\mathbf{X}) \quad (2.130)$$

Les différentes méthodes d'approximation polynomiale consistent à choisir les N coefficients polynomiaux de telle sorte que les N conditions suivantes soient satisfaites.

$$\int_0^1 W_j(t) R(p_i) dt = 0 \quad j = 1, 2, \dots, N \quad (2.131)$$

Chacune des méthodes de résidus pondérés est alors caractérisée par la nature des fonctions de pondération $W_j(t)$ (Villadsen et Michelson, 1978).

L'ordre des précisions des variantes de ces méthodes est : Galerkin > moments > moindre carrés \gg sous-domaine \approx collocation. Cette dernière méthode est en revanche intéressante car elle ne nécessite aucun calcul d'intégrale. Cette intégration peut néanmoins être évitée dans les autres méthodes, en utilisant une quadrature numérique :

$$\int_0^1 W(t) R(t) dt \approx \sum_{i=1}^M w_i R(t_i) \quad (2.132)$$

Le choix de M et la position des points de quadrature conditionnent alors sa précision. Le choix optimal de ces M points de quadrature est connu pour correspondre aux zéro d'un polynôme de Jacobi orthogonal $P_M^{(\alpha, \beta)}(t)$ de degré M qui vérifie :

$$\int_0^1 t^\beta (1-t)^\alpha t^j P_M^{(\alpha, \beta)}(t) dt = 0 \quad j = 0, 1, \dots, M-1 \quad (2.133)$$

Le choix de M est plus ouvert mais l'utilisation d'un degré égal au nombre de paramètres de l'approximation polynomiale $M = N$ est des plus simples. La méthode de Galerkin avec quadrature peut ainsi être utilisée sans intégration et correspond alors à une méthode de collocation. Inversement, la méthode de collocation peut être construite sur une distribution des points de collocation non équidistante. En utilisant comme points de collocation les zéros du polynôme orthogonal précédent, la précision devient alors équivalente à la méthode de Galerkin. On parle ainsi de la méthode de *collocation orthogonale*.

À titre indicatif, la figure 2.2 indique la position des points de collocation pour différentes valeurs de M et du couple (α, β) . On observe ainsi comment la répartition des points de collocation s'effectue : la distribution $(0, 1)$ est symétrique à $(1, 0)$ par rapport au milieu de l'intervalle. Ces deux valeurs permettent ainsi de favoriser la précision de l'approximation dans une des deux moitiés. Les répartitions $(0, 0)$ et $(1, 1)$ sont réciproquement symétriques par rapport au milieu de l'intervalle. Elles diffèrent par leur répartition dans le demi-intervalle ; la distribution $(0, 0)$ améliorant la précision de l'approximation près des limites de l'intervalle. Le couple utilisé pour la résolution de nos problèmes est $(0, 1)$.

Polynôme d'interpolation de Lagrange

Trois formes d'approximation polynomiale ont été mentionnées dans la section précédente.

$$X(t) = \sum_{i=0}^N a_i t^i \quad (2.134)$$

$$X(t) = \sum_{i=0}^N b_i P_i(t) \quad (2.135)$$

$$X(t) = \sum_{i=1}^{N+1} \tilde{x}_i \ell_i(t) \quad (2.136)$$

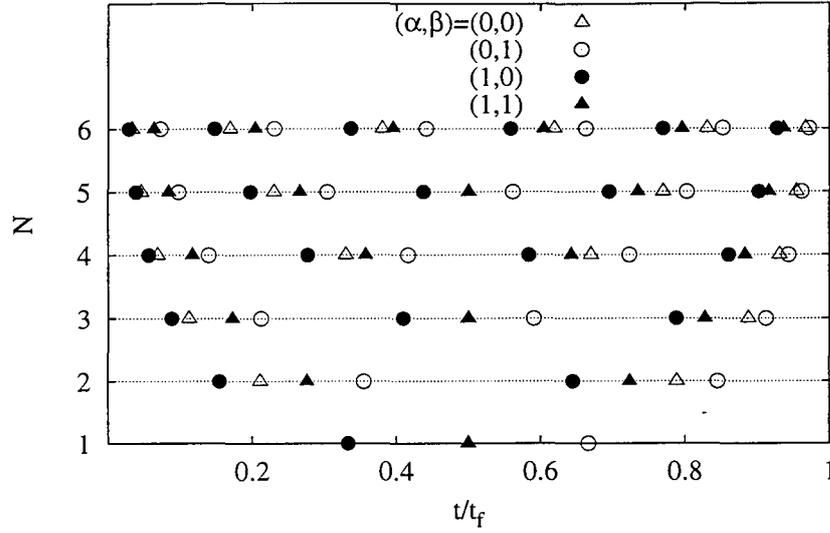


Figure 2.2: Influence de (α, β) sur la position des points de collocation.

où P_i est un polynôme quelconque, ℓ_i est un polynôme de Lagrange, tous deux de degré N . Les a_i , b_i et \tilde{x}_i sont les coefficients de cette approximation.

Dans notre étude, le choix du polynôme s'est orienté vers les polynômes de Lagrange. Il semble qu'historiquement, ce soit les polynômes de type (2.134) qui aient été utilisés en premier (Tsang et al., 1975; Biegler, 1984). Les approximations basées sur des polynômes plus complexes comme les splines cubiques (Neuman et Sen, 1973; Wong et Luus, 1982) ou les polynômes de Lagrange (Cuthrell et Biegler, 1987, 1989; Logsdon, 1992; Tieu et al., 1995) sont apparues plus tard.

La forme et les propriétés particulières des polynômes de Lagrange sont en effet adaptées à la résolution de problèmes différentiels sous contraintes et méritent d'être détaillées.

Les polynômes de Lagrange ℓ_i sont définis par :

$$\ell_i(t) = \prod_{j=1, i}^{N+1} \frac{(t - t_j)}{(t_i - t_j)} \quad (2.137)$$

où la notation $j = 1, i$ signifie $j = 1, 2, \dots, i-1, \dots, i+1, \dots, N+1$.

L'approximation polynomiale est ainsi donnée par :

$$\mathbf{X}(t) = \sum_{i=1}^{N+1} \tilde{x}_i \ell_i(t) \quad (2.138)$$

L'approximation $\mathbf{X}(t)$ est ainsi un polynôme d'ordre N .

Le choix de cette forme polynomiale, réside dans le fait qu'elle vérifie, aux points t_j , la condition de *Lagrange* :

$$\ell_i(t_j) = \delta_{ij} \quad (2.139)$$

Ceci conduit à $\mathbf{X}(t_i) = \tilde{x}_i$. L'utilisation de la forme polynomiale de *Lagrange* introduit ainsi des coefficients \tilde{x}_i qui ont une signification physique immédiate. Cela permet notamment d'initialiser, d'imposer des contraintes et d'interpréter ces paramètres aussi simplement qu'on peut le faire pour la fonction qui est approximée.

Dans le cas de la résolution de systèmes ODE, on est également intéressé par la dérivée première de l'approximation $\mathbf{X}(t)$. Celle-ci est immédiatement déduite de la différentiation de (2.138). Dans le cas de la méthode des collocations orthogonales, ces dérivées ne sont nécessaires qu'aux points de collocation t_j . Les propriétés des polynômes de Lagrange conduisent alors à une expression simplifiée :

$$\dot{\mathbf{X}}(t_j) = \frac{d}{dt} \left[\sum_{i=1}^{N+1} \tilde{x}_i \ell_i(t_j) \right] = \sum_{i=1}^{N+1} \tilde{x}_i \dot{\ell}_i(t_j) \quad (2.140)$$

Dans le cas de dérivées d'ordre plus élevé, la dérivation est répétée.

Le résidu de l'équation d'état (2.127) en chacun des points de collocation, s'écrit alors :

$$R_j(\tilde{x}_i) = \sum_{i=1}^{N+1} \tilde{x}_i \dot{\ell}_i(t_j) - f(x_j) \quad (2.141)$$

Chaque résidu R_j est une fonction non-linéaire des coefficients \tilde{x}_i mais les termes $\dot{\ell}(t_j)$ sont indépendants de ces coefficients. Ils peuvent ainsi être déterminés une fois pour toutes, au début de la procédure de collocation.

La résolution du système ODE se simplifie ainsi en une résolution d'un système algébrique où les N variables sont les coefficients de l'approximation \tilde{x}_i et les N équations sont les résidus R_j évalués aux N points de collocation t_j .

Collocation orthogonale et optimisation dynamique

Les méthodes de collocation orthogonale sont utilisées dans le but d'accélérer la résolution des problèmes d'optimisation dynamique en évitant l'intégration numérique des équations différentielles. Elles ont été appliquées de deux manières. La collocation orthogonale peut en effet être appliquée :

- (i) à la résolution du TPBVP du Principe du Maximum.

Ce type d'approche a déjà été employé pour la résolution de problèmes de commande optimale de systèmes très variés allant des réacteurs chimiques continus parfaitement agités, des réacteurs nucléaires (Oh et Luus, 1977), des réacteurs tubulaires à dispersion axiale (Lynn et al., 1970) aux colonnes à distiller (Diwekar, 1992). Elle permet en effet de traiter aussi bien les systèmes algébro-différentiels ordinaires (ODE-DAE) que les systèmes aux dérivées partielles (PDE).

- (ii) à la formulation originale du problème.

Cette approche, beaucoup plus classique, est intensivement appliquée pour l'optimisation dynamique de réacteurs (bio)chimiques discontinus (Biegler, 1984; Tieu et al., 1995; Logsdon, 1992) ou semi-continus (Cuthrell et Biegler, 1989), des réacteurs à lit fixe (Cuthrell et Biegler, 1987) ou encore des réacteurs de polymérisation (Tieu et al., 1994).

Collocation orthogonale et Principe du Maximum L'utilisation de la collocation orthogonale pour simplifier et abrégier la résolution des problèmes aux conditions limites partagées apparaît comme une alternative très intéressante. La résolution du TPBVP par collocation orthogonale n'a cependant pas abouti. Dans ce domaine, il semble qu'il n'y ait pas ou très peu de résultats décrivant l'application de la collocation orthogonale sur

ce type de problème. En effet, les applications mentionnées précédemment, concernent des systèmes de nature chimique (affine en la commande) dont les critères d'optimisation sont, dans le pire des cas, quadratiques. Il en résulte que l'application du Principe du Maximum conduit à un TPBVP où la condition d'optimalité est résolue explicitement. En s'affranchissant de cette condition d'optimalité, la convergence de la méthode de collocation orthogonale semble garantie. Dans le cas d'un système électrochimique non-linéaire, la condition d'optimalité est implicite. La résolution de cette condition s'est de plus révélée numériquement difficile voire impossible en raison de la présence de multiples solutions $\partial H/\partial u = 0$ (présence de plateaux aux extrémités de l'intervalle de commande). De nombreuses efforts ont été entrepris pour éviter ce problème mais ils ne permettent pas de mettre au point une technique robuste de résolution. La description de la collocation appliquée à la résolution des problèmes aux conditions limites partagées n'est donc pas présentée.

Collocation orthogonale et problème original L'échec de la résolution du TPBVP établi à partir du PMP ne doit pas occulter les performances de la collocation orthogonale. Si la résolution du TPBVP pose en effet quelques problèmes notamment à cause de la nature électrochimique du modèle, la méthode de collocation peut aussi être appliquée directement sur la formulation originale du problème d'optimisation dynamique.

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t), t_f} J &= G[\mathbf{x}(t_f), t_f] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u) dt \\
 \text{soumis à : } \quad \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, u, t) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 h(\mathbf{x}(t_f)) &= 0 \\
 u(t) - u_{min} &\geq 0 \\
 u_{max} - u(t) &\geq 0
 \end{aligned} \tag{2.142}$$

On utilise alors les approximations polynomiales de l'état et de la commande :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{X}(t) &= \sum_{i=0}^{N+1} \tilde{\mathbf{x}}_i \ell_i(t) & \ell_i(t) &= \prod_{j=0, i}^{N+1} \frac{(t - t_j)}{(t_i - t_j)} \\
 U(t) &= \sum_{i=0}^N \tilde{u}_i \mathcal{L}_i(t) & \mathcal{L}_i(t) &= \prod_{j=0, i}^N \frac{(t - t_j)}{(t_i - t_j)}
 \end{aligned} \tag{2.143}$$

où $\tilde{\mathbf{x}}_i$ appartient à \mathbb{R}^2 et \tilde{u}_i à \mathbb{R} . $\ell(t)$ et $\mathcal{L}(t)$ sont des polynômes de Lagrange d'ordres respectifs $(N+1)$ et N . La différence d'ordre est justifiée par les conditions limites des variables différentielles qui fournissent une information supplémentaire pour l'approximation polynomiale. On considère ainsi $(N+2)$ points de collocation : N points de collocation internes et les deux extrémités t_0 et t_f de l'intervalle.

En chacun des N points t_k de collocation internes, l'utilisation de ces approximations conduit aux fonctions résiduelles $R(t_k)$. Les extrémités sont considérées comme un cas à part. Le résidu dépend en effet du choix des points de collocation utilisés pour l'approximation de la variable de commande. Pour cette approximation, on utilise $(N+1)$ points de collocation : les N points internes et une des extrémités. À l'extrémité non *colloquée*, la valeur de la fonction est donnée par son développement polynomial comme en tout

Temps	0	...	t_k	...	t_f
\tilde{x}	⊙	⊗	...	⊗	⊗
\tilde{u}	⊗	⊗	...	⊗	

⊗ : coefficient libre ⊙ : coefficient contraint

Tableau 2.1: État des points de collocation

Temps	0	...	t_k	...	t_f
$R_{\tilde{x}}$	⊙	⊗	...	⊗	⊙
R_u	⊗	⊗	...	⊗	⊙

⊗ : résidu exploité ⊙ : résidu non exploité

Tableau 2.2: Utilisation des fonctions résiduelles

point quelconque de l'intervalle.

$$U(t) = \sum_{i=0}^N \tilde{u}_i \mathcal{L}_i(t) \quad (2.144)$$

Dans l'expression des résidus aux extrémités, une seule peut donc profiter de la simplification liée à la condition de Lagrange. D'autre part, pour déterminer ces $(N+1)$ coefficients \tilde{u}_i , il faut considérer $(N+1)$ (parmi $(N+2)$) fonctions résiduelles R_u . La fonction résiduelle non exploitée correspond naturellement au résidu au point non-colloqué.

Dans le cas présent, le point initial t_0 n'est pas considéré comme point de collocation pour la commande. Il est cependant clair que pour l'approximation de $u(t)$, la condition terminale importe peu (du moins en dehors du cadre de l'approximation par éléments finis). Ce choix n'a toutefois pas d'influence sur les résultats. Le tableau 2.1 indique par exemple, quels sont les coefficients polynomiaux \tilde{x}_i et \tilde{u}_i considérés dans la résolution d'un problème sans contrainte terminale. Il indique également les points qui sont soumis à une contrainte aux limites.

De même, le tableau 2.2 montre les équations résiduelles qui sont utilisées dans ce cas pour déterminer ces coefficients polynomiaux.

La formulation du problème d'optimisation dynamique est remplacée par le problème

d'optimisation statique :

$$\begin{aligned}
 \min_{\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i, t_f} J &= G[\tilde{\mathbf{x}}_{N+2}, t_f] + \int_{t_0}^{t_f} F(\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i) dt \\
 \text{soumis à : } R_{\tilde{\mathbf{x}}}(\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i, t_f) &= 0 \\
 \tilde{\mathbf{x}}_0 &= \mathbf{x}_0 \\
 h(\tilde{\mathbf{x}}_{N+2}) &= 0 \\
 \tilde{u}_i - u_{min} &\geq 0 \\
 u_{max} - \tilde{u}_i &\geq 0
 \end{aligned} \tag{2.145}$$

L'application de la collocation orthogonale sous cette forme est présentée à partir de la page 110, pour les problèmes d'optimisation dynamique liés au schéma réactionnel *ABD*.

2.2.4 Conclusions

Une présentation non exhaustive des méthodes pour résoudre les problèmes d'optimisation dynamique a été réalisée. La distinction de ces méthodes est basée sur le degré d'approximation des variables d'état et de commande. On a ainsi distingué les formes :

- continues-continues
- continues-paramétrées
- paramétrées-paramétrées

La plupart de ces techniques ont été utilisées pour déterminer les conditions optimales de fonctionnement des procédés électrochimiques étudiés. Cette grande variété des techniques conduit à des caractéristiques numériques également très variées. Les principales caractéristiques sont discutées dans la première partie du chapitre suivant.

Chapitre 3

Fonctionnement optimal des procédés électrochimiques

Ce chapitre est consacré à l'utilisation des différentes techniques du paragraphe (2.2) pour déterminer les conditions optimales de fonctionnement des procédés électrochimiques discontinus décrits dans le chapitre (1). La première partie présente les principales propriétés des techniques numériques de résolution des problèmes d'optimisation dynamique. La seconde partie présente les résultats concernant la minimisation de la consommation globale d'énergie électrique. On veut, dans ce cas, contrôler de manière optimale l'intensité qui circule dans la cellule électrochimique. La troisième partie décrit les résultats de l'optimisation du profil du potentiel d'électrode dans le réacteur ABD . Les problèmes de maximisation de la concentration finale de B et de la minimisation du temps opératoire sont abordés.

3.1 Propriétés numériques des techniques d'optimisation dynamique

La présente section rassemble toute l'expérience acquise lors de la mise en oeuvre des techniques de résolution des problèmes d'optimisation dynamique. Elle en présente les principaux avantages et inconvénients, les difficultés rencontrées d'un point de vue pratique ainsi que les précautions prises pour garantir l'optimalité des résultats. Ces techniques ont été classées en trois catégories en fonction du degré d'approximation des variables d'état et de commande. Cette section ne tient pas compte de cette division et présente successivement les techniques d'itérations sur les conditions limites (BCI), d'itérations sur le vecteur de commande (CVI), de paramétrisation du vecteur de commande (CVP) et de collocation orthogonale.

3.1.1 Itérations sur les conditions limites (BCI)

Chronologiquement, la méthode BCI a été la première technique que nous avons utilisée pour résoudre les problèmes d'optimisation dynamique. Les résultats qui lui sont associés sont donc nombreux et les précautions apportées à la vérification des résultats permettent de souligner les propriétés de cette technique mais aussi d'illustrer concrètement le Principe du Maximum.

Application au problème AB-ENERG sous contrainte terminale

L'application du Principe du Maximum sur la minimisation de la consommation d'énergie électrique pour le système AB conduit au TPBVP (A.5) de la page 226.

La technique BCI appliquée à ce système, conduit à optimiser $\lambda(0)$ qui minimise la fonction d'erreur sur les conditions limites EBC :

$$EBC = (x(1) - x_{1f})^2 \quad (3.1)$$

L'optimisation de EBC est monovariante et est réalisée à l'aide de la méthode du *nombre d'or* (Brent).

Initialisation

Pour les résultats présentés, l'intervalle de recherche de la variable adjointe au temps initial est fixé à $[1.0; 2.0]$. Cet intervalle varie beaucoup en fonction des conditions opératoires de l'optimisation. La résolution conduit en effet à des solutions optimales $\lambda(0)$ variant de 1 à 500. La résolution n'est réalisable que dans la mesure où la solution optimale se trouve à l'intérieur de l'intervalle de recherche. L'initialisation représente donc la première difficulté de mise en oeuvre de cette procédure.

Convergence

La convergence de cette méthode itérative vers la solution optimale est présentée sur la figure (3.1) qui caractérise, en fait, la convergence du critère énergétique vers sa valeur optimale. Cette figure fournit l'évolution des valeurs du critère énergétique en fonction du nombre d'itérations de la méthode.

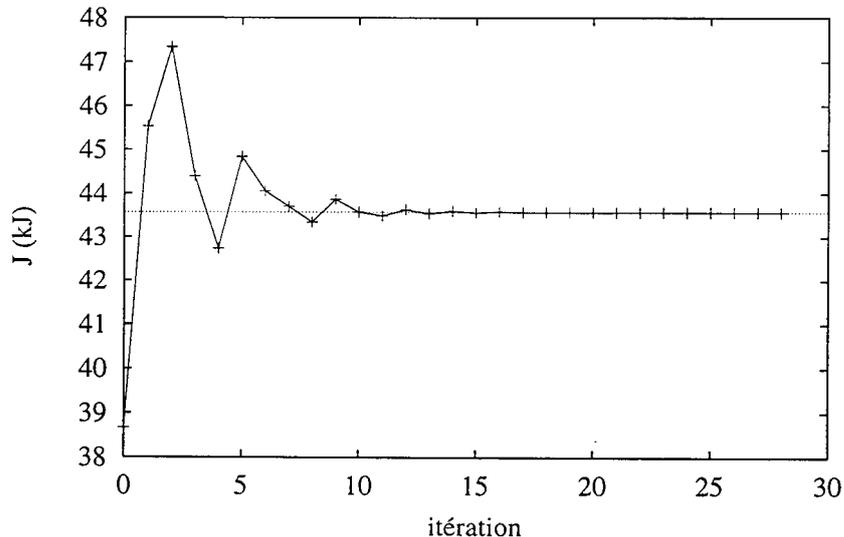


Figure 3.1: Convergence de la méthode du nombre d'or (BCI).

La méthode du *nombre d'or* converge donc assez rapidement (10 itérations) vers la solution optimale. La précision imposée ($EBC \leq 10^{-8}$) sur les résultats constitue l'essentiel des calculs de l'optimisation mais elle est nécessaire pour obtenir une solution optimale "exacte" (reproductible).

Unicité

Lorsqu'une solution est trouvée, son unicité est difficile à démontrer. Dans la pratique, on peut cependant s'assurer de cette unicité en étudiant les propriétés de la fonction *EBC*. Le profil de la fonction *EBC* pour ce problème est fourni sur la figure 3.2. Elle représente les valeurs de la fonction *EBC* pour différentes valeurs de la condition initiale manquante λ_0 au voisinage de la solution λ_0^{opt} . Cette courbe peut être divisée en deux zones importantes.

- Pour les valeurs de la condition initiale inférieures à la valeur optimale, le système évolue peu et la fonction *EBC* décroît lentement de sa valeur maximale $(0 - x_f)^2$ vers son minimum.
- Pour les valeurs de la condition initiale supérieures à la valeur optimale, les contraintes sur x imposent rapidement la valeur critique $x = -1.0$ et la fonction croît rapidement vers sa valeur limite $(1.0 - x_f)^2$.

La figure 3.2 montre ainsi que, dans la pratique, la condition initiale optimale est unique dans le domaine présenté.

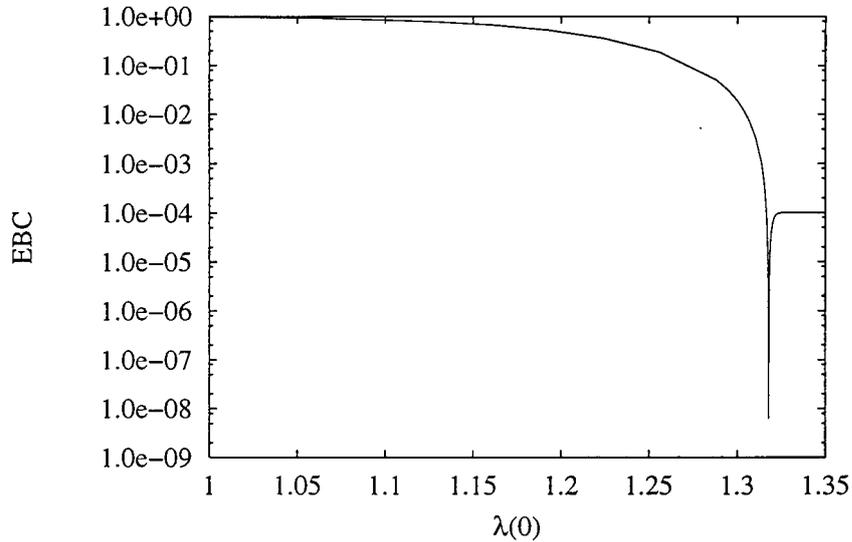


Figure 3.2: Fonction *EBC* pour différents λ_0 au voisinage de λ_0^{opt} .

Maximum du Hamiltonien

Au cours de l'intégration du système, la commande optimale est déterminée à partir de la relation algébrique $\partial H / \partial u = 0$.

La présence des deux contraintes algébriques $g_c(x, u, Z_c, Z_a) = 0$ et $g_a(x, u, Z_a) = 0$, implicites en u , ne permet pas d'exprimer la fonction H comme une fonction dépendant uniquement de u . La résolution de la condition d'optimalité conduit en réalité à résoudre le système algébrique :

$$\begin{aligned}
 0 &= [Z_0 + Z_a + Z_c] + u \frac{\partial [Z_a + Z_c]}{\partial u} + 2r^* u (1 - x) - \lambda kt^* \\
 0 &= g_c(x, u, Z_c, Z_a) \\
 0 &= g_a(x, u, Z_a) \\
 u &\in [0, 1]
 \end{aligned} \tag{3.2}$$

Afin de simplifier la résolution de ce système, la condition d'optimalité est considérée comme une fonction de la variable Z_c : $\partial H(Z_c)/\partial u = 0$. Pour un Z_c donné, les contraintes $g_c = 0$ et $g_a = 0$ fournissent, de manière explicite, les valeurs de u et de Z_a . La satisfaction de la condition d'optimalité est réalisée en deux temps :

- résolution de $\partial H(Z_c)/\partial u = 0$
- calcul des Z_a et u correspondants à partir de Z_c^{opt} .

On vérifie *a posteriori* que l'intervalle de recherche de la "solution" Z_c^{opt} correspond effectivement à $u \in [0, 1]$. Cet artifice numérique nécessite un intervalle de recherche de Z_c^{opt} judicieusement choisi mais simplifie grandement la résolution du système précédent en séparant l'optimisation de la fonction mathématique H du calcul des grandeurs physiques algébriques. Les résultats sont ainsi présentés sous la forme $H(u)$, omettant cet artifice numérique.

La minimisation de $H(x, \lambda, u)$ ne peut pas être présentée à chaque instant mais la représentation de $H(x, \lambda, u)$ comme fonction uniquement de $u \in]0, 1[$ pour différents instants de l'intégration du système ODE, permet de montrer comment la commande optimale minimise cette fonction.

La figure 3.3 présente H à $\tau = 0.0, 0.1, 0.2, \dots, 0.9, 1.0$ avec u balayant l'intervalle admissible \mathcal{U} et les figures 3.4, 3.5 et 3.6 représentent cette même fonction dans l'intervalle restreint où se trouve le minimum de H .

La figure 3.3 montre clairement que la fonction H ne possède pas de minimum local et par conséquent, le minimum de H est unique dans le domaine $[0, 1]$. Les figures 3.4, 3.5 et 3.6 indiquent de plus comment la commande optimale est déduite de l'évolution de la fonction hamiltonienne H . En effet, la figure 3.4 montre que le minimum de H se "décale" légèrement vers les valeurs croissantes de u . La commande optimale correspondante augmente donc légèrement pendant la première partie de l'opération $\tau \in [0, 0.4]$. De la même manière, la figure 3.5 indique que la commande optimale présente une croissance plus rapide dans la deuxième partie de l'opération $\tau \in [0.6, 0.9]$. La commande optimale présente ensuite une forte croissance en fin d'opération, le minimum de H se "déplaçant" brusquement vers les valeurs de u élevées entre $\tau = 0.9$ et $\tau = 1.0$.

Le minimum \mathcal{M} possède, d'ailleurs une propriété particulière, à savoir que sa valeur reste constante dans tout l'intervalle de temps $\tau \in [0, 1]$. Cette propriété observée est donc en accord avec la théorie développée par *Pontryagin* et en particulier la relation (2.49).

Application au problème ABD-CB

L'optimisation de la concentration finale en produit intermédiaire B dans le schéma réactionnel ABD conduit à déterminer les deux conditions initiales manquantes $\lambda(0) = (\lambda_1(0) \ \lambda_2(0))^T$ qui satisfont les conditions terminales du système hamiltonien du Principe du Maximum (A.3) ou (A.8).

Lorsque le taux de conversion de A n'est pas imposé, la fonction EBC introduite s'écrit :

$$EBC = [\lambda_1(t_f) - \lambda_{1f}]^2 + [\lambda_2(t_f) - \lambda_{2f}]^2 \quad (3.3)$$

La présence de la contrainte sur $C_A(t_f)$ ($x_1(t_f)$) conduit à libérer la contrainte sur $\lambda_1(t_f)$ et la fonction EBC à minimiser pour résoudre le TPBVP (A.8) s'écrit :

$$EBC = [x_1(t_f) - x_{1f}]^2 + [\lambda_2(t_f) - \lambda_{2f}]^2 \quad (3.4)$$

Minimum du Hamiltonien.

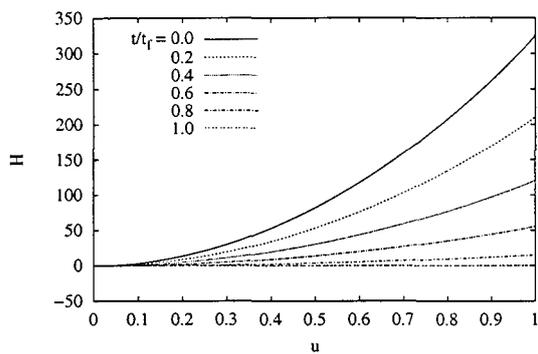


Figure 3.3: H vs u pour $\tau = 0.0, 0.1, 0.2, \dots, 1.0$.

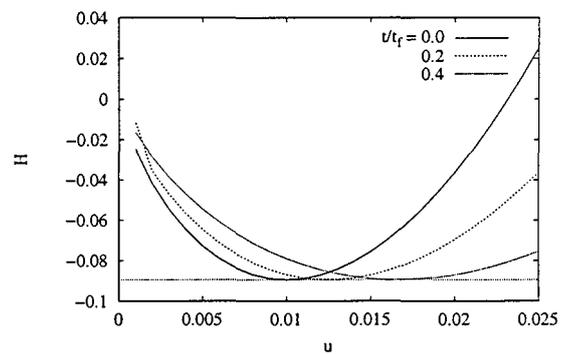


Figure 3.4: H vs u pour $\tau = 0.0, 0.2, 0.4$.

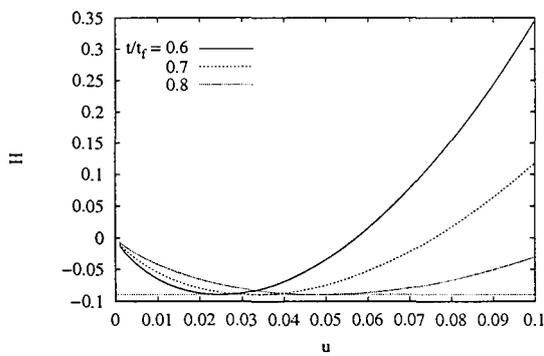


Figure 3.5: H vs u pour $\tau = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$.

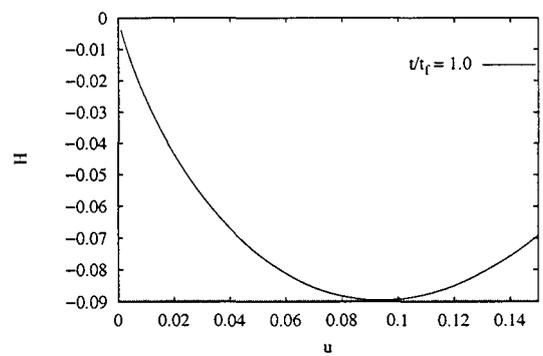


Figure 3.6: H vs u pour $\tau = 1.0$.

Les résultats qui suivent correspondent à l'optimisation de C_B sans contrainte sur la conversion de A . Les résultats concernant l'application de la technique BCI sur le problème avec contrainte sont en effet similaires et ne sont pas présentés ici.

La minimisation de la fonction EBC est réalisée en utilisant une méthode de recherche directe d'optimum basée sur un Simplex (Nelder et Mead) et des tolérances flexibles ("flexiplex").

Initialisation

Les conditions initiales de la recherche de l'optimum de la fonction EBC sont fournies dans le tableau 3.1. Ces conditions sont issues d'une part d'une certaine intuition mais également de propriétés des variables adjointes qui sont spécifiques à chaque problème traité. Dans les cas plus complexes, seules l'intuition et l'expérience peuvent guider vers une initialisation correcte de la procédure.

Dans le cas présent, il est possible de montrer que pour ce système électrochimique non-réversible et avec la définition des variables adjointes, on observe les propriétés suivantes :

- $\dot{\lambda}_1(t) \leq 0$
- $\dot{\lambda}_2(t) \geq 0$
- $\lambda_1(t) - \lambda_2(t) \neq 0$.

Les conditions initiales $\lambda(0)$ doivent donc être choisies pour que les trajectoires adjointes ne se "croisent" pas c'est à dire $\lambda_1(0) < \lambda_2(0)$. Les valeurs ne présentent pas d'intérêt particulier en dehors d'un contexte opératoire précis mais elles fournissent cependant une idée de l'ordre de grandeur des variables recherchées et des conditions nécessaires pour atteindre une solution optimale fiable.

Paramètre	valeur
$\lambda_1(0)$	0.4
$\lambda_2(0)$	0.5
$\Delta\lambda(0)$	0.1
ϵ	10^{-8}

Tableau 3.1: Max $C_B(t_f)$: Initialisation de la procédure BCI.

Convergence

La convergence de cette méthode itérative vers la solution optimale est présentée sur la figure (3.7) qui fournit l'évolution des valeurs de EBC en fonction du nombre d'itérations de la méthode. La convergence est beaucoup plus lente que dans le cas AB . Le système à résoudre ne contient cependant que deux variables. La lenteur de la procédure BCI est donc détectable même pour des systèmes de faibles dimensions.

Unicité

L'unicité de la solution est illustrée sur la figure 3.8. Cette dernière présente l'évolution de la fonction EBC dans un intervalle de $\lambda(0)$ encadrant la solution du TPBVP. La surface

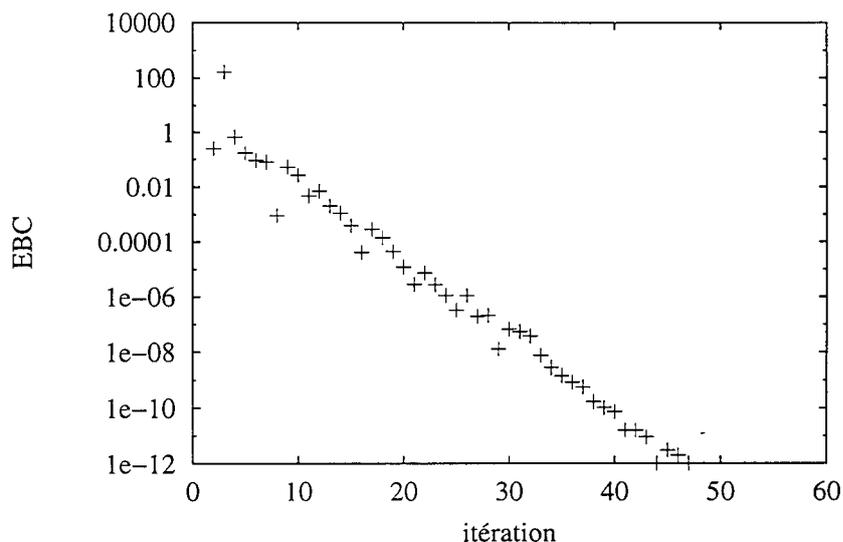


Figure 3.7: $\text{Max } C_B(t_f)$: Convergence de la méthode flexiplex (BCI).

représentée montre clairement que la fonction EBC ne possède qu'une seule solution dans l'intervalle présenté et met en évidence, par la pratique, l'unicité de la solution ainsi déterminée.

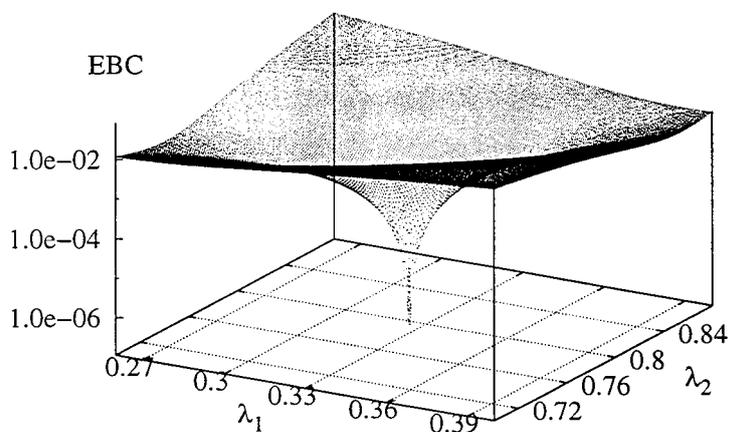


Figure 3.8: Unicité du minimum de la fonction EBC (BCI).

Maximum du Hamiltonien

L'évolution du maximum du Hamiltonien est représentée sur les figures 3.9 et 3.10. La figure 3.9 montre le profil de $H(u)$ aux instants $\tau = 0.0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ et 1.0 dans un intervalle de u très large. Elle indique ainsi qu'il n'existe qu'un seul maximum de H dans l'intervalle $[-1.7, -1.0]$ V. La présence de "plateaux" à chaque extrémité de l'intervalle étudié est due aux éléments exponentiels des relations cinétiques. La forme de la fonction

$H(u)$ pose de nombreux problèmes numériques. En effet, sur ces plateaux, la condition d'optimalité $\partial H/\partial u = 0$ est également vérifiée. La méthode de résolution de cette équation algébrique peut donc converger vers une valeur située sur un des plateaux. La solution la plus simple consiste à réduire l'intervalle de recherche de la solution optimale. Cette réduction n'est cependant pas souhaitable car, comme le montre la figure 3.10, la fonction H se décale et un intervalle trop restreint peut conduire à l'élimination de la solution optimale. Une méthode de réduction de l'intervalle à chaque itération a été utilisée. Elle consiste à restreindre l'intervalle en localisant le voisinage du maximum par un premier balayage de la fonction $H(u)$ dans l'intervalle. Cette technique est cependant spécifique au problème traité et ne peut être généralisée.

Compte tenu de ces problèmes, il est indispensable de vérifier *a posteriori* que la solution vers laquelle la méthode de résolution algébrique a convergé est effectivement l'optimum et non un des plateaux. La fonction EBC a été modifiée à cet effet en lui ajoutant un terme qui représente le nombre de fois où, pendant l'intégration, la solution u trouvée n'est pas la solution optimale. Cette modification artificielle est une version peu rigoureuse de la pénalisation des fonctions objectifs en optimisation mais elle s'est avérée efficace. Elle ne pose de plus aucun problème de convergence pour l'algorithme "flexiplex" dans la mesure où la méthode d'optimisation de EBC est une recherche directe.

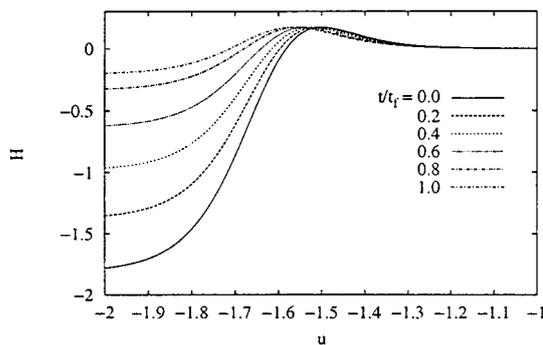


Figure 3.9: $H(u)$ pour $\tau = 0.0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ et 1.0 .

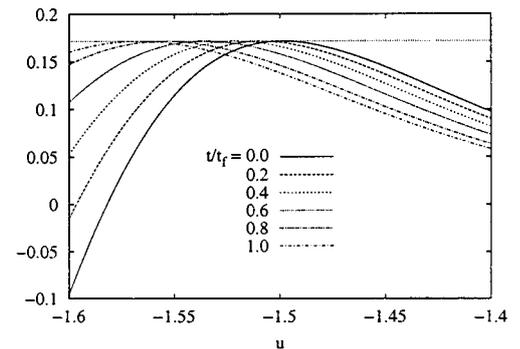
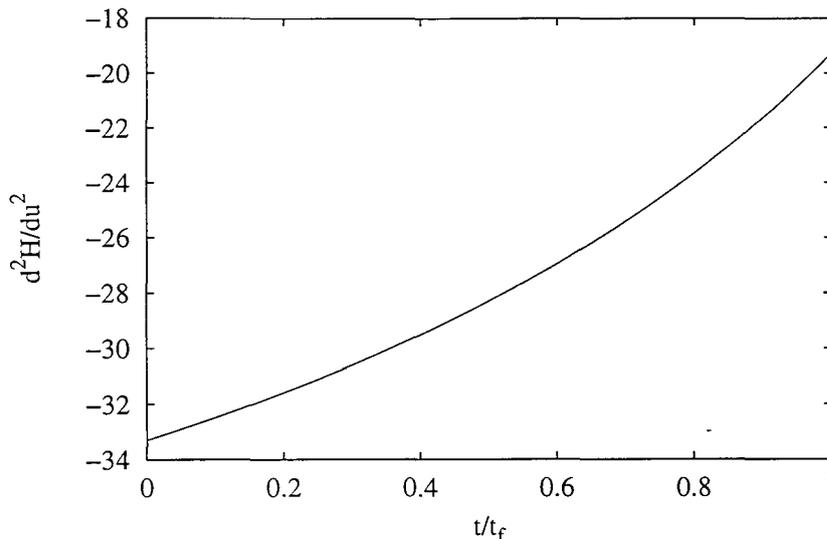


Figure 3.10: $H(u)$ au voisinage du maximum.

Un second moyen de vérifier l'optimalité du résultat obtenu est d'étudier la fonction $\partial^2 H/\partial u^2$ le long de la trajectoire solution. La solution u est un maximum (respectivement minimum) de H si cette dérivée seconde est négative (resp. positive). La figure 3.11 présente cette fonction. Ses valeurs restent négatives dans tout l'intervalle et démontrent, si les précédents résultats ne l'avaient déjà fait, que la solution $u(t)$ qui optimise H est bien un maximum de cette fonction. Cette fonction permet donc de vérifier très simplement la "maximalité" de H et notamment de détecter si la solution u déterminée se situe sur un des plateaux mentionnés. En effet, dans les intervalles correspondants, la fonction $\partial^2 H/\partial u^2$ est simplement nulle.

Application au problème ABD-TF

La résolution du problème ABD en temps minimum est traitée d'une manière sensiblement différente des deux cas précédents. Le TPBVP résultant (A.20) contient une condition d'optimalité supplémentaire. En effet, l'optimisation de la fonction EBC doit être réalisée en prenant en compte, la condition $\mathcal{M} = 1$, où \mathcal{M} est la valeur du maximum de la

Figure 3.11: Max $C_B(t_f)$: Condition de Maximalité.

fonction H . La procédure d'itération sur les conditions limites est associée à la résolution de l'équation algébrique $\mathcal{M} = 1$. Dans le cas présent et contrairement aux cas précédents, une procédure d'itération sur les conditions *terminales* a été utilisée. La procédure BCI consiste donc à déterminer les conditions $\lambda(t_f)$ qui minimise la fonction EBC (3.5) et où t_f est donné à chaque itération par la résolution de $\mathcal{M} = 1$.

$$EBC = [x_1(0) - x_{10}]^2 + [x_2(0) - x_{20}]^2 \quad (3.5)$$

Initialisation

Les conditions initiales de la procédure d'itération sur les conditions terminales sont données dans le tableau 3.2. Elles sont arbitrairement basées sur les conditions optimales du problème à temps fixe sans contrainte.

Paramètre	valeur
$\lambda_1(t_f)$	0.0
$\lambda_2(t_f)$	1.0
$\delta\lambda(0)$	0.5
ϵ	10^{-8}

Tableau 3.2: Min t_f : Initialisation de la procédure BCI.

Convergence

L'influence du temps opératoire t_f sur le système a pour conséquence une extrême sensibilité de la fonction EBC à l'initialisation des conditions adjointes. Il est en effet très difficile de mettre au point une procédure qui converge dans un large domaine. Une

pré-initialisation du type essai-erreur est systématiquement nécessaire avant de lancer la procédure itérative BCI. La convergence de la procédure est alors comparable à celle observée dans le cas de la maximisation de $C_B(t_f)$ sans pré-recherche. Cette convergence est illustrée sur la figure 3.12 qui montre le profil de la fonction EBC au cours des itérations de l'algorithme "flexiplex".

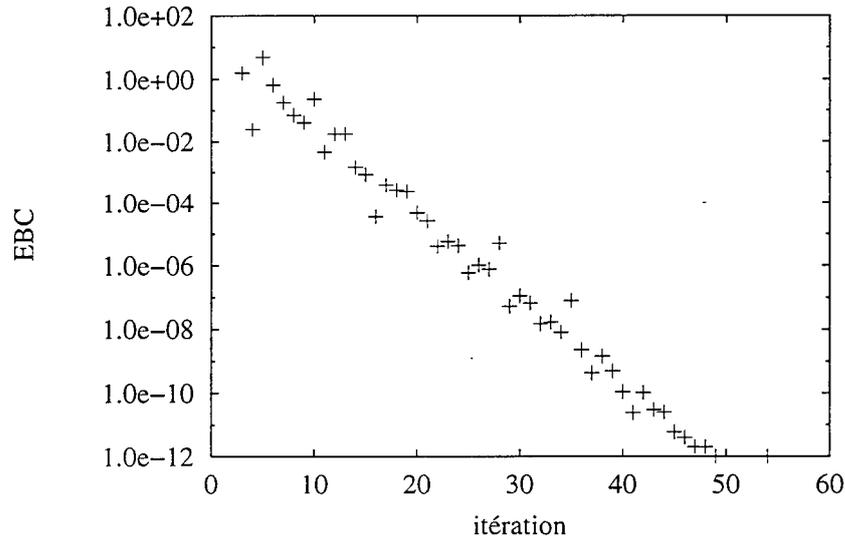


Figure 3.12: Min t_f : Convergence de la méthode flexiplex (BCI).

L'unicité de la solution optimale est maintenant difficile à présenter. En effet, dans la mesure où le système est composé de trois paramètres, une représentation graphique est difficile.

Les propriétés du Hamiltonien H sont dans ce cas assez proches du cas précédent à l'exception de la valeur du maximum qui vaut 1. Les profils ne seront donc pas répétés. Les conditions de fonctionnement en temps minimum du réacteur électrochimique seront présentés dans le chapitre suivant.

Application au problème ABD-CB sous contrainte d'inégalité

L'optimisation de la concentration finale en produit intermédiaire B dans le schéma réactionnel ABD avec une durée opératoire fixée, une contrainte sur la conversion du réactif A et une contrainte d'inégalité sur la commande conduit à déterminer les deux conditions initiales manquantes $\lambda(0) = (\lambda_1(0) \ \lambda_2(0))^T$ et la constante λ_3 qui satisfont le TPBVP (A.17)

Après avoir introduit l'état x_3 correspondant à la contrainte $\phi_2 = u(t) - u_{min} \geq 0$:

$$\dot{x}_3 = \min [0, \phi_2]^N \quad x_3(0) = 0 \quad (3.6)$$

avec $N = 1$, la fonction EBC introduite s'écrit:

$$EBC = [x_1(t_f) - x_{1f}]^2 + [\lambda_2(t_f) - \lambda_{2f}]^2 + [x_3(t_f) - 0]^2 \quad (3.7)$$

La résolution est réalisée comme précédemment. La convergence, bien que plus lente est similaire aux cas précédents. L'unicité de la solution est également difficile à présenter

(dimension 4). L'influence de l'état augmenté et de sa variable adjointe sur le Hamiltonien $H(u)$ est montrée sur la figure 3.13. Le profil de $H(u)$ pour les valeurs de u supérieures à la borne $u_{min} = -1.7V$ est naturellement identique au profil du Hamiltonien du problème sans contrainte sur u . Pour les valeurs qui ne satisfont pas la contrainte $u(t) - u_{min} \geq 0$, l'influence de x_3 et de λ_3 se traduit par une décroissance linéaire ($N = 1$) de la fonction $H(u)$ écartant la présence d'un maximum dans cet intervalle.

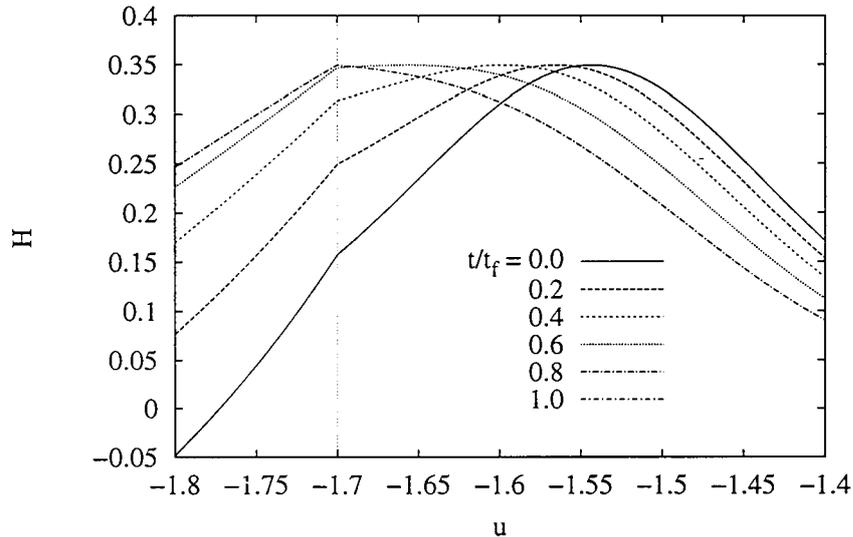


Figure 3.13: Max $C_B(t_f)$: Hamiltonien $H(u)$ en présence de contrainte d'inégalité sur u .

Conclusions

La méthode BCI est une technique de résolution des TPBVP associés au Principe du Maximum qui permet de déterminer relativement simplement l'unique solution du système. Cette simplicité est cependant handicapée par de nombreux inconvénients :

- l'initialisation de la procédure itérative est délicate compte tenu du manque d'information concernant le domaine des conditions adjointes. L'intuition joue à ce niveau un rôle majeur et peut réduire de plusieurs dizaines de minutes voire plusieurs heures le temps de calcul. Le tableau 3.3 fournit à titre d'exemple, les conditions adjointes optimales des problèmes précédents. Il illustre ainsi la variété des conditions selon le problème envisagé. L'étude approfondie de l'influence des différents paramètres du modèle permet cependant d'établir des règles pratiques qui facilitent la localisation du domaine où se trouvent les conditions initiales optimales.
- le TPBVP est spécifique au problème traité. Un changement de modèle impose en effet la réécriture du système adjoint, du Hamiltonien, des conditions limites ...
- la résolution de la condition d'optimalité $\partial H/\partial u = 0$ est délicate et nécessite souvent une adaptation de la procédure utilisée qui rend le programme d'autant plus spécifique. A titre d'exemple, l'adaptation mise au point dans le cadre de la maximisation de $C_B(t_f)$ avec le système non-réversible ABD n'est plus adéquate lorsque

Problème	TPBVP	$\lambda_1(0)$	$\lambda_2(0)$	λ_3	t_f
Min énergie	(A.5)	1.32	-	-	-
Max $C_B(t_f)$	(A.3)	0.41	0.83	-	-
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$	(A.8)	0.33	0.80	-	-
Min t_f	(A.20)	1.07	3.23	-	3036
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$, $u \leq u_{min}$	(A.17)	0.03	0.83	1.09	-

Tableau 3.3: Conditions adjointes et temps optimaux.

l'on souhaite traiter un système réversible (le profil du Hamiltonien $H(u)$ change complètement).

- les temps de calcul nécessaires à la résolution sont relativement importants. Trop importants pour envisager une optimisation en ligne. Le tableau 3.4 montre leurs ordres de grandeur pour la résolution des cinq exemples précédemment présentés sur une même machine (Station HP-UX 9000/712).

Problème	TPBVP	Temps CPU (s)
Min énergie	(A.5)	140
Max $C_B(t_f)$	(A.3)	1209
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$	(A.8)	1221
Min t_f	(A.20)	1499
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$, $u \leq u_{min}$	(A.17)	2551

Tableau 3.4: BCI: Temps de calcul CPU.

3.1.2 Itérations sur le vecteur de commande (CVI)

Application au problème ABD-CB

On considère le problème de la maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ sous contrainte de conversion. Les résultats d'un système sans contrainte sont suffisamment similaires pour ne pas être détaillés.

Les conditions numériques d'initialisation de CVI sont regroupées dans le tableau 3.5. Le choix des valeurs présentées est guidé par l'expérience et l'intuition. Elles ne représentent en aucun cas le meilleur réglage mais un réglage qui permet de résoudre ce problème pour un grand nombre de conditions opératoires.

Paramètre	valeur
commande uniforme $u^0(t)$	-1.50 (V)
précision ϵ	10^{-8}
proportionnalité ϵ_ϕ	0.8
pondération w	15
proportionnalité ϵ_u	0.80

Tableau 3.5: Max $C_B(t_f)$: Initialisation de la procédure CVI.

Les résultats obtenus par la procédure CVI montrent des propriétés de convergence très intéressantes.

D'une part, le calcul de la correction des éléments optimisés ($u(t)$) est réalisé à l'extérieur de la procédure d'intégration numérique des équations différentielles. D'autre part, ces mêmes équations sont intégrées à partir de leurs conditions limites optimales. Il en résulte un gain de temps considérable par rapport à la procédure de résolution BCI. À titre d'exemple, le temps CPU nécessaire à la résolution d'un même problème passe de 1220 s (BCI) à 500 s (CVI). Les techniques améliorant la vitesse de convergence de la procédure CVI permettent même de réduire ce temps de calcul à 42 s. La convergence la plus rapide lors de nos études a été obtenue en 3.7 s à partir d'une solution uniforme arbitraire.

Le choix du profil initial de la commande est très ouvert. Il est courant d'initialiser ce profil $u(t)$ par un profil uniforme. Les qualités de correction et donc de convergence de la procédure CVI conduisent rapidement à la solution optimale. Un exemple de convergence est donné sur la figure 3.14. Elle présente les profils de $u(t)$ obtenus au cours des différentes itérations en partant d'un profil uniforme $u = -1.52V$. On constate que dès la quatrième itération, le profil intermédiaire est quasiment optimal. L'évolution au cours des itérations suivantes est cependant nécessaire pour satisfaire toutes les conditions d'optimalité. La vitesse de convergence de CVI est typique de la convergence des méthodes de premier ordre à savoir, elles convergent très rapidement au départ, quelle que soit la solution initiale puis la convergence est fortement ralentie à l'approche de l'optimum. Une transition vers une méthode d'ordre 2 serait à ce niveau un moyen d'accélérer encore la convergence mais cette démarche n'a pas été envisagée.

L'influence de la pondération w est déterminante pour garantir la meilleure convergence de CVI. Le choix d'une pondération uniforme procure à cette procédure de bonnes propriétés de convergence. Pour les conditions opératoires étudiées, le temps de calcul varie de 500s pour $w = 15$ à 717s pour $w = 150$. Ce temps de calcul est d'autant plus acceptable qu'il correspond à une initialisation totalement arbitraire du profil de commande. L'utilisation d'une fonction de pondération construite à partir de la dérivée seconde du Hamiltonien du problème permet d'accroître la convergence et conduit, dans ces mêmes conditions, à un temps de calcul de 42 s. Les conditions de mise en oeuvre de la procédure CVI correspondent à celles qui conduisent aux profils de $u(t)$ sur la figure 3.14. Le profil de $w(t)$ est également présenté sur la figure 3.15 pour les 4 premières et la dernière itérations. L'allure de cette fonction est globalement décroissante. Elle montre ainsi que les corrections de $u(t)$ sont plus importantes en fin d'opération ($\delta u \propto w^{-1}(t)$). Ce résultat est cohérent avec

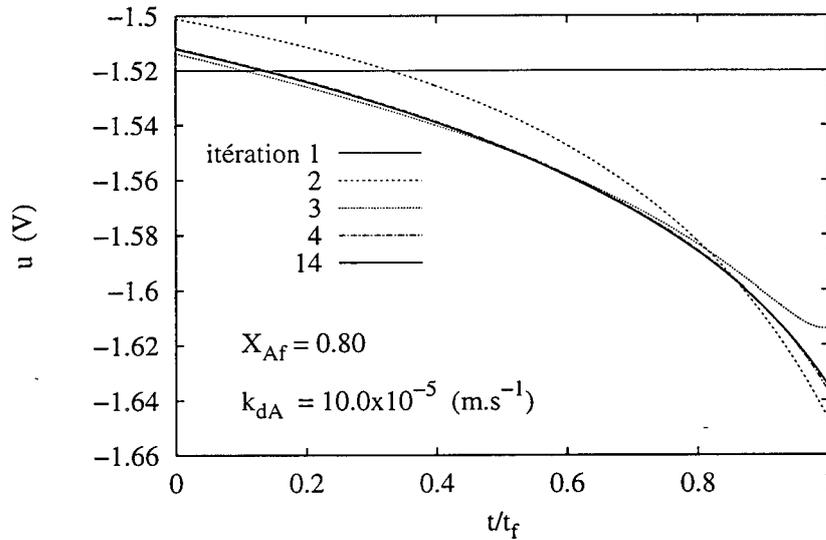


Figure 3.14: Max $C_B(t_f)$: Convergence vers le profil optimal de la procédure CVI.

les profils de $u(t)$. Le profil de $w(t)$ est relativement proche de 0 en fin d'opération. Ce cas correspond aux conditions $\partial H/\partial u = 0$ et $\partial^2 H/\partial u^2 = 0$ ($w(t) \propto \partial^2 H/\partial u^2$). Ce cas de figure a déjà été mentionné lors de l'illustration de la procédure BCI sur les figures 3.9 et 3.10. Ces conditions caractérisaient alors la présence d'un plateau dans la fonction $H(u)$ et ont posé de nombreux problèmes numériques. Dans le cas présent, ces conditions traduisent l'insuffisance du Principe du Maximum à définir la solution optimale. D'un point de vue numérique, il pose également de nombreux problèmes lors de la résolution CVI. En effet, il est tentant, lorsque la valeur de $w(t)$ est trop proche de 0, d'utiliser un profil de pondération uniforme. La transition entre profil proportionnel à $\partial^2 H/\partial u^2$ et profil uniforme provoque cependant une discontinuité dans le système d'équations différentielles. Cette discontinuité rend le système instable et les variables entrent dans une phase oscillatoire autour de la discontinuité. Les oscillations se propagent ensuite. Différents artifices ont été utilisés pour "adoucir" cette discontinuité mais le système reste instable. Une solution intermédiaire consiste à utiliser une fonction de pondération $w(t)$ dont la forme est similaire au profil de la dérivée seconde mais dont les valeurs restent suffisamment éloignées de 0. Il est ainsi possible d'augmenter l'amplitude des corrections dans les domaines intéressants tout en évitant les trop fortes corrections du profil de $u(t)$ dans les domaines singuliers. Cette technique a été mise en oeuvre avec succès dans le cas de la minimisation de l'énergie électrique consommée.

La description de la procédure CVI introduit la matrice Q (eq. (2.97)) dont l'inverse caractérise la commandabilité du système sous contrainte. En d'autres termes, l'existence de Q^{-1} indique s'il est possible d'atteindre les contraintes spécifiées. Les valeurs de la commandabilité sont tracées sur la figure 3.16 en fonction des itérations et pour trois conditions opératoires d'optimisation. Cette figure montre que le système reste, tout au long du processus itératif, dans un domaine où la contrainte peut être satisfaite.

L'influence de la proportion ϵ_ϕ est illustrée par le tableau 3.6 et les figures 3.17 et 3.18. Le tableau fournit les temps de résolution du problème pour trois valeurs de ϵ_ϕ . Il indique que ce paramètre n'a pas une influence notable sur le temps de calcul. Il influe en

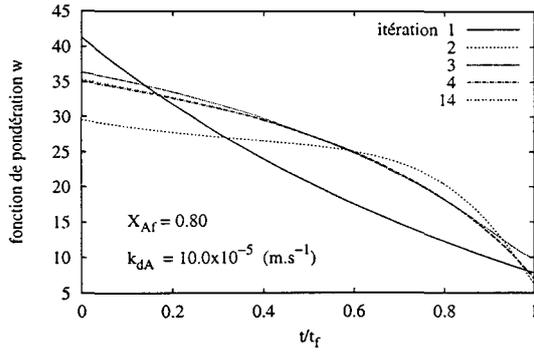


Figure 3.15: Fonction de pondération $w(t)$.

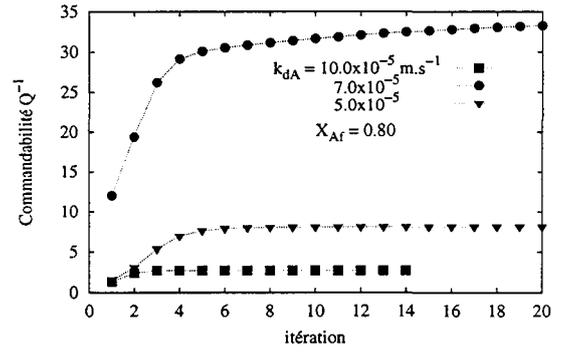


Figure 3.16: Commandabilité Q^{-1} vs itérations pour 3 coefficients de transferts k_{dA} .

revanche sur le chemin utilisé pour atteindre la solution optimale. La figure 3.17 présente l'évolution du critère de convergence relatif au critère J_0 et la figure 3.18 celui relatif à la contrainte $\phi_1 = 0$. Ces figures montrent que le choix de ϵ_ϕ permet d'orienter la convergence vers le minimum de J_0 ($\delta J_0 = 0$) ou vers la satisfaction des contraintes $\phi_1 = 0$ ($\delta J_1 = 0$). La recherche de l'optimum sous contrainte peut ainsi connaître des périodes où le critère à minimiser J_0 augmente pour pouvoir mieux satisfaire les contraintes, comme le montre la période entre les itérations 5 et 10. Le critère de convergence $\delta J_0 + \nu_1 \delta J_1$ reste naturellement négatif pendant ces périodes.

Proportion ϵ_ϕ	Temps CPU (s)
1.0	47.9
0.8	43.5
0.6	39.6

Tableau 3.6: CVI: Temps de calcul CPU en fonction de la proportion ϵ_ϕ .

Problème ABD-CB avec une contrainte de dimension infinie

Une parenthèse est faite sur la résolution du problème précédant soumis en plus à une contrainte d'inégalité de dimension infinie sur le profil de commande.

$$u(t) - u_{min} \geq 0$$

La présence de cette contrainte est prise en compte au moyen de l'état augmenté x_3 et de sa variable adjointe λ_3 . Ces variables ne sont prises en compte que lorsque la contrainte est active. En effet, dans le cas contraire, la solution de cette partie du problème est immédiate: $x_{i3}(t) = 0$ et $\lambda_{i3}(t) = 0$. Numériquement, il est cependant nécessaire de ne pas les prendre en compte sous peine de rendre le système non commandable (Q^{-1} non définie). Ce changement de la dimension du système d'une itération à l'autre pose un réel problème de convergence. En effet, lorsque la contrainte s'active autour de la solution

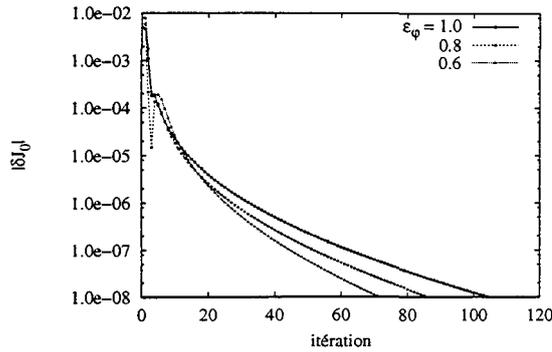


Figure 3.17: Max $C_B(t_f)$: Influence de ϵ_ϕ sur δJ_0 .

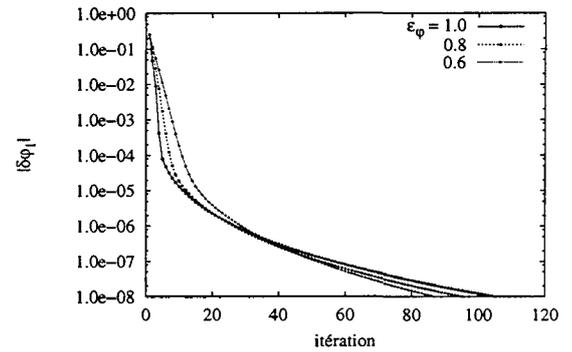


Figure 3.18: Max $C_B(t_f)$: Influence de ϵ_ϕ sur $\delta\phi_1$.

optimale, les corrections d'une itération à l'autre conduisent le profil à osciller à l'intérieur puis à l'extérieur du domaine admissible. L'augmentation du paramètre $w = cst$ pour limiter l'amplitude des corrections $\delta u(t)$, limite également la vitesse de convergence. Il en résulte des temps de calcul qui, pour résoudre les problèmes précédents avec la contrainte sur $u(t)$, augmentent jusqu'à 1250 s.

La figure 3.19 illustre l'influence de cette contrainte sur le profil optimal de $u(t)$ avec $u_{min} = -1.7 V$. L'ordre N utilisé pour la fonction de pénalisation $[\min(0, u - u_{min})]^N$ est égal à 2. Le profil de $u(t)$ contraint est comparé au profil résultant de l'optimisation sans contrainte. Cette figure montre que d'un point de vue physique, la contrainte est exactement satisfaite et que la mise en oeuvre de la commande optimale peut être réalisée dans des conditions réalistes. La limitation liée à la présence de cette contrainte est donc essentiellement numérique (temps de calcul).

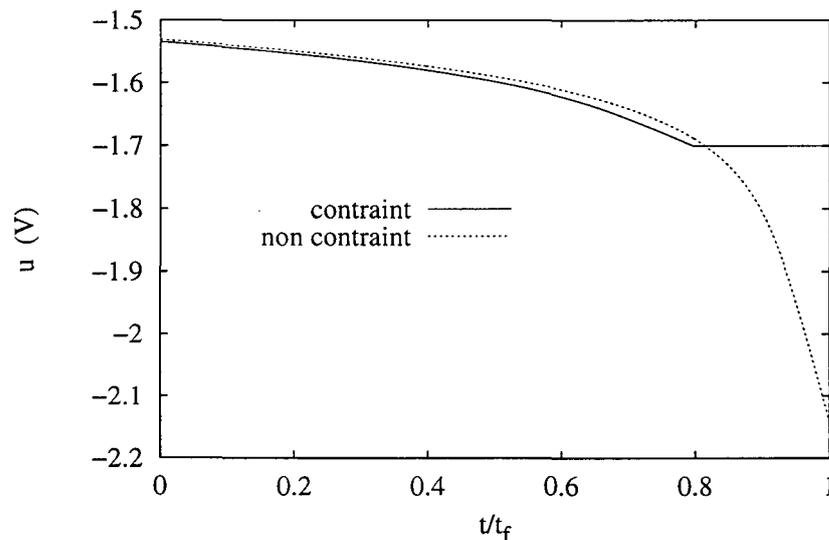


Figure 3.19: Max $C_B(t_f)$: Influence de la contrainte $u(t) - u_{min} \geq 0$ sur $u(t)$.

Application au problème ABD-TF

On considère maintenant pour le même système, le problème de la minimisation du temps opératoire t_f avec contraintes sur les concentrations finales de A et de B . Les conditions numériques d'initialisation de CVI sont identiques à celles du tableau 3.5. Les conditions complémentaires relatives à l'optimisation de t_f sont données dans le tableau 3.7. Le choix des valeurs présentées est là encore guidé par l'expérience et l'intuition.

Paramètre	valeur
précision ϵ	10^{-8}
pondération b	10^{-2}
précision ϵ_{ϕ_1}	0.8
précision ϵ_{ϕ_2}	0.8

Tableau 3.7: Min t_f : Initialisation de la procédure CVI.

La procédure CVI de minimisation du temps opératoire est fondamentalement proche de la procédure d'optimisation à temps fixe. La présence des éléments temporels ($d./dt$, b , ...) ne semble pas introduire de difficultés numériques supplémentaires. Dans la pratique, la convergence de ce type de procédure est extrêmement difficile à obtenir.

Les corrections trop grandes du temps opératoire t_f provoquent des corrections du profil de commande très importantes qui conduisent irrémédiablement le système numérique hors de son domaine de stabilité.

En effet, dans le cas du système électrochimique ABD , pour des temps "trop courts" la fonction hamiltonienne $H(u)$ n'a plus de maximum ($\partial H/\partial u = 0$). Lorsque le processus itératif traverse une "zone" de temps faibles, la condition de commandabilité (Q^{-1}) implique des corrections du profil de commande $u(t)$ qui tendent vers l'infini et qui amènent localement ce dernier dans un domaine numériquement instable.

À l'inverse, une limitation des amplitudes des corrections $\delta u(t)$ conduit à des corrections de t_f si faibles que le nombre d'itérations nécessaires pour se rapprocher de la solution s'élève souvent à plusieurs dizaines de milliers. Les coefficients de pondération $w(t)$ et b sont utilisés pour trouver un compromis idéal entre ces deux cas. La pratique montre cependant que ce type de compromis est propre aux conditions opératoires et il est très difficile d'atteindre systématiquement la solution optimale.

Une utilisation possible de CVI dans le cas de la minimisation du temps consiste à coupler CVI et BCI pour réduire le temps de calcul ou du moins fournir une meilleure estimation des conditions adjointes manquantes. Les résultats de CVI, après les premières itérations, sont utilisés pour initialiser la procédure BCI. La transposition des résultats de CVI est réalisée à partir de la relation de superposition des variables (2.57). Les conditions adjointes reconstruites ne sont certes pas optimales mais leur ordre de grandeur peut guider l'initialisation de BCI.

Conclusions

La comparaison des solutions déterminées par CVI et de celles obtenues par BCI n'a pas été présentée. Les résultats obtenus par ces deux techniques de résolutions de TPBVP sont en effet identiques. La seule différence réside dans la manière dont l'optimum est déterminé.

Le tableau ci-dessous récapitule les temps de calcul CPU nécessaires à la résolution des problèmes étudiés par la procédure CVI. Ils sont à mettre en rapport avec les temps de calcul de la méthode BCI du tableau 3.4 page 100.

Problème	TPBVP	Temps CPU (s)
Max $C_B(t_f)$	(A.3)	3.7
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$	(A.8)	3.7
Min t_f	(A.20)	14234
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$, $u \leq u_{min}$	(A.17)	824

Tableau 3.8: CVI: Temps de calcul CPU.

La procédure CVI est une procédure qui, comparée à BCI, est très rapide dans le cas de problèmes simples (contraintes terminales). Cependant, certaines précautions sont à prendre pour garantir une convergence en un minimum de temps. La méthode est en effet numériquement sensible aux paramètres de réglage. La connaissance des propriétés du système et l'expérience procurent à ce niveau les éléments indispensables à la maîtrise du processus itératif.

Dans le cadre de la commande optimale, on peut envisager de recalculer la solution optimale après que le système ait subi une perturbation. Le profil d'initialisation se trouve alors au voisinage de la solution optimale. La procédure BCI ne se prête pas à ce type d'optimisation en ligne. En effet, le principe de BCI consiste à déterminer la commande à partir de la condition d'optimalité. Il n'est ainsi pas possible de profiter du fait qu'on se trouve à proximité de la solution optimale. De plus, les temps de calcul des résolutions BCI sont rédhibitoires. En ce qui concerne CVI, sa rapidité et l'exploitation d'un profil de commande proche de la solution permettent raisonnablement d'envisager une optimisation en ligne.

En revanche, la prise en compte de contraintes autres que terminales est visiblement aussi difficile dans BCI que dans CVI. La procédure CVI reste néanmoins la plus rapide lorsqu'elle converge (à l'exception du problème *Min t_f*). Cette lacune n'est pas liée aux procédures mais plutôt à un des principaux inconvénients du Principe du Maximum.

3.1.3 Paramétrisation du vecteur de commande (CVP)

Application au système ABD

La qualité de la solution quasi-optimale obtenue par paramétrisation dépend essentiellement du degré de paramétrisation. Dans le cas présent, comme une commande constante

par morceau est envisagée, la qualité de CVP est donnée par le nombre de plateaux utilisés pour approximer la commande optimale. Il est courant de pratiquer des résolutions successives d'un même problème avec un nombre croissant de plateaux de commande $N = 2, 4, 8, \dots$ pour utiliser celui à partir duquel les variations du critère quasi-optimal sont inférieures à un ϵ donné. L'influence de ce nombre N est présentée pour le cas de la maximisation de $C_B(t_f)$. Dans notre cas, la solution optimale exacte est connue. L'écart à l'optimalité de la solution CVP peut être défini comme la différence relative entre le critère quasi-optimal et le critère optimal exact : $(J^{cvp} - J^{opt})/J^{opt}$. Cet écart est calculé pour différents nombres de plateaux N et est illustré sur la figure 3.20. Cette figure montre que pour un minimum de 5 plateaux, la solution quasi-optimale conduit à un critère qui diffère de moins de 0.16% du critère optimal. En choisissant $N = 10$, on peut ainsi estimer que la solution approximative obtenue par CVP est optimale.

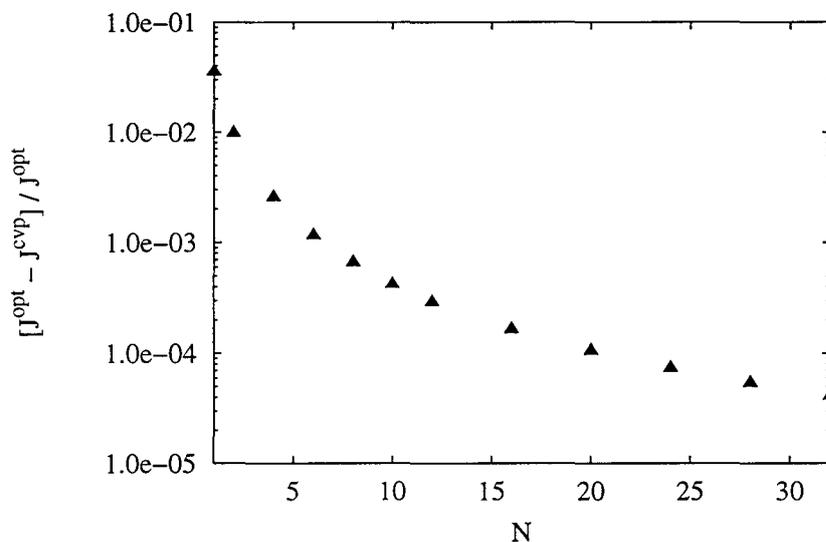


Figure 3.20: CVP : Influence du nombre de plateaux N .

Les propriétés des procédures d'optimisation par CVP, convergence, stabilité, \dots , sont très fréquemment décrites dans la littérature (Hicks et Ray, 1971; Goh et Teo, 1988; Teo et al., 1991). L'utilisation d'un algorithme SQP est également une pratique très courante depuis plusieurs années. Les propriétés de convergence de CVP ne seront donc pas détaillées. Seuls les temps de calcul CPU sont donnés afin d'illustrer la rapidité avec laquelle les résultats quasi-optimaux peuvent être obtenus. Ces temps de résolution CPU sont obtenus dans des conditions identiques aux conditions de mise en oeuvre des procédures BCI et CVI. Ils sont rassemblés dans le tableau 3.9.

La comparaison des valeurs illustre une des principales caractéristiques de la paramétrisation de la commande : sa rapidité de convergence. Cette rapidité résulte de propriétés qui interviennent à différents niveaux de l'algorithme.

- Au niveau de l'approximation quadratique :

L'approximation quadratique semble adaptée à la résolution des problèmes électrochimiques considérés. Notre expérience nous a d'ailleurs indiqué que cette approximation est adaptée à un grand nombre de problèmes d'optimisation même lorsque le système est d'une plus grande complexité comme les systèmes biochimiques ou les

Problème	TPBVP	Temps CPU (s)
Max $C_B(t_f)$	(A.3)	4.4
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$	(A.8)	13.5
Min t_f	(A.20)	110.2
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$, $u \leq u_{min}$	(A.17)	65.5

Tableau 3.9: CVP : Temps de calcul CPU.

colonnes de distillation. Elle est de plus basée sur des gradients qui, bien que calculés numériquement, proviennent de développements analytiques et sont par conséquent très précis.

- Au niveau de la résolution du sous-problème quadratique :
Les modifications apportées par Schittkowski limitent le nombre de calcul des gradients des contraintes en définissant, à chaque itération, l'ensemble des contraintes actives.
- Au niveau de l'intégration numérique :
La précision de ces gradients est obtenue au prix d'un minimum de calculs numériques puisque ces derniers sont réalisés à l'extérieur des étapes d'intégration des équations différentielles (état/adjoint). Ces équations sont de plus intégrées dans leur sens respectif. Comme dans le cas CVI, la méthode est construite sur une succession de résolutions de problèmes de valeur initiale.

La comparaison de ces temps de calcul avec ceux obtenus lors de l'application des méthodes BCI et CVI montre que la paramétrisation du vecteur de commande est une des méthodes les plus attractives pour résoudre les problèmes d'optimisation dynamique.

Paramétrisation projetée

La forme paramétrée de la commande n'est pas nécessairement une fonction du temps. On peut en effet utiliser d'autres variables telles que l'état du système ou la sortie. Ces dernières formes sont d'ailleurs très intéressantes dans un contexte de commande en boucle fermée. Elles fournissent directement l'expression de la loi optimale de retour d'état ou de retour de sortie. Des études comparatives (Hicks et Ray, 1971) montrent que ce type de paramétrisation n'est pas toujours intéressant car difficile à initialiser. Aussi, elle n'est présentée que dans un cas particulier de notre étude. L'exemple n'illustre pas exactement le choix d'une paramétrisation différente mais une modification du système qui conduit à une paramétrisation différente. On considère le système ABD pour lequel on cherche à maximiser la concentration finale $C_B(t_f)$. La variable indépendante temporelle t est remplacée par la variable dépendante x_1 en projetant le système sur l'espace $x_1(t)$ et considérant l'évolution de la grandeur $x_2(x_1)$ donnée par :

$$\frac{dx_2}{dx_1} = \frac{f_2(\mathbf{x}, u)}{f_1(\mathbf{x}, u)} \quad (3.8)$$

Le problème consiste à minimiser l'état final $x_2(x_{1f})$ soumis à la contrainte différentielle $dx_2/dx_1 = f_2/f_1$. La paramétrisation est alors basée sur un ensemble \mathcal{U} de commande admissible du type :

$$\mathcal{U} = \left\{ u(x_1) \text{ tels que } u(x_1) = \sum_{j=1}^N u_j \chi_j(x_1), x_1 \in [0, x_{1f}], u_{min} \leq u_i \leq u_{max} \right\} \quad (3.9)$$

La résolution du problème de commande paramétrée optimale sur ce système projeté fournit un profil $u(x_1)$ qui correspond à une loi optimale de retour d'état. La projection du système conduit cependant à annuler l'influence du temps opératoire t_f sur le problème d'optimisation de x_2 . On obtient alors une commande optimale $u(x_1)$ qui optimise $x_2(x_{1f})$ sans tenir compte de la vitesse d'évolution de $x_1(t)$. D'une manière imagée, cela correspond à optimiser la trajectoire d'atterrissage d'un satellite "orbital" en ne considérant que son ombre projetée sur la surface. De fait, pour retrouver les résultats temporels, on doit reconstruire la commande temporelle $u(x_1(t))$. Il faut pour cela retrouver la trajectoire temporelle $x_1(t)$ qui, sous l'effet de la commande optimale projetée, conduit $x_2(x_1)$ le long de sa trajectoire optimale. D'un point de vue pratique, la trajectoire de $x_1(t)$ étant donnée par l'équation d'état $\dot{x}_1 = f_1(x_1, x_2(x_1), u(x_1))$, il suffit de déterminer le temps opératoire t_f qui, avec cette vitesse, atteint x_{1f} . La solution de ce type de problème conduit cependant à un temps opératoire t_f^* qui n'est en aucun cas exploitable car d'un ordre de grandeur très largement supérieur aux temps physiquement envisagés. On peut cependant vérifier qu'avec ce temps opératoire, les résultats projetés et les résultats "orbitaux" sont rigoureusement les mêmes. Une optimisation temporelle à temps fixé à $t_f = t_f^*$ conduit d'ailleurs aux mêmes résultats optimaux. Une optimisation "temporelle" du système à temps opératoire t_f libre conduit, pour sa part, à un temps optimal complètement différent. La valeur de t_f^* ne présente donc *a priori* aucune propriété particulière.

Conclusions

Le temps de calcul pour la résolution de problèmes où le temps opératoire est impliqué est un atout majeur de la procédure CVP. Dans cette approche, la résolution de ces problèmes ne présente pas de difficulté de programmation supplémentaire par rapport aux autres problèmes. La pratique montre cependant que les paramètres temporels sont malgré tout des paramètres très délicats à traiter dans les problèmes d'optimisation. Ceci est en partie dû à l'extrême sensibilité du système à ce type de paramètre. Les premières étapes du processus itératif rapprochent systématiquement le système de son état optimal mais la satisfaction de tous les critères de convergence à l'optimum est parfois difficile à assurer. Il semble que la précision des méthodes d'intégration soit à ce niveau un élément déterminant. Elle conduit à un calcul de gradient dont la précision doit impérativement être très élevée lorsque le paramètre considéré a une nature temporelle.

Une autre caractéristique importante de la procédure CVP est son aptitude à gérer les contraintes. Les temps de calcul CPU sont assez peu sensibles à la présence de contraintes. Que ce soit une contrainte de type terminal ou une contrainte sur la commande, les temps de calcul sont certes plus importants mais ils restent dans une gamme plus qu'acceptable si on compare la procédure CVP notamment aux méthodes de résolution du profil continu de la commande (BCI, CVI). La simplicité pour prendre en compte les bornes de $u(t)$ est d'ailleurs sans commune mesure par rapport au cas BCI ou CVI. En effet, la contrainte sur $u(t)$ est prise en compte dans l'algorithme SQP. Elle n'implique alors aucune variable adjointe ni gradient (du moins explicitement).

3.1.4 Collocation orthogonale

Application au système ABD

Les problèmes d'optimisation dynamique abordés par cette approche sont :

- (i) Maximisation de la concentration $C_B(t_f)$ à conversion de A imposée ou non,

$$\begin{aligned} \max_{\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i} J &= [\tilde{x}_{2,N+2}] \\ \text{soumis à : } R_{\tilde{x}}(\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i) &= 0 \\ \tilde{\mathbf{x}}_0 &= \mathbf{x}_0 \\ h_1(\tilde{\mathbf{x}}_{N+2}) &= \tilde{x}_{1,N+2} - x_{1f} \end{aligned} \quad (3.10)$$

- (ii) Minimisation du temps opératoire t_f à sélectivité de B imposée.

$$\begin{aligned} \min_{\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i, t_f} J &= t_f \\ \text{soumis à : } R_{\tilde{x}}(\tilde{\mathbf{x}}_i, \tilde{u}_i, t_f) &= 0 \\ \tilde{\mathbf{x}}_0 &= \mathbf{x}_0 \\ h_1(\tilde{\mathbf{x}}_{N+2}, t_f) &= \tilde{x}_{1,N+2} - x_{1f} \\ h_2(\tilde{\mathbf{x}}_{N+2}, t_f) &= \tilde{x}_{2,N+2} - x_{2f} \end{aligned} \quad (3.11)$$

La résolution est réalisée par SQP (NLPQL) où les gradients du critère et des contraintes terminales sont donnés par :

- (i) Max $C_B(t_f)$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial J}{\partial \tilde{x}_{2,N+2}} &= 1 \\ \frac{\partial h_1}{\partial \tilde{x}_{1,N+2}} &= 1 \end{aligned}$$

- (ii) Min t_f :

$$\begin{aligned} \frac{\partial J}{\partial t_f} &= 1 \\ \frac{\partial h_1}{\partial \tilde{x}_{1,N+2}} &= 1 \\ \frac{\partial h_2}{\partial \tilde{x}_{2,N+2}} &= 1 \end{aligned}$$

et les termes non spécifiés sont nuls.

Les gradients des contraintes résiduelles sont calculés par :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial R_{\tilde{x}_n}(t_k)}{\partial \tilde{x}_{m,i}} &= \delta_{nm} \dot{\ell}_i(t_k) - A_{nm}(\tilde{u}_k) \ell_i(t_k) \\
\frac{\partial R_{\tilde{x}_n}(t_k)}{\partial \tilde{u}_i} &= - \left[\frac{\partial A_{n1}(u_k)}{\partial u} \tilde{x}_{1k} + \frac{\partial A_{n2}(u_k)}{\partial u} \tilde{x}_{2k} \right] \ell_i(t_k) - \frac{\partial B_n(u_k)}{\partial u} \ell_i(t_k) \\
\frac{\partial R_{\tilde{x}_n}(t_k)}{\partial t_f} &= - \left[\frac{\partial A_{n1}(u_k)}{\partial t_f} \tilde{x}_{1k} + \frac{\partial A_{n2}(u_k)}{\partial t_f} \tilde{x}_{2k} + \frac{\partial B_n(u_k)}{\partial t_f} \right]
\end{aligned} \tag{3.12}$$

Les résultats des deux optimisations présentées ont été obtenus sans la moindre difficulté.

Paramètre	valeur
$\tilde{x}_{1,i}$	0.4
$\tilde{x}_{2,i}$	0.6
\tilde{u}_i	-1.50
t_f	3600.0
ϵ	10^{-6}

Tableau 3.10: Max $C_B(t_f)$, Min t_f : Initialisation de la collocation orthogonale.

Les données utilisées pour démarrer la résolution NLPQL sont résumées dans le tableau 3.10. Ce choix s'inspire des valeurs minimales et maximales de chacun des paramètres et de leur valeur nominale. La précision qui donne la convergence de NLPQL est plus faible que dans les autres utilisations de cette routine car la précision de l'approximation polynômiale peut être trop faible et poser des problèmes de convergence.

D'un point de vue numérique, les performances de la collocation orthogonale sont évaluées en étudiant les influences du couple (α, β) , du nombre de points N et des contraintes, sur le profil de la commande approximée. Ces performances sont illustrées dans le cadre de la maximisation de $C_B(t_f)$. La minimisation du temps conduit à des performances équivalentes. Pour pouvoir comparer ces performances avec celles des autres méthodes, le profil de commande approximé est utilisé pour réintégrer numériquement le système d'équations différentielles. Les valeurs des états, des contraintes et des critères peuvent alors être comparées.

L'influence du couple (α, β) sur la position des points de collocation a déjà été présentée dans le chapitre précédent. Elle se traduit par une influence non négligeable sur les profils approximés. En effet, dans le cas du système électrochimique ABD , la résolution du problème par d'autres méthodes, a montré que les profils optimaux varient principalement en fin d'opération. De plus, la borne minimale de la commande, quand elle est active, agit également en fin d'opération. Le "placement" des points de collocation doit donc être plus dense dans cette partie de l'intervalle. La figure 2.2 de la page 84 montre que le choix du couple $(0, 1)$ correspond à ce critère. La figure 3.21 montre l'influence de la distribution des points de collocation sur les profils de la commande approximative. Ces derniers sont comparés au profil exact issu de la résolution du PMP.

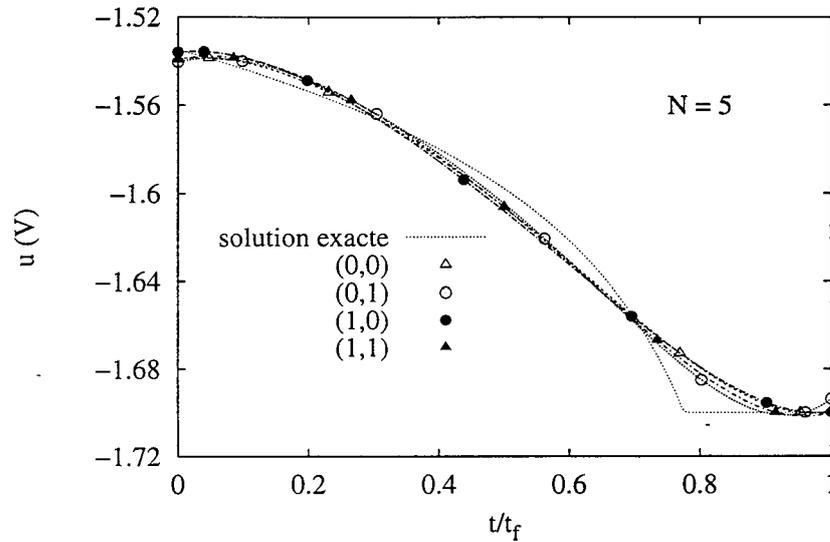


Figure 3.21: Influence de (α, β) sur le profil borné de $u(t)$.

L'influence de (α, β) sur le profil de commande est notable sans être toutefois importante. Cette différence des profils approximatifs se traduit en effet par de faibles déviations par rapport à l'optimalité. En effet, le critère atteint (par intégration numérique) à partir de ces profils s'écarte de moins de 0.14% du critère optimal exact. De même, la contrainte est satisfaite avec une erreur inférieure à 0.05%.

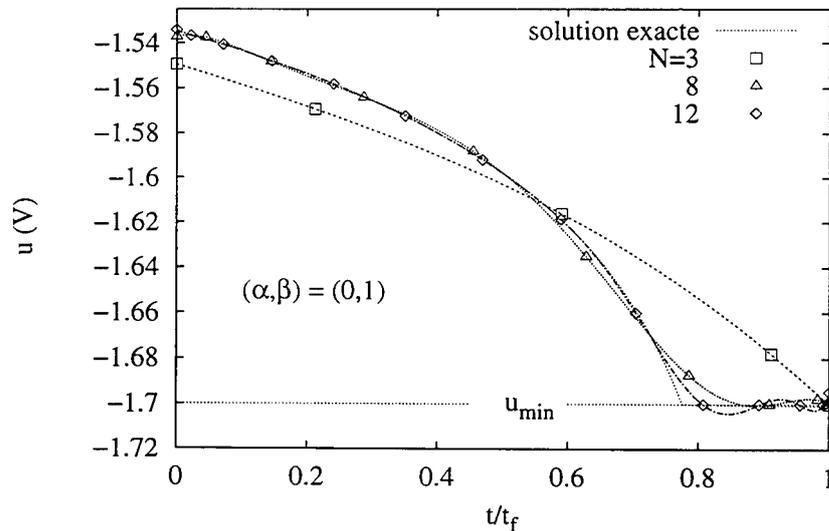


Figure 3.22: Influence de N sur le profil borné de $u(t)$.

Le nombre de points de collocation, N , est naturellement le paramètre le plus important de l'approximation polynômiale. Il permet d'ajuster la précision de l'approximation. En contrepartie, il accroît la complexité du système algébrique. La dimension du système algébrique est de $M(n+1)$ où n est la dimension de l'état. Comme dans le cas de la paramétrisation de la commande, il faut donc respecter un compromis entre précision et difficulté de résolution. L'influence sur le profil de la commande est illustrée par la

figure 3.22. Elle présente les profils approximatifs optimaux pour $N = 3, 5, 8$ et 12 points de collocation internes. Ces profils montrent que l'approximation est "graphiquement" satisfaisante pour un nombre de points de collocation N de l'ordre de 8. En effet, les profils obtenus pour $N = 3$ (3.22) et $N = 5$ (3.21) sont encore très différents du profils optimal exact. D'un point de vue numérique, le tableau 3.11 présente les valeurs du critère et de la contrainte obtenues en intégrant le système avec le profil de commande colloqué.

Nombre de point N	Critère $C_B(t_f) \text{ (mol.m}^{-3}\text{)}$	Contrainte $X_A(t_f)$
exacte	131.24	0.8000
3	113.05	0.7999
5	131.21	0.7998
8	131.31	0.7997
12	131.37	0.7998

Tableau 3.11: Influence de N sur les valeurs optimales du critère et de la contrainte.

Hormis le cas $N = 3$, les écarts par rapport à l'optimalité sont faibles tant au niveau du critère ($\leq 0.09\%$) qu'au niveau de la contrainte ($\leq 0.04\%$). Ces ordres de grandeur peuvent être tolérés dans la mesure où l'approximation porte sur l'optimisation d'un système dynamique de faible dimension ($n = 2$) mais fortement non-linéaire.

La figure 3.22 révèle des problèmes d'oscillations du profil de commande autour de sa borne u_{min} . Ces problèmes sont liés à la présence d'une discontinuité dans le profil optimal qui est incompatible avec une approximation polynômiale. On constate ainsi que la collocation peut conduire à une certaine "violation" de cette borne sur $u(t)$.

Lorsque le nombre de points est faible, l'amplitude de cette violation dépend alors fortement des choix de (α, β) et de N . En effet, ce choix permet de contrôler la densité de point autour de la discontinuité et permet donc d'adapter la forme polynômiale au plus proche de la discontinuité.

Lorsque le nombre de points est élevé, la forme polynômiale s'adapte parfaitement à la discontinuité et les phénomènes d'oscillation disparaissent comme le montre la figure 3.23 où le profil est approximé par 25 points de collocation internes.

Un compromis entre la précision de la solution et la complexité de la résolution est indispensable. La précision de la solution vient d'être présentée sous différentes formes. La complexité du problème peut être caractérisée par la durée nécessaire à sa résolution. Le tableau 3.12 présente les temps de calculs CPU nécessaires à la résolution des différents problèmes. Ces temps sont présentés pour deux valeurs du nombre de points de collocation.

On constate ainsi que le nombre de points est très influant sur les temps de calcul mais ces derniers restent plus que raisonnables même pour N "élevé". D'autre part, les temps nécessaires pour résoudre les problèmes approximés sont sans comparaison avec ceux présentés dans les autres sections.

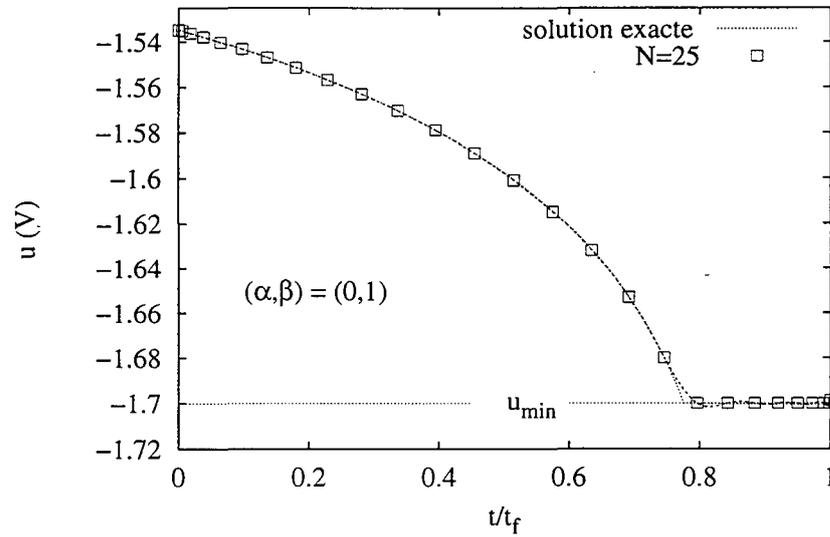


Figure 3.23: Disparition des oscillations sur le profil borné de $u(t)$.

Problème	Temps CPU (s)	
	$N = 3$	$N = 12$
Max $C_B(t_f)$	0.9	18.1
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$	1.4	14.1
Min t_f	3.3	56.0
Max $C_B(t_f)$, $X_A = 0.8$, $u \leq u_{min}$	1.5	25.6
Min t_f , $u \leq u_{min}$	1.7	44.0

Tableau 3.12: Collocation: Temps de calcul CPU (Station HP-UX 9000/712).

Les résultats obtenus concernant les propriétés de la collocation orthogonale montrent qu'elle constitue une technique très performante pour la résolution des problèmes d'optimisation dynamique approximatifs. Cette qualité est attachée d'une part à sa rapidité de convergence mais aussi à la simplicité de gestion des contraintes sur l'état et la commande. L'échec de la procédure de résolution du TPBVP montre par ailleurs que la résolution est relativement peu robuste car très sensible à l'initialisation et au domaine de recherche. De plus, son plus grand défaut réside dans l'effort de programmation nécessaire à chaque type de problème. En effet, le changement de critère d'optimisation, la présence de contraintes terminales imposent la réécriture des fonctions résiduelles et de leurs gradients (Jacobien) et il est difficile de fournir un algorithme qui soit capable de s'adapter à une grande variété de problèmes même si on considère un même procédé. Enfin, cette technique procure des solutions intermédiaires du type non faisable. En effet, en cours d'itération, la solution ne satisfait ni la condition d'optimalité ni les contraintes différentielles du problème (équations d'état). Elle ne peut donc pas être utilisée avant la convergence du processus de résolution.

3.1.5 Conclusions

Une étude non exhaustive des méthodes pour résoudre les problèmes d'optimisation dynamique a été réalisée. La distinction de ces méthodes est basée sur le degré d'approximation des variables d'état et de commande. On a ainsi distingué les formes :

- continues-continues
- continues-paramétrées
- paramétrées-paramétrées

De cette étude, il découle un certain nombre de conclusions générales qui peuvent être utilisées dans le cadre de l'optimisation dynamique appliquée à d'autres procédés.

- Les différentes méthodes conduisent toujours à la même solution optimale à la précision près qui dépend du degré d'approximation.
- Le compromis précision / vitesse est fondamentale. Les méthodes continue-continues (BCI, CVI, Quasi-linéarisation) fournissent des solutions très précises et sont donc intéressantes dans un contexte académique. Dans un contexte industriel, certaines d'entre elles (CVI, quasi-linéarisation) peuvent également être envisagées mais la technique CVP reste dans ce domaine la mieux adaptée. La collocation est une solution intermédiaire entre ces deux extrêmes.
- Une des raisons des remarques précédentes provient de la difficulté des méthodes continues à gérer les contraintes du problème. Dans cette optique, la collocation devient la méthode la plus souple car elle permet de gérer simplement à la fois, les contraintes sur la commande et celles sur l'état.
- La flexibilité de la méthode vis à vis d'un changement de critère, de contrainte ou de modèle n'est pas une caractéristique qui favorise toutes ces méthodes, notamment au niveau d'un changement de modèle. Elles sont, à ce niveau, à peu près équivalentes en comparaison avec la programmation dynamique itérative (IDP).

- Une autre des caractéristiques communes à toutes ces méthodes concerne les problèmes de convergence posés lorsque les grandeurs optimisées ont une signification temporelle (temps final t_f ou temps de commutation).

Les conditions optimales de fonctionnement de procédés électrochimiques ont été déterminées à l'aide de ces différentes techniques numériques. Elles sont présentées et discutées dans les sections suivantes.

3.2 Système AB

Cette section est consacrée aux résultats de l'optimisation de la consommation globale d'énergie électrique dans le schéma réactionnel AB .

Dans un premier temps, un exemple de conditions optimales de fonctionnement est présenté. L'influence des paramètres opératoires tels que la résistance R_e de la solution électrolytique, les paramètres de transfert k_{dA} , $\tau_k = k_{dB}/k_{dA}$ ou le taux de conversion X_{Af} imposé est décrite dans une deuxième partie. Dans cette même partie, les améliorations du critère énergétique entre le mode de fonctionnement statique et le mode optimisé sont présentées. Dans une troisième partie, les profils optimaux sont comparés aux profils issus des meilleures opérations à courant constant.

Les conditions opératoires de référence utilisées pour obtenir les conditions optimales de fonctionnement ont été résumées dans les tableaux 1.1 et 1.7 des pages 38 et 46.

La majorité des résultats est obtenue par la technique d'itérations sur les conditions initiales (BCI).

Avant de commencer la description des résultats, il est nécessaire de souligner les différentes formes que ces derniers peuvent prendre. On distingue en effet, les résultats sous forme adimensionnelle x , u , Z_c et Z_a et ceux aux dimensions S.I. Les variables adimensionnelles résultent de la transformation du système et sont celles utilisées lors de l'optimisation dynamique du système. Les grandeurs dimensionnelles sont reconstruites à partir des résultats adimensionnels. Bien qu'*a priori* sans intérêt, certains résultats adimensionnels sont présentés car ils montrent l'existence de conditions de fonctionnement qui possèdent un sens physique intéressant.

3.2.1 Conditions optimales de fonctionnement

Les figures 3.24, 3.25, 3.26, 3.27 présentent respectivement les profils optimaux du taux de conversion X_A , de la variable de commande $u = I/I_L$, des surtensions aux électrodes E_c et E_a et de la tension de cellule U_c .

Les conditions opératoires pour lesquelles ces profils sont déterminés, ont été fournies dans le tableau 1.1 à la page 38.

L'évolution optimale du taux de conversion X_A (et de la concentration C_A) est de nature linéaire. Le profil optimal de l'intensité du courant est présenté sur la figure 3.33 pour $R_e = 5.0 \Omega$. Ce profil est reconstruit à partir du profil optimal de la figure 3.25 en couplant ce dernier avec le profil opératoire du courant limite de diffusion I_L . Ces résultats exprimés en termes de potentiel permettent de vérifier la faisabilité des conditions optimales. On constate en effet que le potentiel de cellule et les surtensions aux électrodes varient dans un intervalle physiquement réaliste.

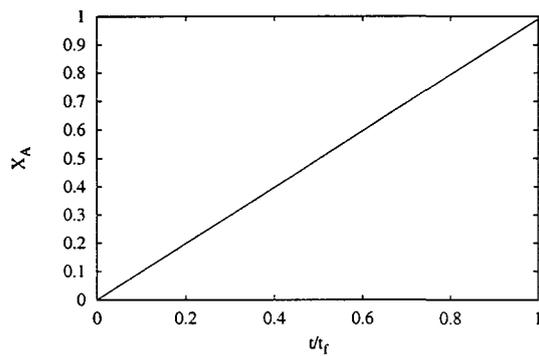


Figure 3.24: Exemple de trajectoire optimale du taux de conversion de A.

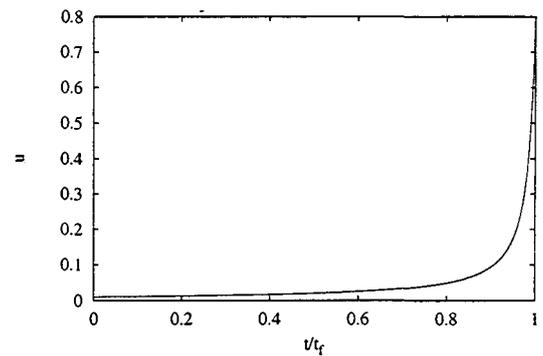


Figure 3.25: Exemple de profil de commande optimale.

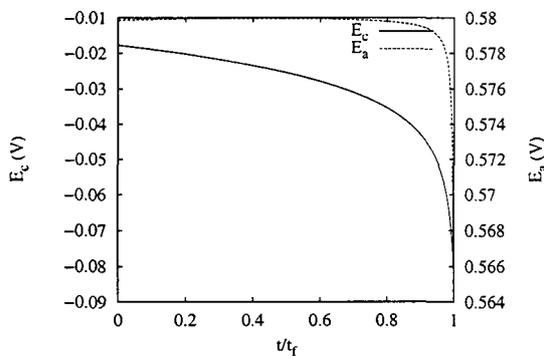


Figure 3.26: Exemple de trajectoire optimale des surtensions.

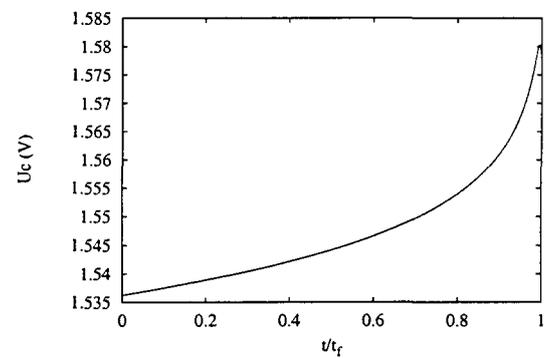


Figure 3.27: Exemple de trajectoire optimale de la tension de cellule.

3.2.2 Comparaison des fonctionnements statiques et optimisés

La détermination du profil optimal de commande est réalisée au moyen de la variable de commande $u = I/I_L$. Le profil optimal de l'intensité du courant est ensuite reconstruit à partir des profils de $u(t)$ et de $I_L(t)$.

Les performances obtenues par optimisation de cette variable $u(t)$ sont comparées à celles obtenues pour la meilleure opération à u constant et à I constant.

Il est nécessaire de distinguer ces deux modes de référence pour pouvoir discuter de l'optimalité des résultats obtenus. Une brève description des caractéristiques des modes de fonctionnement u et I constants, est présentée.

Comparaison avec le mode de fonctionnements à u constant

La comparaison des résultats issus d'un profil de commande u optimisé et d'un profil de commande u constant permet d'évaluer l'optimalité des résultats. En effet, la notion d'optimalité est difficile à vérifier et elle doit toujours être rapportée à une référence. Nous avons souvent comparé les résultats de l'optimisation dynamique à ceux des meilleures opérations statiques (à u constant).

La figure 3.28 présente la comparaison d'un profil de commande u optimisé avec le meilleur profil de commande u uniforme. Les conditions opératoires sont rappelées sur la figure. Elles ont été choisies dans une gamme où la différence entre les deux profils est volontairement maximale. La reconstruction des profils de l'intensité du courant I pour ces deux modes de fonctionnement est illustrée sur la figure 3.29. Elle est basée sur le produit $I = u * I_L$. On constate donc sur les profils u et I optimisés, que les variations de u ne correspondent pas systématiquement à des fortes variations de I . Inversement, un profil constant de u peu conduire à un profil exponentiellement variable de I .

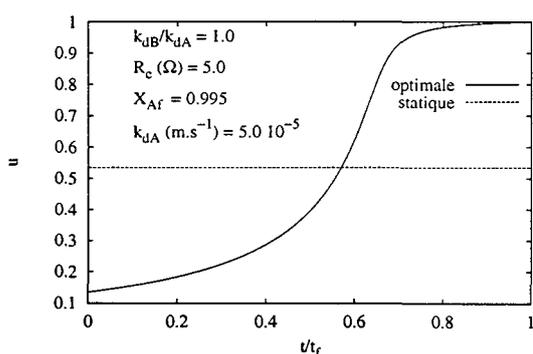


Figure 3.28: Comparaison de u constant et du profil de la variable de commande u .

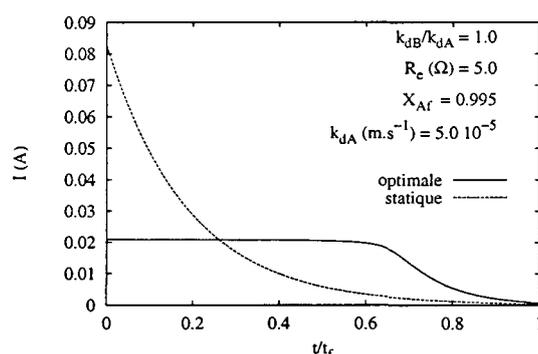


Figure 3.29: Comparaison à u constant, des profils de l'intensité I .

Le mode u constant est un mode de référence où l'intensité varie avec le temps. Ce mode de fonctionnement n'est cependant pas industriellement usuel. Seule l'optimalité des résultats numériques peut alors être soulignée. Elle n'a donc qu'un intérêt académique. D'un point de vue industriel, il est plus important de comparer les performances des modes galvanostatiques et optimisés.

Comparaison avec le mode de fonctionnements à I constant

Le meilleur mode de fonctionnement à I constant est présenté sur les figures 3.30 et 3.31 où il est comparé au mode optimal. Comme précédemment, l'uniformité du profil du courant correspond à un profil de commande u variable. La figure 3.30 montre peu de différences entre les deux profils d'intensité à l'exception de la fin de l'opération. Il sera en effet montré dans les sections suivantes que, lorsqu'il peut atteindre les objectifs spécifiés, le mode galvanostatique conduit à un critère très proche du critère optimal. Cette optimalité du mode statique se traduit naturellement par la détermination d'un profil optimisé uniforme.

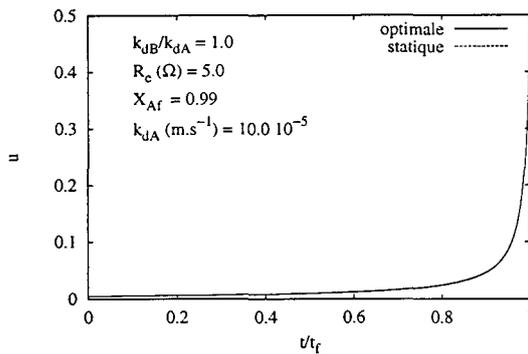


Figure 3.30: Comparaison à $I = cst$, des profils de la variable de commande u .

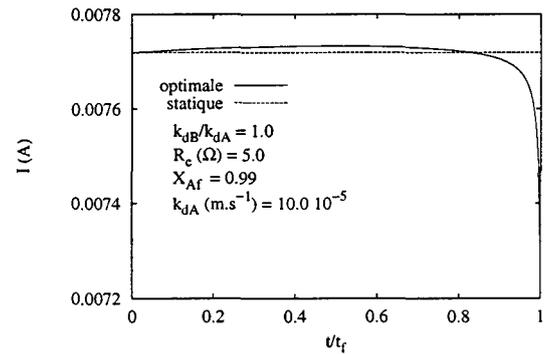


Figure 3.31: Comparaison de $I = cst$ et du profil de l'intensité I .

Le mode galvanostatique permet d'atteindre un nombre limité d'objectifs. En effet, la valeur constante de I doit satisfaire à chaque instant la contrainte $I < I_L$ et en particulier à l'instant final où le courant limite est le plus faible. La borne supérieure de I est donc imposée par $I < I_L(t_f)$. Un mode de fonctionnement permet de réduire les effets de cette contrainte. Il suffit de fonctionner à courant I constant jusqu'à ce que la contrainte $I < I_L$ devienne active et d'opérer ensuite à courant limite I_L . Un profil de ce type est comparé au profil optimal de I sur la figure 3.32. Cette dernière montre de nouveau la non-optimalité de ce mode de fonctionnement hybride. Cependant, la valeur du critère s'écarte de moins de 0.5% de la valeur optimale. De plus, ce mode permet de palier à la limitation mentionnée précédemment.

3.2.3 Influence des paramètres opératoires

Le nombre de paramètres qui interviennent dans le modèle du réacteur AB est assez élevé pour qu'on ne puisse, pour des raisons de place, en discuter exhaustivement, l'influence. Cette étude est donc limitée. Les paramètres considérés sont la résistance de la solution électrolytique R_e , les conditions de transfert de matière aux interfaces liquides / solides des électrodes k_d et la contrainte de conversion X_A du réactif. On étudie ainsi un paramètre qui intervient directement dans le critère énergétique défini, un paramètre qui intervient dans les phénomènes cinétiques/diffusionnels du système et un paramètre qui intervient dans les contraintes opératoires imposées.

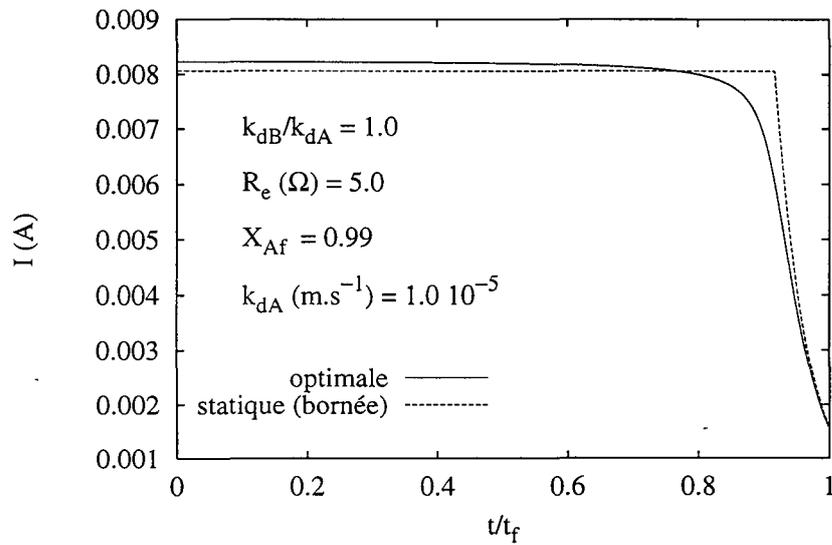


Figure 3.32: Comparaison I constant, profil optimal et uniforme/borné de l'intensité I .

Résistance de la solution électrolytique

Le critère énergétique considéré est défini par la relation (1.42) à la page 46. L'influence de la résistance de la solution électrolytique se traduit ainsi par une pondération plus ou moins importante de la consommation d'énergie électrique dues aux pertes par effet Joule.

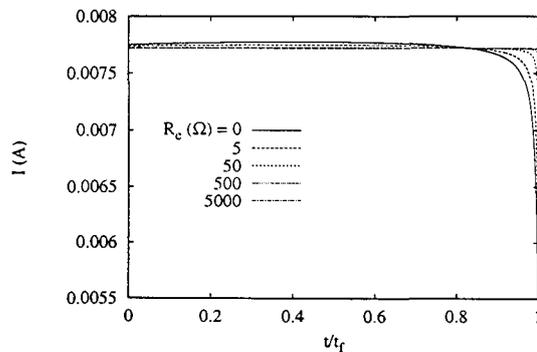


Figure 3.33: Influence de R_e , profil optimal de l'intensité I .

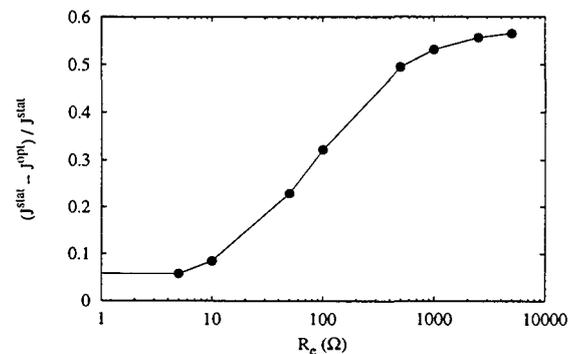


Figure 3.34: Influence de R_e , amélioration par rapport au fonctionnement à u constante.

La figure 3.33 illustre l'influence de cette résistance sur le profil optimal du courant. Ces profils sont obtenus par résolutions successives du problème pour 5 valeurs de R_e . La valeur $R_e = 0\Omega$ n'a pas de sens physique mais elle caractérise un cas limite intéressant. Pour les faibles valeurs de R_e , on constate que les profils optimaux ne sont pas uniformes. Ces derniers présentent en effet des faibles variations au milieu de l'opération puis une brusque variation en fin d'opération. Ces profils montrent ainsi que le profil de courant uniforme n'est pas forcément optimal. Pour les fortes valeurs de R_e , les profils optimaux du courant sont quasiment uniformes. Le terme de perte d'énergie par effet Joule devient prépondérant et le critère s'exprime

simplement sous la forme :

$$J = \int_0^{t_f} R_e I^2 dt$$

Dans ce cas, la non-linéarité du système due aux termes cinétiques disparaît et il ne reste qu'un critère quadratique soumis à des contraintes linéaires. on peut montrer qu'avec cette définition de J , la solution du Principe du Maximum conduit à I constant (Latifi et al., 1991). D'un point de vue physique, Tondeur et Kvaalen (1987) ont par ailleurs montré que, pour les procédés de transfert ou de séparation, les relations Flux-Force linéaires ($I = (1/R_e)U_c$) conduisent à traduire la minimisation de la production d'entropie par l'équi-répartition du flux (ici, I).

La figure 3.34 montre l'amélioration relative du critère entre une opération à commande u constante et une opération à commande u optimisée. Dans cette approche, l'optimalité des résultats numériques n'est plus à démontrer puisque les améliorations varient de 3 à 56% selon la valeur de R_e .

En terme d'amélioration par rapport aux performances de la meilleure opération à intensité I constante, les valeurs sont trop faibles pour que l'optimisation du profil du courant présente, à la vue de ces seuls résultats, un intérêt industriel. Cette première étude permet donc de montrer la non-optimalité du mode de fonctionnement galvanostatique mais avec un intérêt purement académique.

Transferts de matière

Compte tenu des résultats de la sous-section précédente, l'influence des conditions de transfert de matière est étudiée dans le cas d'une faible valeur de la résistance de la solution électrolytique ($R_e = 5.0 \Omega$).

L'étude de l'influence du transfert de matière est décomposée en deux parties. Dans un premier temps, l'influence du transfert des composés à la surface de l'électrode est étudiée à travers le coefficient k_{dA} avec, par ailleurs, un rapport $r_k = k_{dB}/k_{dA}$ constant et égal à 1.0. Dans un second temps, l'influence de la différence entre les vitesses de transfert de ces deux espèces est présentée en étudiant l'influence de r_k pour $k_{dA} = 5.0 \cdot 10^{-5} m.s^{-1}$.

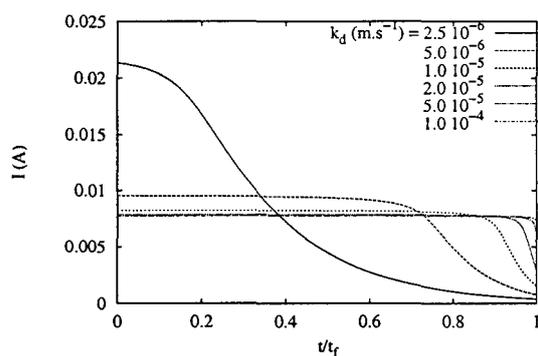


Figure 3.35: Influence de k_{dA} , profil optimal de l'intensité I .

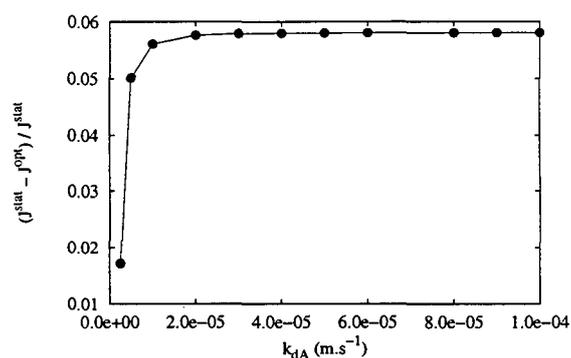


Figure 3.36: Influence de k_{dA} , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant.

La figure 3.35 présente les profils optimaux de l'intensité du courant pour des valeurs de k_{dA} variant de $2.5 \cdot 10^{-6}$ à $1.0 \cdot 10^{-4} m.s^{-1}$. Cette étude couvre donc une large gamme de

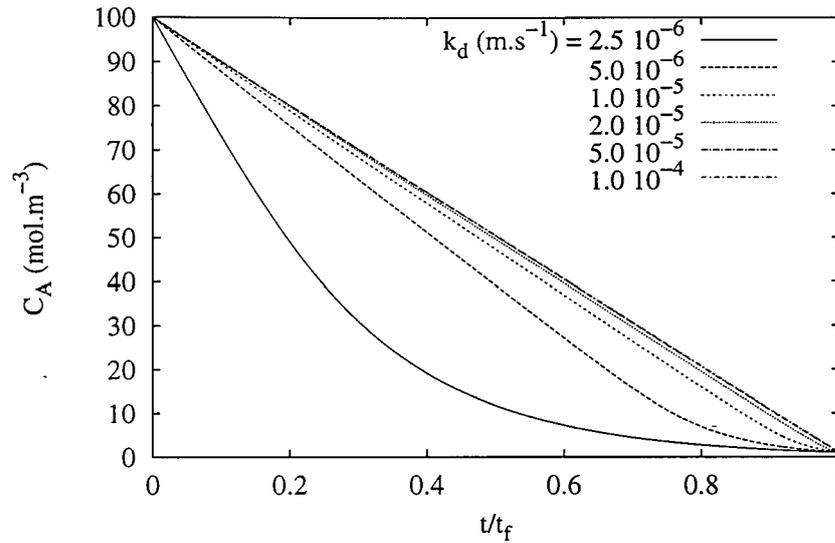


Figure 3.37: Influence de k_{dA} , trajectoires optimales de la concentration C_A .

conditions de transfert. Elle montre que l'optimalité du profil uniforme de courant disparaît pour les faibles valeurs des coefficients de transfert. Dans ces conditions, il semble qu'une répartition non-uniforme du courant permette de s'adapter aux limitations provoquées par la lenteur de la migration des espèces entre le coeur de la solution et la surface de l'électrode.

Les profils des concentrations C_A résultant de l'application de ces profils de commande sont illustrés à titre d'exemple sur la figure 3.37. Cette figure montre une variété de profils allant d'une tendance linéaire (pour I constant) à une tendance exponentielle (pour u constant).

Les améliorations relatives du critère entre opérations à $u(t)$ optimisé et à u constant sont présentées sur la figure 3.36. On vérifie l'optimalité des profils grâce aux valeurs positives de ces améliorations. D'autre part, on constate que les améliorations sont constantes (environ 5%) pour une large gamme de conditions de transfert. On remarque également une brusque diminution de ces améliorations pour $k_{dA} < 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$. Cette diminution correspond à une uniformisation du profil optimal de la variable de commande $u(t)$ limitée par la contrainte $u \leq 1$.

Les améliorations entre opérations à courant optimisé et à courant constant sont faibles et ne présentent pas un grand intérêt pour $k_{dA} \geq 5.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$. Cependant, un des intérêts de l'optimisation du profil du courant apparaît pour les valeurs de $k_{dA} \leq 5.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$. En effet, dans ces conditions, il est impossible dans un mode de fonctionnement galvanostatique, d'atteindre les taux de conversion imposés. En revanche, l'introduction de profils temporels du courant donne un degré de liberté supplémentaire qui lève cette impossibilité. L'optimisation dynamique permet donc d'étendre très largement la gamme des conditions opératoires du procédé. La limitation de cette gamme qui subsiste est alors liée à un fonctionnement où, pendant toute la durée de l'opération, le courant est égal au courant limite de diffusion : cas où $u = 1$ (contrainte (1.46)). Ce cas correspond à des conditions opératoires qui ne satisfont pas la contrainte (1.45) de la page 46.

L'influence du rapport r_k des coefficients de transfert est présentée sur la figure 3.38 qui

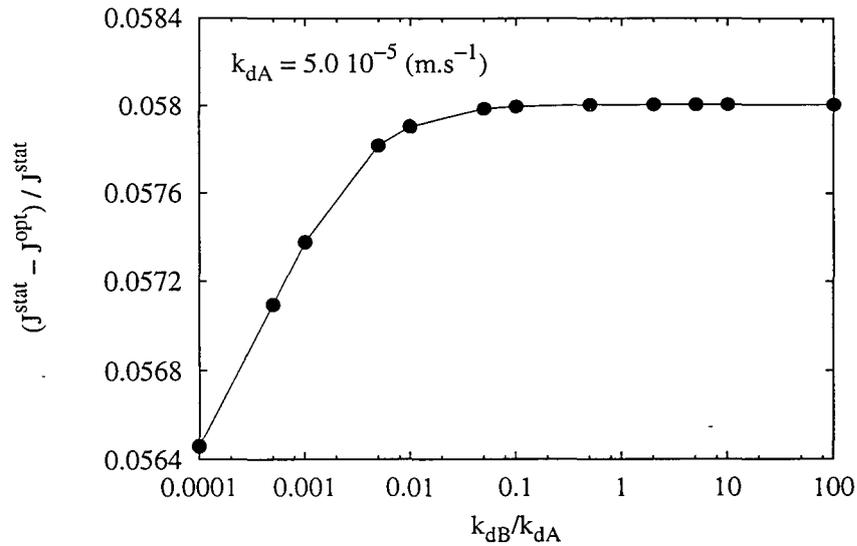


Figure 3.38: Influence de r_k , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant.

fournit les améliorations du critère par rapport au mode de fonctionnement à u constant. Les profils optimaux du courant ne sont pas présentés car ce paramètre n'a pas beaucoup d'influence sur ces derniers ni même sur les profils optimaux de la variable de commande u . La légère baisse de l'amélioration présentée pour les faibles valeurs du rapport r_k est donc difficile à justifier.

Taux de conversion X_{Af}

L'utilisation de la concentration sous une forme adimensionnelle $x = 1 - C_A/C_{A0}$ permet de mettre en évidence la nature de la dépendance du problème des conditions de concentrations de démarrage et de fin de procédé. En effet, la formulation des problèmes d'optimisation dynamique est rigoureusement identique que l'on fasse varier les conditions initiales ou les conditions terminales. L'influence du taux de conversion X_A est donc étudiée en considérant un même problème pour différentes concentrations initiales C_{A0} . Les résultats sont présentés en fonction soit des concentrations initiales soit du taux de conversion imposé X_{Af} .

Les figures 3.39 et 3.40 présentent respectivement les profils optimaux de la variable de commande u et de l'intensité du courant pour différentes concentrations initiales C_{A0} .

Ces deux figures montrent que les profils de u et de I n'évoluent pas pendant la majeure partie de l'opération. Les variations sont en effet observées dans les derniers instants. Lorsque la concentration initiale est élevée (ou pour un fort taux de conversion imposé), l'intensité du courant est naturellement plus importante. Le système évolue ainsi plus près de ses conditions limites de diffusion comme le montrent les profils de u qui se rapprochent de la borne $u = 1$ en fin d'opération. Pour les concentrations initiales plus faibles, les conditions opératoires du courant sont plus faibles et le système évolue loin de ses limites ($u \ll 1$). Les résultats sont, de ce point de vue, cohérents avec les objectifs de conversion imposés.

D'un point de vue énergétique, la comparaison des critères obtenus avec ceux des meilleures opérations à u constant conduit à la figure 3.41. L'optimalité des résultats dans

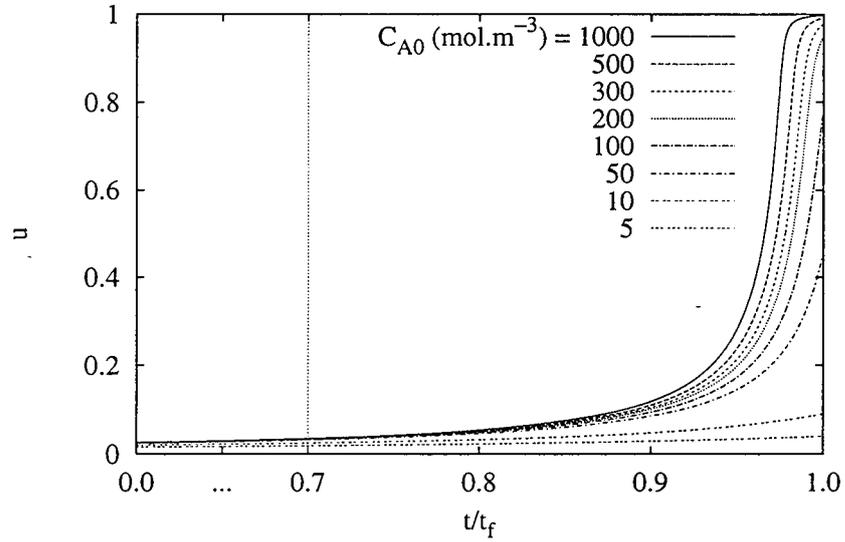


Figure 3.39: Influence de X_{Af} , profil optimal de la variable de commande u .

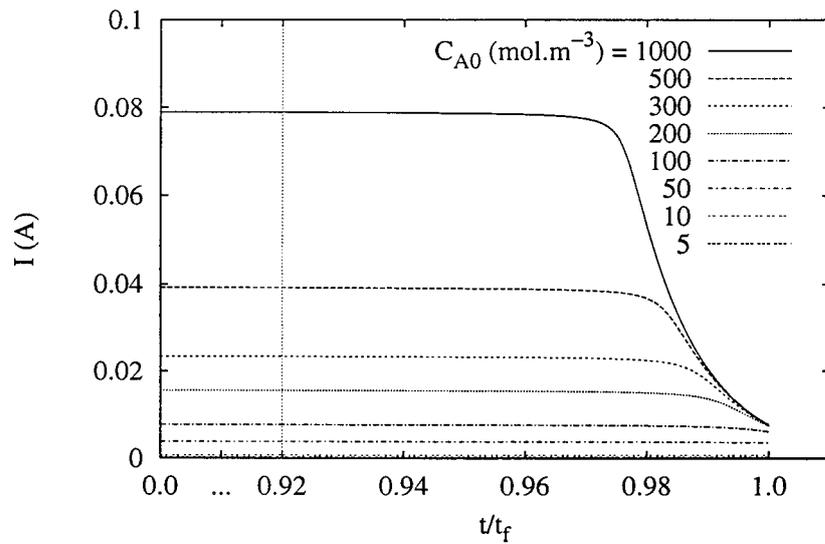


Figure 3.40: Influence de X_{Af} , profil optimal de l'intensité I .

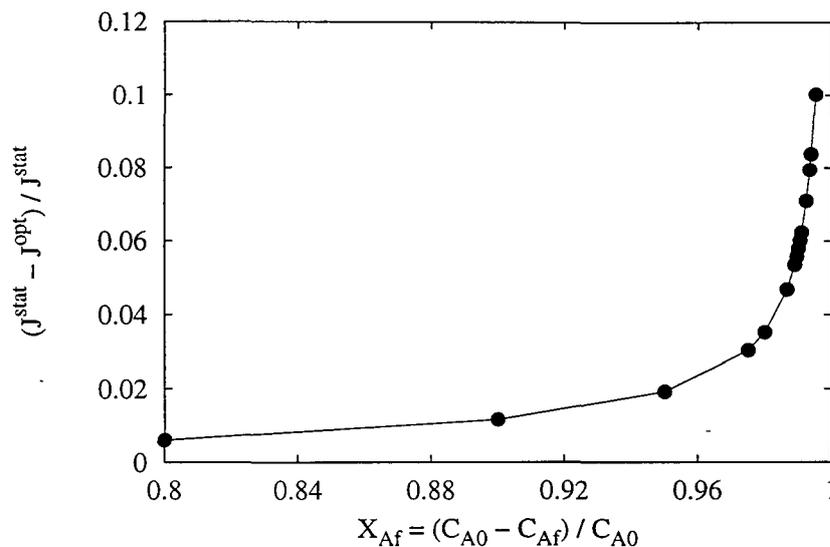


Figure 3.41: Influence de X_{Af} , amélioration par rapport au fonctionnement à u constant.

le contexte de l'optimisation numérique est donc de nouveau vérifiée. On retrouve également une baisse de l'amélioration lorsque les taux de conversion imposés sont plus faibles, c'est-à-dire, lorsque les profils de u varient peu. En termes d'amélioration par rapport à la meilleure opération galvanostatique, les améliorations restent très faibles (0.002%) pour $C_{A0} \leq 100 \text{ mol.m}^{-3}$. En effet, les profils de I sur la figure 3.40 montrent que les profils optimaux sont quasiment uniformes. Par contre, comme dans le cas des faibles coefficients de transfert, aucune opération galvanostatique ne permet d'atteindre les conditions spécifiées pour $C_{A0} > 100 \text{ mol.m}^{-3}$. L'optimisation dynamique du courant permet donc d'élargir la gamme des taux de conversion imposés dans une très large mesure tout en minimisant la consommation d'énergie.

Cette remarque est très importante dans un contexte industriel car les fortes conversions permettent de limiter les rejets de réactifs, d'éviter de recourir à des procédés de séparation qui peuvent être complexes ou d'exploiter au maximum des réactifs parfois coûteux.

3.2.4 Conclusions

L'optimisation dynamique permet de déterminer les profils optimaux de l'intensité du courant qui minimisent la consommation globale d'énergie électrique. D'un point de vue, numérique, les résultats ont souligné l'optimalité du profil de la variable de commande $u(t)$ ainsi déterminé. Du point de vue pratique, les améliorations par rapport au mode de fonctionnement usuel dans l'industrie sont négligeables. Les quantités d'électricité disponibles dépendent de la quantité de matière convertie. Elles sont donc les mêmes dans les deux types d'opérations (optimisée et statique). Il n'est donc pas vraiment inconcevable que les améliorations entre ces deux modes opératoires soient aussi faibles. L'optimisation dynamique a en revanche montré ses qualités à travers son degré de liberté (temporel) supplémentaire qui permet de distribuer la quantité d'électricité de manière à atteindre des conditions de fonctionnement exclues dans un mode galvanostatique. Un mode de fonctionnement intermédiaire constitué d'une portion à I constant et d'une portion à $I = I_L$, peut cependant être déterminé d'une manière très simple. Il permet d'approcher,

mais sans jamais les atteindre, les performances obtenues par l'optimisation dynamique du courant.

3.3 Système ABD

L'optimisation du fonctionnement dynamique du réacteur électrochimique ABD est réalisée en considérant plusieurs critères. Pour ces problèmes, la plupart des méthodes présentées dans la section concernant l'optimisation dynamique ont été appliquées. Il en résulte un très grand nombre de résultats numériques qui ne peuvent pas tous être présentés dans ce document. Ces résultats sont cependant de nature très diverses car ils peuvent concerner à la fois les aspects numériques des méthodes d'optimisation dynamique et les aspects pratiques de mise en oeuvre expérimentale avec des considérations techniques (faisabilité) ou des considérations économiques (rentabilité).

Les résultats de trois de ces problèmes sont effectivement présentés. Il s'agit des problèmes de maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ à taux de conversion imposé ou non, et du problème de minimisation du temps opératoire à sélectivité donnée.

3.3.1 Maximisation de la concentration de B à taux de conversion de A libre

Pour le problème de la maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$, les conditions optimales de fonctionnement sont présentées à travers l'étude de l'influence des principaux paramètres opératoires, à savoir les conditions de transfert de matière et la durée opératoire.

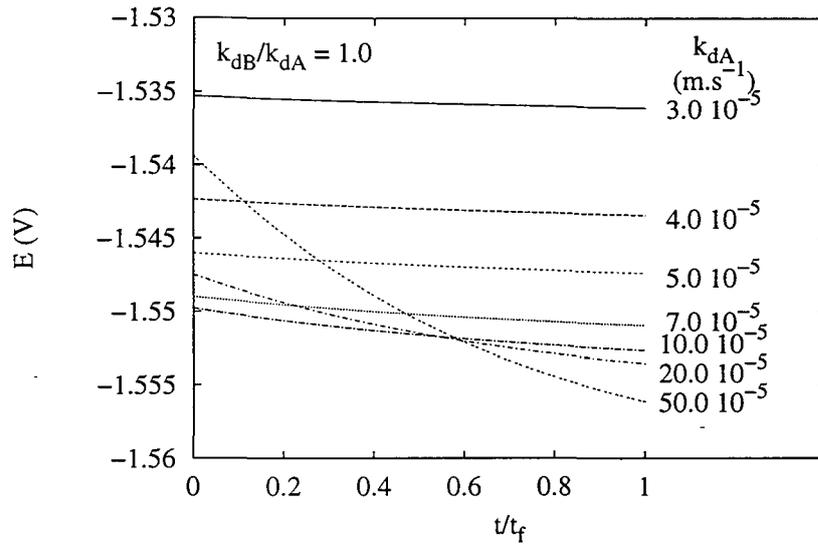
Influence des conditions de transfert de matière

L'influence des conditions de transfert de matière est étudiée en considérant les influences du coefficient de transfert de matière k_{dA} et du rapport $r_k = k_{dB}/k_{dA}$. Les résultats sont présentés sous la forme de profils temporels des variables et sous la forme de conditions terminales optimales, pour différentes valeurs des paramètres opératoires.

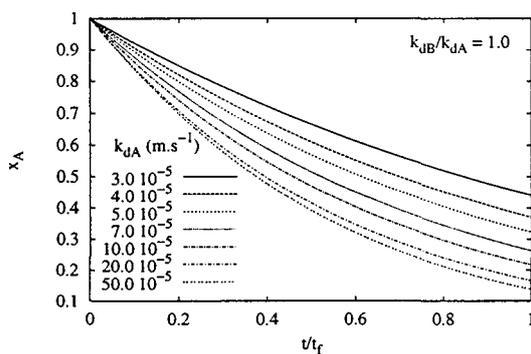
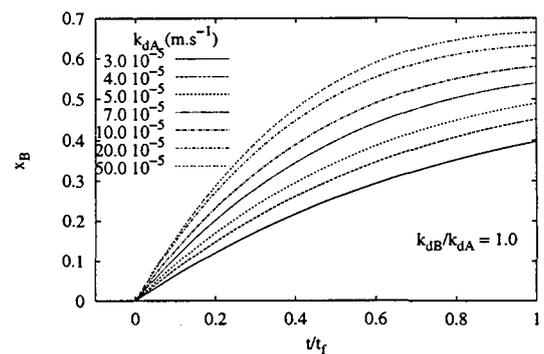
La figure 3.42 présente les profils optimaux du potentiel d'électrode obtenus pour différents coefficients de transfert k_{dA} et avec $r_k = 1.0$. On considère ainsi l'influence de la vitesse de transfert de matière de tous les constituants à travers un seul paramètre.

On distingue deux types de profils. Pour les coefficients $k_{dA} \leq 7.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$, les profils optimaux de u ont une tendance uniforme. Les phénomènes de transfert peuvent limiter l'apport et l'évacuation des produits et réactifs à la surface de l'électrode. Le contrôle de la cinétique au moyen du potentiel a alors peu d'influence sur la production de B (régime diffusionnelle). Dans ces conditions, pour limiter la consommation de B par la réaction parasite, il est nécessaire de diminuer, en valeur absolue, le niveau du potentiel d'électrode comme le montrent les profils pour k_{dA} de 3.0 à $7.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$.

Le second type de profil est obtenu pour des coefficients de transfert de matière élevés. Dans ce cas, la production maximale est obtenue en appliquant un profil de potentiel décroissant. On peut penser qu'au début de l'opération, on bénéficie ainsi des fortes concentrations en A et des faibles concentrations en B pour profiter, avec une faible valeur absolue du potentiel, de la différence des cinétiques des réactions ($\beta_1 > \beta_2$). Lorsque la concentration en A diminue, le potentiel est progressivement augmenté pour poursuivre

Figure 3.42: Influence de k_{dA} sur le profil optimal de u .

la conversion de A dont le flux n'est pas limité par le transfert. Cette conversion de A en B augmente la concentration finale en B , au prix d'une certaine conversion de B en D . Ce type d'interprétation à partir du seul profil de commande optimal, est toutefois délicat. En effet, les variations de k_{dA} traduisent, à r_k constant, des variations de tous les coefficients de transfert et influent donc directement sur toutes les réactions impliquées. De plus, malgré sa faible dimension, le système est fortement non-linéaire et le profil du seul potentiel ne permet pas de caractériser tous les phénomènes qui se produisent au cours du processus discontinu (notamment le transfert de matière). Malheureusement, la description de *tous* ces phénomènes n'est pas envisageable dans ce mémoire. Les résultats présentés se limitent ainsi aux profils optimaux des grandeurs opératoires comme les concentrations (ou les titres), l'intensité et le potentiel.

Figure 3.43: Influence de k_{dA} sur le profil optimal de x_A .Figure 3.44: Influence de k_{dA} sur le profil optimal de x_B .

Les figures 3.43 et 3.44 présentent les profils des titres des espèces A et B correspondant aux profils de commande précédents. Ces profils montrent que les coefficients de transfert de A élevés conduisent à des taux de conversion $X_A = 1 - x_A/x_{A0}$ plus élevés. L'optimisation de $C_B(t_f)$ permet ainsi d'atteindre des concentrations de B également plus élevées

en limitant la transformation de B en D .

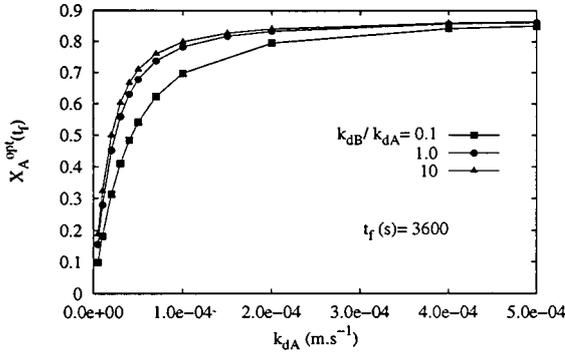


Figure 3.45: Influence de k_{dA} sur la valeur finale optimale de x_A .

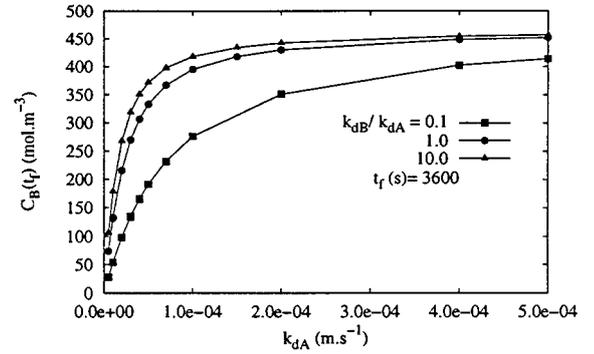


Figure 3.46: Influence de k_{dA} sur la valeur finale optimale de $C_B(t_f)$.

Le taux de conversion X_A et la concentration $C_B(t_f)$ optimaux sont donnés sur les figures 3.45 et 3.46 en fonction des valeurs du coefficient k_{dA} et pour trois rapports des coefficients de transfert r_k . Ces figures confirment que plus les vitesses de transfert de A et de B sont rapides, meilleurs sont les taux de conversion de A et les concentrations $C_B(t_f)$ que l'on peut atteindre. Cette constatation est comparable à celle que l'on peut faire dans le cas d'un fonctionnement à potentiel constant. Ces figures localisent également, dans le cas de profils optimisés, le domaine où le régime est limité par le transfert. En effet, les taux de conversion optimaux obtenus pour $k_{dA} \leq 20 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ sont nettement plus sensibles aux phénomènes de transfert. De même, les conditions terminales optimales de conversion et de concentration sont plus faibles pour le rapport $r_k = 0.1$ (la lente évacuation de B de la surface de l'électrode favorise la production du constituant parasite D).

La similitude des résultats avec ceux obtenus dans le cas d'un fonctionnement potentiostatique permet de conclure quant à la cohérence des résultats optimaux. Du point de vue de l'optimalité, il est nécessaire de comparer les performances du système optimisé avec celles d'un système en fonctionnement statique. Pour cela, deux modes de fonctionnement potentiostatique sont envisagés. On détermine la valeur optimale du potentiel d'électrode qui, respectivement, maximise la concentration $C_B(t_f)$ (optimisation statique) ou qui atteint le même taux de conversion X_{Af} que celui atteint dans le cas optimisé. Les concentrations finales des deux modes statiques sont comparées à celles obtenues dans le mode de fonctionnement optimal. Cette comparaison est exprimée sous la forme d'une amélioration relative du critère J (ici $C_B(t_f)$) :

$$\text{Amélioration} = \frac{(C_B^{opt}(t_f) - C_B^{stat}(t_f))}{C_B^{stat}(t_f)} \quad (3.13)$$

Ces deux modes de fonctionnement statique ne se distinguent pratiquement pas dans le cas présent.

Le calcul de ces améliorations montre deux points importants. D'une part, les améliorations sont toujours positives et prouvent que les objectifs de maximisation sont atteints. D'autre part, les valeurs de ces améliorations varient du 0 numérique à 1.5%. La répartition de ces améliorations en fonction des conditions de transfert montre que le mode optimisé est plus performant que le mode statique lorsque les conditions de transfert de A et de B diffèrent le plus, en restant dans la gamme $[10^{-5}, 20 \cdot 10^{-5}] \text{ m.s}^{-1}$.

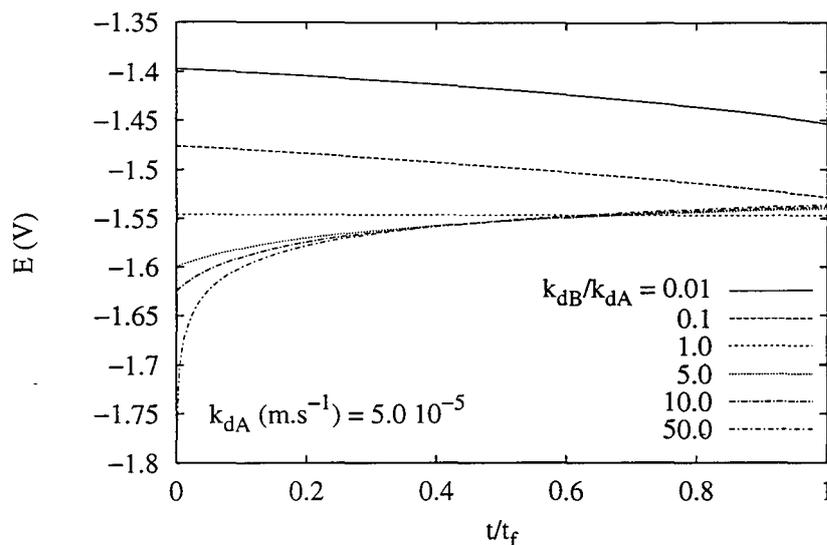


Figure 3.47: Influence de r_k sur le profil optimal de u .

L'influence des conditions de transfert de matière est aussi étudiée à travers le rapport $r_k = k_{dB}/k_{dA}$ à k_{dA} fixé. On étudie ainsi l'influence des éventuelles différences de vitesse de transfert des espèces A et B .

La variété des profils optimaux du potentiel d'électrode, obtenus pour différents r_k , est illustrée sur la figure 3.47. On peut essayer d'interpréter ces profils par rapport à la vitesse avec laquelle le constituant B est transféré de la surface de l'électrode vers le coeur de la solution. En effet, lorsque le rapport est très élevé, la production maximale est obtenue par un fort taux de conversion de A . Ce dernier est obtenu en augmentant la valeur absolue du potentiel. Dans le même temps, le transfert rapide de B vers le coeur de la solution limite la conversion de B en D . Lorsque la concentration de B augmente dans la solution, le potentiel est réduit pour éviter cette deuxième réaction. Dans le cas où le transfert de B est très lent, la production maximale est obtenue avec une faible valeur absolue du potentiel permettant de limiter la conversion de B qui est mal "évacué" de la surface de l'électrode. D'une manière générale, comme précédemment, lorsque les phénomènes de transfert sont trop lents, l'optimisation du potentiel pour contrôler les cinétiques est également limitée et les profils présentent des tendances uniformes.

Les figures 3.48 et 3.49 proposent respectivement les valeurs optimales du taux de conversion X_A et de la concentration $C_B(t_f)$ en fonction du paramètre r_k pour trois valeurs de k_{dA} .

Ces courbes traduisent, d'une manière quantitative, les limitations précédemment décrites. La limitation des performances de production apparaît rapidement pour les rapports $r_k \leq 1$. On retrouve également le changement très net du comportement du système pour les faibles valeurs de k_{dA} , ici, inférieures à $5.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$. Les améliorations par rapport au meilleur fonctionnement potentiostatique, calculées dans ces conditions sont assez similaires à celles dans l'étude de l'influence de k_{dA} . Elles varient entre 0 et 1.8%.

Influence du temps opératoire

L'influence du temps opératoire t_f sur les conditions optimales est présentée en résolvant successivement le problème de maximisation de $C_B(t_f)$ dans une gamme de durées opé-

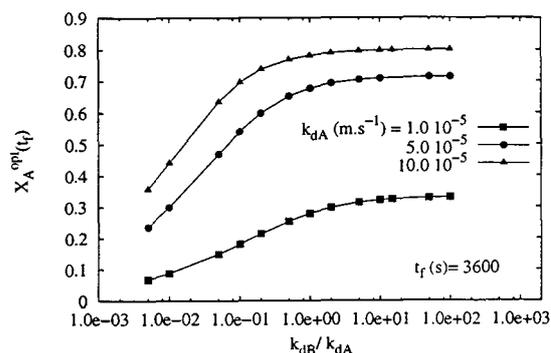


Figure 3.48: Influence de r_k sur le profil optimal de x_A .

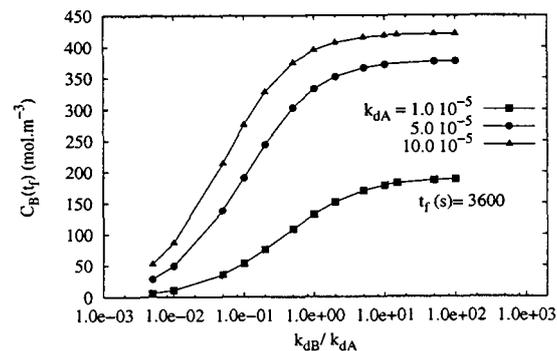


Figure 3.49: Influence de r_k sur le profil optimal de x_B .

ratoires variant de 3600 s à 32 h. Les conditions de transfert utilisées pour la résolution de ces problèmes sont : $k_{dA} = 5.0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ et $r_k = 0.5$.

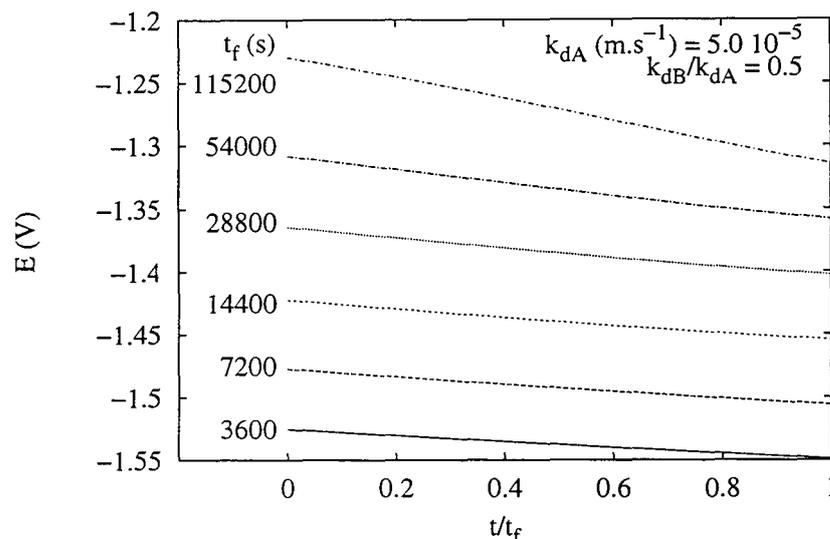
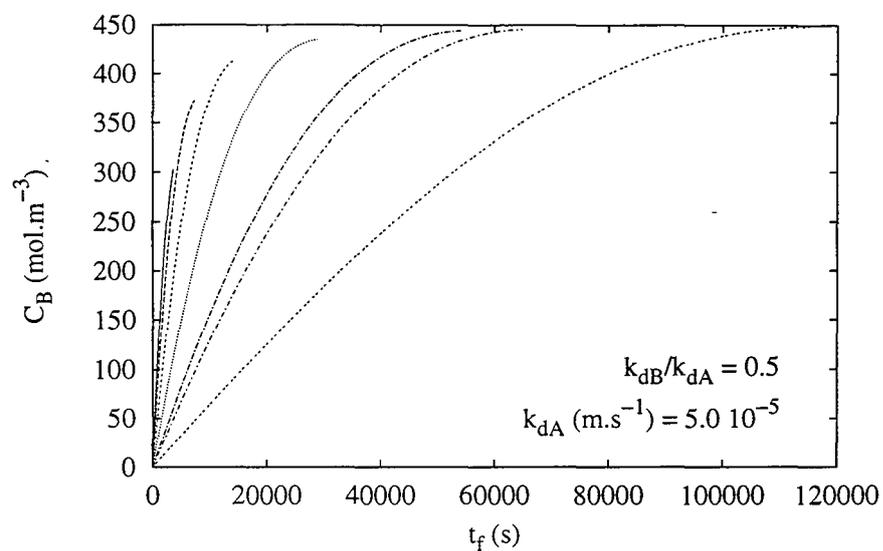


Figure 3.50: Influence de t_f sur le profil optimal de u .

La figure 3.50 présente une série de profils optimaux du potentiel dans un repère de temps normalisé, obtenus pour 6 valeurs de t_f . L'évolution des concentrations optimales de B est quant à elle présentée dans un repère où le temps est exprimé en seconde.

Les valeurs du potentiel permettant d'atteindre les conditions de conversion optimisées dans les mêmes temps opératoires sont rassemblées dans le tableau 3.13. Comme précédemment, ces potentiels correspondent à ceux qui maximisent $C_B(t_f)$ lorsque le taux de conversion n'est pas imposé.

La première réaction est intrinsèquement plus rapide que la seconde. Pour obtenir des concentrations élevées de B , il faut opérer à une valeur absolue du potentiel la plus faible. Lorsque la durée de l'opération est écourtée, la concentration maximale en B est améliorée en convertissant plus de réactif A , c'est-à-dire en augmentant la valeur absolue du potentiel. Cette augmentation conduit parallèlement à une production plus importante du produit non désiré D . Cette tendance est vérifiée pour les deux modes opératoires.

Figure 3.51: Influence de t_f sur le profil optimal de C_B .

Temps (s)	3600	7200	14400	28800	54000	115200
Potentiel (V)	-1.537	-1.492	-1.440	-1.385	-1.335	-1.275

Tableau 3.13: Meilleurs potentiels uniformes pour différents temps opératoires.

Les profils montrent que lorsque le temps opératoire t_f change, le niveau du potentiel change également mais l'allure de ces profils n'évolue pas beaucoup. Le choix de conditions opératoires où le profil initial est plutôt uniforme permet ainsi de souligner une certaine "translation" du "niveau" optimal du potentiel comme dans le cas d'un fonctionnement statique. En d'autres termes, la répartition de l'énergie électrique reste à peu près identique mais elle s'effectue sur une plus longue période.

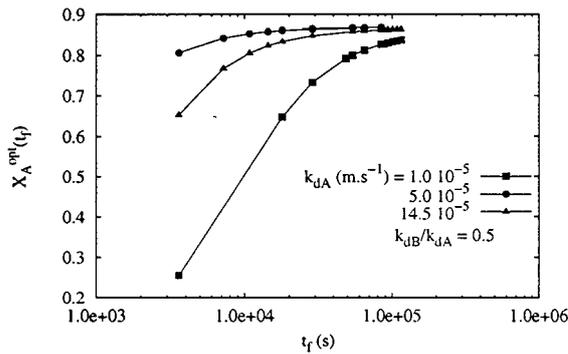


Figure 3.52: Influence de t_f sur la valeur finale optimale de x_A .

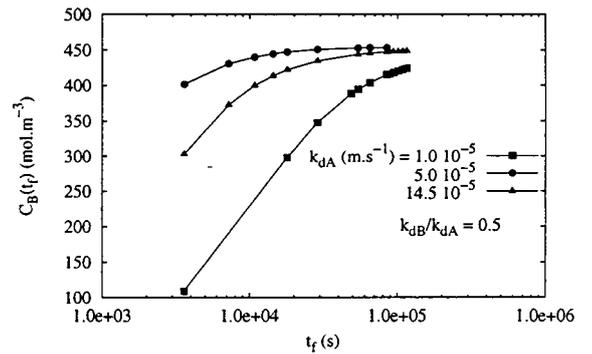


Figure 3.53: Influence de t_f sur la valeur finale optimale de $C_B(t_f)$.

Cette dernière remarque est confirmée par les figures 3.52 et 3.53 qui présentent la valeur optimale du taux de conversion et de la concentration finale $C_B(t_f)$ en fonction de la durée t_f et pour 3 conditions de transfert de matière. On constate en effet que cette répartition quasi-identique permet d'observer une évolution très similaire de ces deux grandeurs. Les gains de conversion de A obtenus pour des temps opératoires plus élevés sont ainsi convertis en gain de production de B .

Les améliorations relatives entre le fonctionnement optimisé et le meilleur fonctionnement statique conduisent comme précédemment à des valeurs toujours positives mais très faibles (0.1%).

D'une manière générale, l'étude des conditions optimales de fonctionnement de ce système électrochimique au regard du problème de maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ met en évidence plusieurs aspects. D'une part, le fonctionnement optimal et le fonctionnement statique présentent une sensibilité similaire aux paramètres de transfert et à la durée opératoire. De plus, l'optimalité des résultats dynamiques est vérifiée par la positivité des améliorations relatives du critère. En ce qui concerne les faibles valeurs des améliorations calculées, elles montrent que le meilleur fonctionnement potentiostatique est, pour ce problème, très proche du fonctionnement optimal. Il faut cependant relativiser ces résultats par le fait que les conditions statiques de référence sont les *meilleures* conditions statiques. Elles constituent en elles-mêmes un mode de fonctionnement optimal par rapport au mode potentiostatique "classique".

Une étude complémentaire de l'influence du rapport des coefficients énergétiques β_2/β_1 des constantes de vitesse k_{fi} a, par ailleurs, montré que la quasi-optimalité du mode opératoire potentiostatique persiste pour des rapports β_2/β_1 variant de 0.97 ($(\beta_1, \beta_2) = (0.162, 0.157)$) à 1.03 ($(\beta_1, \beta_2) = (0.157, 0.162)$).

Dans certains cas, il peut être souhaitable, pour des raisons économiques, techniques, écologiques ou de sécurité, d'imposer un taux de conversion du réactif A . La section suivante décrit le fonctionnement de ce même réacteur lorsque l'on cherche à maximiser

la concentration en imposant le taux de conversion X_A .

3.3.2 Maximisation de la concentration de B à taux de conversion de A imposé

Le problème de maximisation de $C_B(t_f)$ à taux de conversion X_A imposé est le problème qui a fait l'objet d'un maximum d'attention tant au niveau des méthodes d'optimisation que des développements nécessaires à la mise en oeuvre expérimentale (sensibilité, observateur, commande, ...).

Les conditions opératoires utilisées pour la résolution des problèmes sont celles des tableaux 1.6 et 1.5 pages 43, à l'exception du coefficient de transfert de matière k_{dA} fixé à 10^{-4} m.s^{-1} .

Conditions optimales de fonctionnement

Avant de présenter l'influence des principaux paramètres sur les conditions optimales de fonctionnement, un exemple de conditions opératoires de fonctionnement est présenté sous la forme de trajectoires optimales de commande (Fig. 3.54), de titres (Fig. 3.55) et d'intensité du courant (Fig. 3.56).

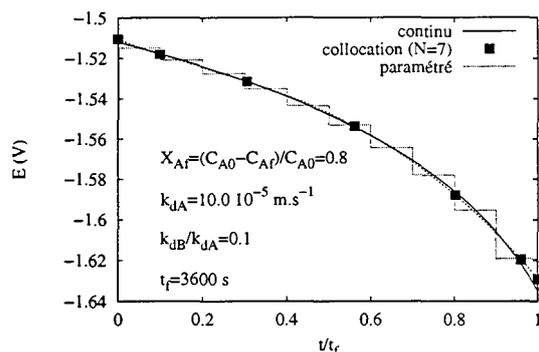


Figure 3.54: Profil optimal de commande (potentiel).

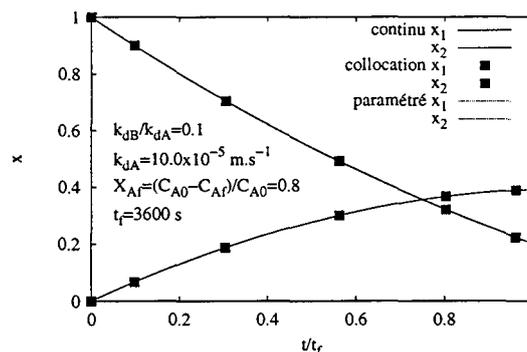


Figure 3.55: Trajectoires optimales des états (titres).

Les profils de commande présentés sur la figure 3.54 sont issus de la résolution du problème au moyen des trois catégories de méthodes décrites dans la section 2.2 : l'itération sur les conditions initiales (BCI), la paramétrisation du vecteur de commande (CVP) et la collocation orthogonale. La comparaison montre que les techniques de détermination des profils de commande optimale et quasi-optimale convergent vers la même solution. En ce qui concerne l'aspect électrochimique de l'optimalité, on constate que le profil optimal est décroissant au cours de l'opération. L'interprétation de ce profil est toujours aussi délicate que dans le cas où le taux de conversion n'est pas imposé. On peut penser qu'en début d'opération, la valeur du potentiel est maintenue la plus faible possible, favorisant ainsi la consommation de A en B . Compte tenu du rapport des coefficients énergétiques, la première réaction est en effet, à potentiel et concentrations donnés, plus rapide que la seconde. Par la suite, la valeur absolue du potentiel augmente pour compenser la baisse de la concentration de A dans la solution et atteindre le taux de conversion imposé.

Les profils des titres correspondant aux profils optimaux de commande de ces trois méthodes sont donnés sur la figure 3.55. La superposition des trois profils montre que les

performances de ces trois techniques sont identiques. On vérifie de plus que la contrainte $X_A = 0.8$ est exactement satisfaite.

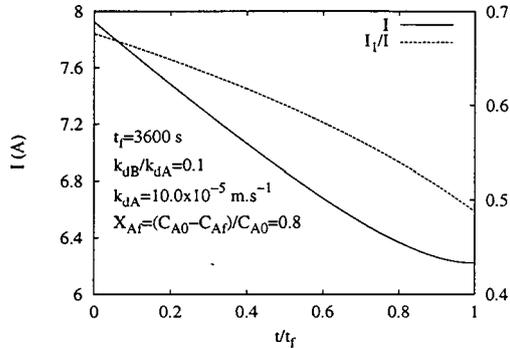


Figure 3.56: Trajectoire optimale de l'intensité I et répartition.

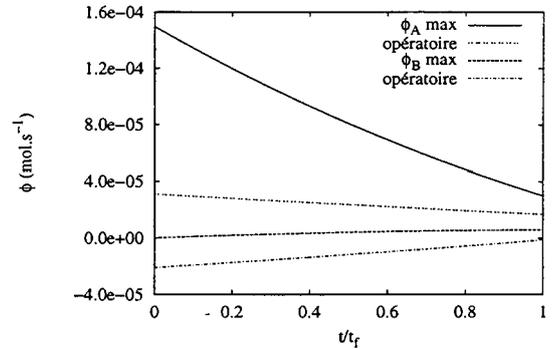


Figure 3.57: Vérification des conditions de flux diffusionnel.

La figure 3.56 présente sur l'axe de gauche, le profil de l'intensité globale du courant circulant entre les deux électrodes et sur l'axe de droite, la proportion du courant I_1/I . L'intensité évolue de manière décroissante à un niveau relativement élevé correspondant à une densité de courant de l'ordre de 360 mA.cm^{-2} . La répartition des intensités varie elle aussi au cours de l'opération.

On vérifie également que les conditions limites de diffusion ne sont pas dépassées lors de cette opération fonctionnant à potentiel optimisé. Pour cela, les flux maximaux de A et de B pouvant être consommés à la surface de l'électrode sont calculés par la relation $\phi = k_{di} A_e C_i$. On peut ainsi comparer les flux consommés par les deux réactions et ces flux maximaux. Ces grandeurs sont présentées sur la figure 3.57. Les flux de B négatifs correspondent ici à des flux de production de B .

Influence des conditions de transfert de matière

L'influence des conditions de transfert de matière est étudiée comme pour le cas où la conversion n'est pas imposée. Dans un premier temps, on étudie l'influence du coefficient de transfert k_{dA} lorsque le rapport r_k est maintenu constant. Les profils optimaux de commande sont fournis sur la figure 3.58 pour $r_k = 1.0$.

On constate sur la figure 3.58 que les profils optimaux du potentiel sont décroissants. Cette décroissance est d'autant plus importante que les conditions de transfert des espèces A et B sont limitées. En valeur absolue, ces potentiels sont plus élevés lorsque k_{dA} devient plus faible. En effet, dans ces conditions, le taux de conversion imposé ($X_{Af} = 0.8$) est plus difficile à atteindre lorsque A et B diffusent mal dans la couche limite au voisinage de l'électrode. Pour compenser cette limitation, il faut agir d'une manière plus forte sur la cinétique. On peut alors constater, sur la figure 3.60, que les profils de x_A à différents coefficients k_{dA} se distinguent difficilement. La commande optimale semble compenser l'influence du coefficient de transfert de A sur la trajectoire de x_A , en maintenant la trajectoire x_A inchangée. En revanche, l'influence du transfert sur les valeurs optimales de la concentration (titre) finale de B n'est pas compensée. Comme le montre la figure 3.61, les titres de B sont plus faibles car l'augmentation du potentiel implique l'augmentation de la vitesse de consommation de B en D .

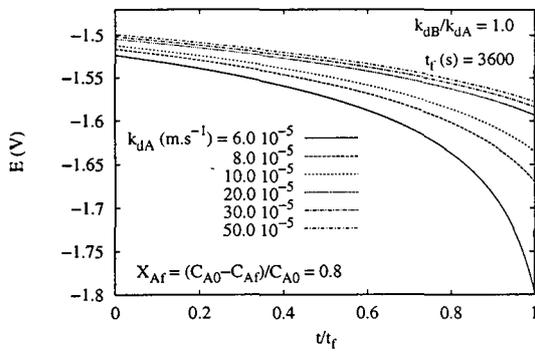


Figure 3.58: Influence de k_{dA} sur le profil optimal de commande.

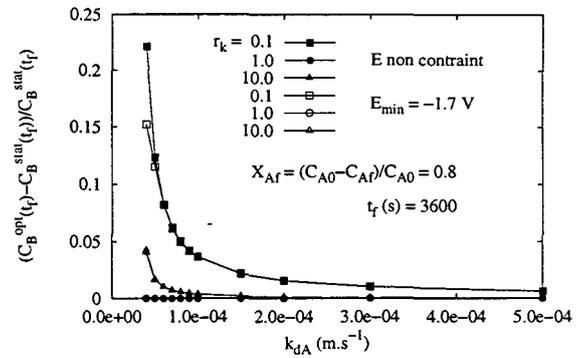


Figure 3.59: Influence de k_{dA} sur l'optimalité.

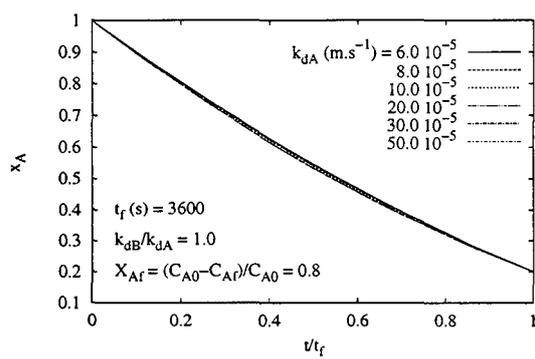


Figure 3.60: Influence de k_{dA} sur la trajectoire optimale de x_A .

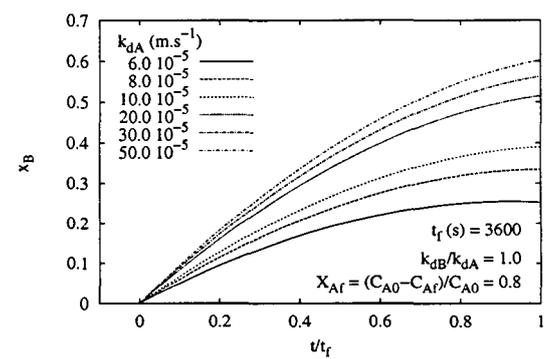


Figure 3.61: Influence de k_{dA} sur la trajectoire optimale de x_B .

Toutefois, l'utilisation d'un profil de potentiel optimisé permet d'atteindre des concentrations finales en B plus élevées par rapport à la meilleure opération à potentiel constant. Les améliorations relatives entre les deux modes de fonctionnement sont présentées à cet effet sur la figure 3.59. On peut ainsi constater des améliorations qui s'élèvent jusqu'à 22% pour les conditions de transfert de A et de B les plus lentes. Il est important de noter que les meilleures améliorations sont obtenues pour des profils de potentiel qui ne sont pas réalistes car inférieurs à la borne minimale $E_{min} = -1.7 V$. L'utilisation de la méthode CVP permet de satisfaire facilement cette contrainte d'inégalité et conduit aux améliorations représentées par des points creux sur la figure 3.59. Elles sont légèrement inférieures aux précédentes mais atteignent malgré tout 16% et montrent ainsi l'intérêt de l'optimisation dynamique du potentiel. Les améliorations sont présentées pour trois valeurs du rapport r_k . La figure montre que, pour $r_k = 1.0$, les améliorations sont négligeables et se distinguent très nettement des autres cas. Cette distinction reste difficile à expliquer. Elle est par ailleurs confirmée par les résultats concernant l'influence de r_k à k_{dA} fixé.

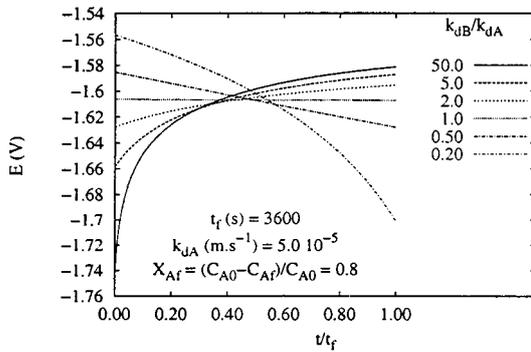


Figure 3.62: Influence de r_k sur le profil optimal de commande.

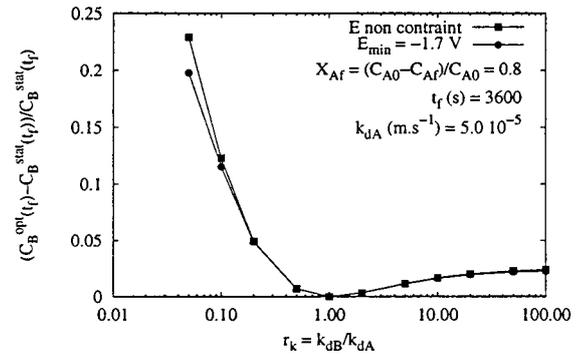


Figure 3.63: Influence de r_k sur l'optimalité.

La figure 3.62 présente les profils optimaux de la commande pour différentes valeurs du rapport r_k et $k_{dA} = 5 \cdot 10^{-5} m.s^{-1}$. On constate que les tendances des profils sont complètement opposées en fonction de la valeur du rapport r_k par rapport à 1. Pour les faibles valeurs, le coefficient de transfert de matière k_{dB} est très faible. Le profil de potentiel est alors faible en valeur absolue, au début de l'opération et augmente en fin d'opération. On retrouve ainsi les conditions opératoires décrites dans l'analyse précédente. Pour les valeurs élevées de r_k , la diffusion rapide de B (k_{dB} élevé) permet de consommer le réactif A très rapidement en début d'opération en appliquant un potentiel élevé en valeur absolue. Le transfert rapide de B vers le coeur de la solution permet alors d'éviter la seconde réaction $B \rightarrow D$. Au fur et à mesure que la concentration en B augmente dans la solution électrolytique, le potentiel est réduit pour limiter cette seconde réaction. Pour $r_k = 1$, on constate que le profil de commande est un profil intermédiaire en les deux cas précédents et correspond à un profil uniforme. Cette uniformité du profil est en accord avec les améliorations négligeables par rapport au mode potentiostatique, présentées sur la figure 3.58. L'influence du rapport r_k sur ces améliorations est également proposée sur la figure 3.63 pour $k_{dA} = 5 \cdot 10^{-5} m.s^{-1}$. On constate que les améliorations de la concentration $C_B(t_f)$ par rapport à la meilleure concentration obtenue en mode potentiostatique, atteignent 22% dans le cas où le potentiel ne satisfait pas la contrainte $E \geq E_{min} = -1.7 V$ et 20% dans le cas où le potentiel est contraint dans le domaine réaliste.

On peut également noter le lien évident entre l'uniformité du profil optimal du potentiel et les faibles valeurs des améliorations correspondantes.

Influence du taux de conversion

L'utilisation d'un profil de potentiel optimisé par rapport à un profil uniforme apparaît plus intéressante lorsque l'on cherche à maximiser la production de B en imposant le taux de conversion du réactif A . Il paraît donc indispensable d'étudier l'influence de ce paramètre du problème sur les solutions optimales et sur les améliorations apportées par l'optimisation dynamique.

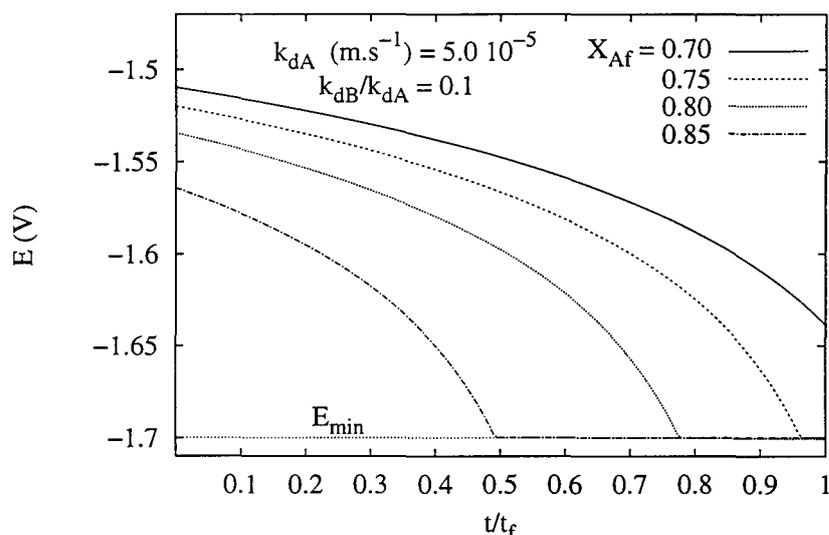


Figure 3.64: Influence de X_{Af} sur le profil optimal de commande.

À cet effet, le problème de maximisation de $C_B(t_f)$ est résolu pour différentes valeurs du taux de conversion imposé X_{Af} et pour trois valeurs du coefficient de transfert k_{dA} et avec r_k fixé à 0.1. Les profils optimaux correspondant sont présentés sur la figure 3.64. Les résultats prennent en compte, d'une manière optimale, la contrainte sur la valeur minimale du potentiel. En effet, l'expérience montre que dans ces conditions opératoires, la solution optimale non bornée, peut dépasser, d'une manière irréaliste ($E \leq -2.0 \text{ V}$), cette contrainte.

Cette contrainte est intégrée au problème comme prescrit dans le chapitre 2. Il est important de noter que le profil du potentiel, même borné, est optimal au sens strict du critère. Il ne s'agit pas d'un profil subissant un filtrage des valeurs incorrectes mais d'un profil résultant d'une condition d'optimalité, satisfaite sur la totalité de l'intervalle de temps. On retrouve sur la figure 3.64, l'allure générale des profils obtenus précédemment. L'augmentation du taux de conversion imposé a pour conséquence d'augmenter la valeur absolue du potentiel. Les réactions sont en effet irréversibles et, en fin d'opération, le taux de conversion imposé ne peut être obtenu qu'en augmentant la force motrice E de la réaction. Les concentrations optimales résultant de l'utilisation de ces profils optimaux sont présentées sur la figure 3.65 pour trois valeurs de k_{dA} . Les concentrations résultant de la meilleure opération à potentiel constant sont également calculées et présentées sur la

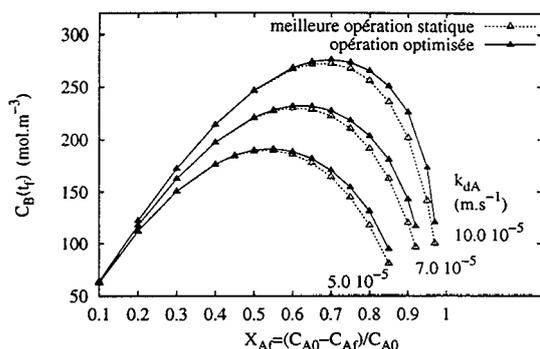


Figure 3.65: Influence de X_{Af} sur la concentration finale optimale.

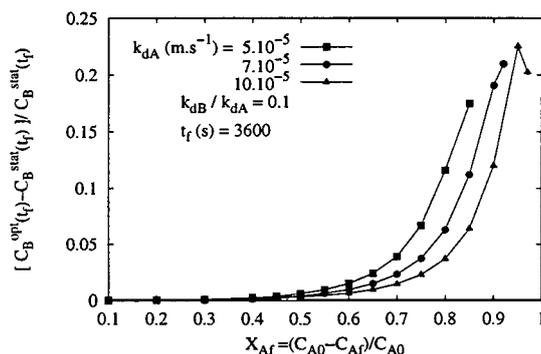


Figure 3.66: Influence de X_{Af} sur l'optimalité.

même figure. Ces courbes de concentrations présentent un maximum pour chaque valeur du coefficient de transfert et dans les deux modes opératoires, statique et uniforme. La compétition entre les deux réactions est à l'origine de ce maximum. À gauche du maximum, les deux modes opératoires conduisent à des performances identiques. Les profils optimaux évoluent peu et le profil uniforme peut être considéré comme optimal. À droite du maximum, les performances des modes statiques et optimisés se distinguent très nettement. À taux de conversion élevés, la conversion de A est réalisée au dépend de la production de B . Dans le cas de profils temporels et optimisés du potentiel, le degré de liberté supplémentaire par rapport à une opération à potentiel constant, permet d'atteindre des concentrations de B plus importantes. L'amélioration relative de la concentration de B entre ces deux modes est d'ailleurs présentée sur la figure 3.66. On constate que ces améliorations peuvent atteindre jusqu'à 25% selon les conditions de transfert de matière et le taux de conversion imposé.

On peut également remarquer une brusque baisse de l'amélioration pour le taux de conversion le plus élevé. Cette diminution est due à la contrainte E_{min} qui conduit, dans ces conditions, à un profil borné, donc uniforme, pendant la majeure partie de l'opération.

Influence du temps opératoire

Le dernier paramètre étudié est le temps opératoire t_f . En réalité, ce paramètre est chronologiquement le premier étudié. En effet, la durée de l'opération discontinue est un paramètre des plus importants lors de la mise en oeuvre industrielle du procédé. Cette étude préliminaire a alors montré que les performances du mode optimisé sont inégalables par un mode potentiostatique lorsque les durées opératoires sont courtes.

La figure 3.67 présente les profils optimaux du potentiel d'électrode obtenus pour différentes durées t_f variant de 1 à 3 heures et dans les conditions de transfert et de conversion précisées sur la figure. La représentation des profils dans un repère de temps normalisé permet de souligner l'analogie des profils obtenus avec ceux de la figure 3.64 qui ont été obtenus à temps fixé (3600 s) pour différents taux de conversion X_{Af} . On constate ainsi que ce sont les conditions de transfert qui conditionnent l'allure du profil optimal et que les paramètres t_f et X_{Af} ont une influence essentiellement sur le niveau du potentiel.

La figure 3.68 illustre pour sa part les trajectoires optimales de la concentration C_B au cours du temps. On montre ainsi la différence entre les trajectoires à suivre selon la valeur du temps opératoire. On constate aussi que les temps plus élevés permettent d'atteindre

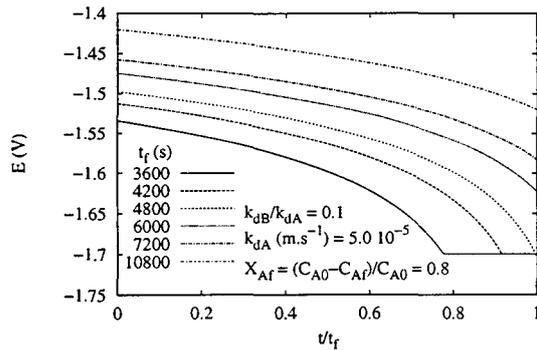


Figure 3.67: Influence de t_f sur le profil optimal de commande.

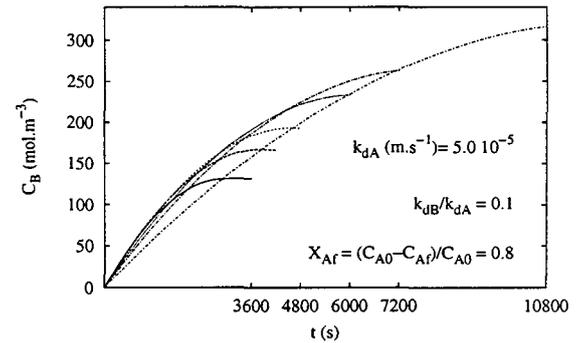


Figure 3.68: Influence de t_f sur la trajectoire optimale de C_B .

des concentrations également plus élevées. En effet, en mode optimisé comme en mode statique, lorsque le système dispose de plus de temps pour atteindre le même taux de conversion, le niveau de potentiel est plus bas, en valeur absolue. Ainsi, la consommation de B pour produire D est moins importante. Ce résultat est illustré par la figure 3.69 qui donne les concentrations finales $C_B(t_f)$ issues du mode optimisé et du meilleur mode statique, en fonction du temps opératoire t_f . À partir d'une certaine valeur, l'augmentation du temps opératoire ne permet plus d'améliorer la production de B . Dans le cas présent, la valeur limite du temps se situe autour de 16 heures et celle de la concentration autour de 430 mol.m^{-3} . On constate que dans ce domaine, les performances des deux modes opératoires sont équivalentes. L'amélioration relative des concentrations présentées sur la figure 3.70 confirme ce résultat. En revanche, pour des opérations de courtes durées, la baisse de la concentration finale $C_B(t_f)$ est très importante. Elle est toutefois mieux contrôlée en optimisant le profil du potentiel d'électrode et les améliorations entre le mode statique et le mode optimisé s'élèvent jusqu'à 12%.

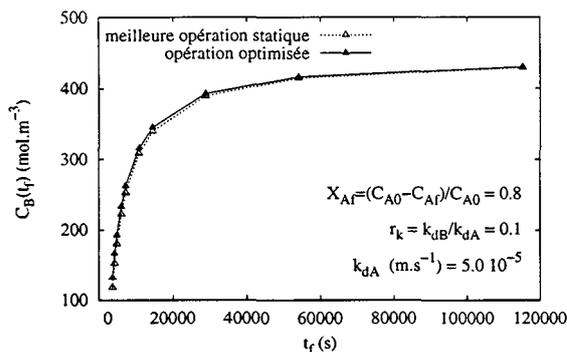


Figure 3.69: Influence de t_f sur la concentration finale optimale.

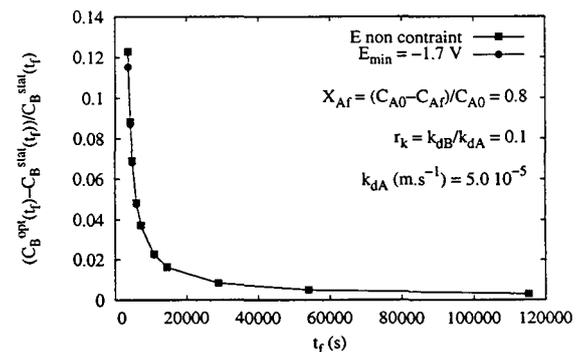


Figure 3.70: Influence de t_f sur l'optimalité.

La résolution du problème de la concentration à conversion imposée et à temps opératoire libre permet de déterminer une valeur optimale du temps t_f . Cette valeur optimale ainsi déterminée n'est cependant pas réellement optimale. En réalité, cette valeur correspond à un temps opératoire où la dérivée de $C_B(t_f)$ par rapport à t_f est, à la précision numérique près, nulle. Cette condition correspond à un point du plateau présenté sur la

courbe de la figure 3.69. Il est cependant évident qu'en changeant la précision numérique, on peut obtenir des temps "optimaux" plus longs.

3.3.3 Minimisation du temps opératoire à sélectivité de B imposée

Le problème de la minimisation du temps opératoire pour atteindre une sélectivité donnée est résolu essentiellement à l'aide des techniques de paramétrisation du vecteur de commande (CVP) et de la collocation orthogonale. Ces techniques sont en effet mieux adaptées pour gérer les problèmes impliquant des paramètres de nature temporelle. La solution issue de la collocation est précisée en ajoutant, sur les profils présentés, les coordonnées de collocations.

Optimalité

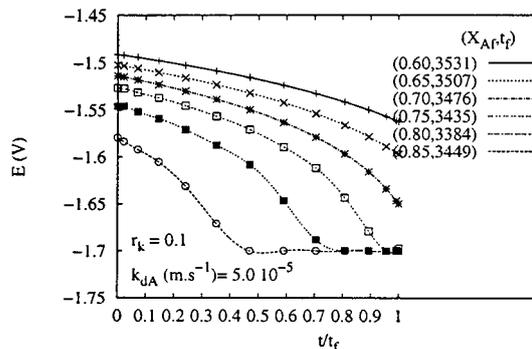


Figure 3.71: Influence de la sélectivité sur t_f et sur le profil optimal de u .

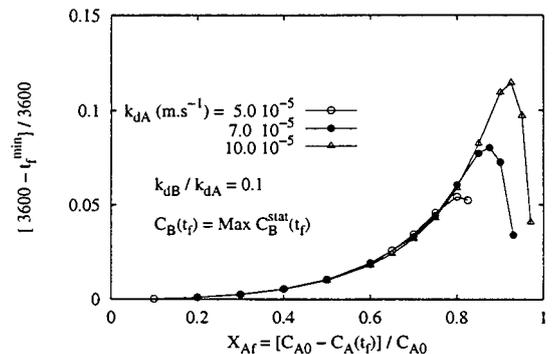


Figure 3.72: Amélioration relative du temps opératoire t_f .

Lorsque l'on considère le problème de minimisation du temps à sélectivité $C_B(t_f)/C_A(t_f)$ imposée, cette dernière peut être fixée lorsque X_{Af} et $x_B(t_f)$ sont imposés. Le choix de la valeur de la sélectivité que l'on cherche à atteindre est cependant très ouvert. Afin de limiter l'étendue de l'étude, les valeurs des sélectivités choisies correspondent à celles atteintes, par la meilleure opération potentiostatique, dans le cas de la maximisation de $C_B(t_f)$ à conversion imposée. En d'autres termes, on impose un taux de conversion X_{Af} , on détermine la meilleure concentration finale $C_B(t_f)$ que l'on peut atteindre en mode statique. On utilise ces résultats pour calculer la sélectivité correspondante qui est introduite comme contrainte d'un problème de minimisation du temps t_f .

La figure 3.71 présente ainsi les profils optimaux du potentiel d'électrode pour différents taux de conversion (*i.e.* sélectivités). Les profils sont représentés dans un repère de temps normalisé et les temps optimaux correspondants sont précisés dans la légende. Les concentrations $C_B(t_f)$ ciblées peuvent être lues, pour chaque taux de conversion, sur la figure 3.65 de la page 138. On retrouve des allures assez similaires à celles rencontrées, pour des conditions de transfert équivalentes, dans le cas de la maximisation de C_B . On remarque également l'influence de la borne minimale du potentiel qui, pour $X_{Af} = 0.85$ provoque une augmentation de la valeur minimale de t_f . Cette augmentation est mieux illustrée sur la figure 3.72 où les temps optimaux sont comparés au temps de référence

du mode opératoire à savoir $t_f^{stat} = 3600$ s. Les résultats sont présentés sous la forme d'amélioration relative du temps opératoire. On constate que les améliorations sont croissantes pour les taux de conversion croissants jusqu'à ce que la contrainte conduise à des profils optimaux bornés (majoritairement uniformes). Les performances des modes de fonctionnement statiques et optimisés redeviennent alors équivalentes.

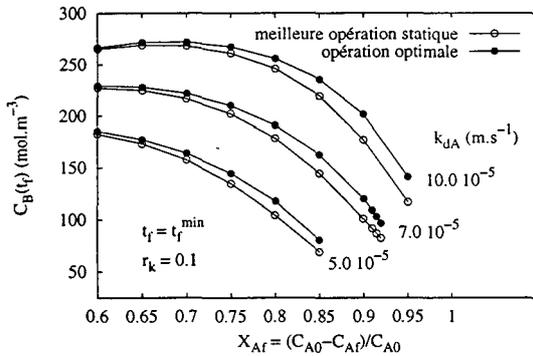


Figure 3.73: Influence de la sélectivité sur la concentration finale optimale.

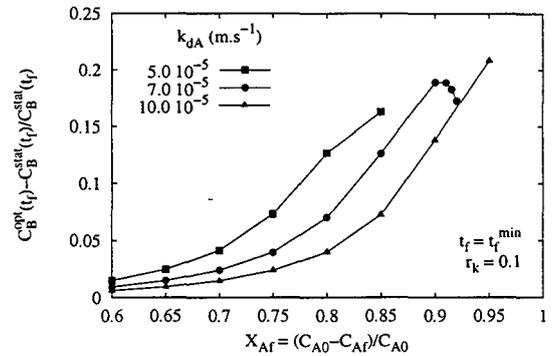


Figure 3.74: Influence de la sélectivité sur l'optimalité des concentrations.

Les résultats montrent une certaine dualité entre le problème de maximisation de $C_B(t_f)$ à X_{Af} et t_f fixés et celui de la minimisation de t_f à sélectivité (*i.e.* X_{Af} et C_{Bf}) imposée. Une autre manière de présenter l'amélioration apportée par l'optimisation dynamique du potentiel consiste à déterminer, pour la durée optimale t_f^{min} , la meilleure sélectivité atteinte dans un mode potentiostatique. Ces améliorations sont alors exprimées sous la forme d'amélioration de la concentration $C_B(t_f^{min})$ plutôt que du temps t_f . Elles sont alors directement comparables à celles de la section précédente. La figure 3.73 présente ainsi les concentrations de B correspondant à la sélectivité imposée réalisée en un temps minimal t_f^{min} . Ces concentrations sont comparées aux meilleures concentrations atteintes lors d'opérations potentiostatiques de même durée et à même taux de conversion X_{Af} . Comme pour les cas précédents, l'amélioration correspondant à ces deux modes opératoires est illustrée sur la figure 3.74. Les profils représentés sur ces figures sont analogues à ceux présentés sur les figures 3.65 et 3.66. Ces résultats confirment donc une certaine dualité des deux problèmes.

exemple

Lorsque l'optimalité des temps minimum est démontrée, il est possible de résoudre le problème pour un grand nombre de sélectivités à atteindre. Les figures 3.75 et 3.76 fournissent un exemple de conditions de fonctionnement en temps optimal pour atteindre une sélectivité $C_B(t_f)/C_A(t_f) = 2$.

La figure 3.75 présente, sous une forme paramétrée, les trajectoires optimales du système dans un repère $(E, C_B/C_A)$. Ces trajectoires sont calculées en choisissant différentes conditions de démarrage (C_{A0}, C_{B0}) du procédé discontinu. Afin de préciser le temps dans ce repère, les isochrones de 500 à 3000 s sont représentées sur la figure. À partir des concentrations instantanées et de la durée restant avant l'arrêt du procédé, cette figure peut être utilisée pour choisir la valeur du potentiel à appliquer pour atteindre en un temps optimal la sélectivité imposée.

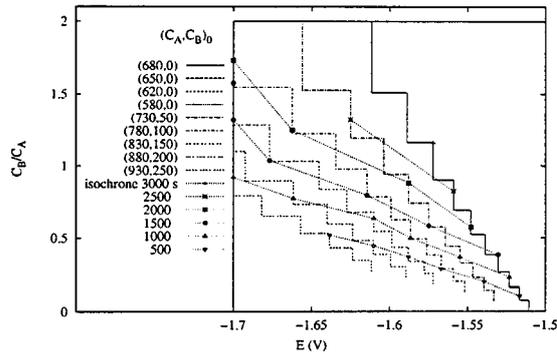


Figure 3.75: Chemin optimal pour atteindre, en temps minimum, une sélectivité égale à 2.

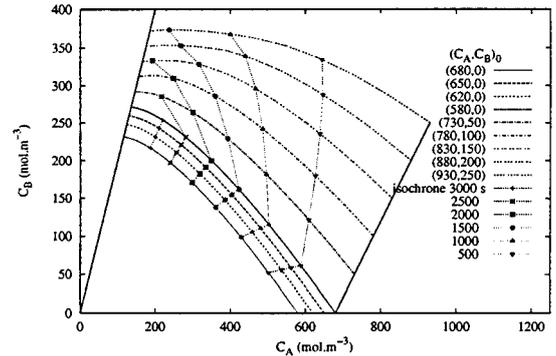


Figure 3.76: Trajectoire optimale pour atteindre, en temps minimum, une sélectivité égale à 2.

La figure 3.76 représente l'évolution optimale des concentrations C_A et C_B . Elle illustre les différentes manières d'atteindre la sélectivité imposée à partir des différentes conditions initiales de concentration.

3.3.4 Conclusions

L'étude des conditions optimales de fonctionnement du réacteur électrochimique dans le cas de la maximisation de $C_B(t_f)$ a permis de mettre en évidence les remarques suivantes :

- le fonctionnement potentiostatique est souvent optimal dans le cas où le taux de conversion du réactif n'est pas imposé.
- l'optimisation du profil du potentiel d'électrode permet d'améliorer notablement les performances du procédé lorsque le taux de conversion est imposé. L'amélioration dépend très fortement des conditions opératoires et des conditions de transfert de matière.
- les conditions de transfert de matière ont une très forte influence sur l'allure du profil optimal du potentiel.
- les conditions de conversion imposées et le temps opératoire ont une influence sur le niveau du potentiel optimal.
- la satisfaction des contraintes de conversion est exacte.
- la limitation du potentiel au domaine admissible (borne E_{min}) ne dégrade pas les améliorations qu'apportent l'optimisation dynamique par rapport au meilleur mode potentiostatique.
- les meilleures améliorations sont apportées par l'optimisation dynamique lorsque les conditions opératoires sont opposées aux objectifs, c'est-à-dire, lorsque les temps sont très courts, les taux de conversion imposés très élevés et les conditions de transfert de matière sont limitantes.

Cette étude montre que l'optimisation dynamique peut, dans certaines conditions, améliorer la production du composé intermédiaire B de 10 à 25%.

L'étude des conditions de fonctionnement en temps optimal du procédé permettant d'atteindre une sélectivité donnée montre la dualité des résultats avec ceux de la maximisation à conversion imposée. Elle présente également des améliorations de la durée du procédé discontinu qui peuvent atteindre 12%.

Ces résultats sont numériques mais d'un niveau suffisamment élevé pour conduire à des améliorations toujours importantes dans un cas pratique. On imagine facilement l'importance de ce résultat en terme de gain de productivité dans une application industrielle.

3.4 Conclusions

Les méthodes d'optimisation dynamique appliquées aux procédés électrochimiques permettent de déterminer leurs conditions optimales de fonctionnement. Ces conditions de fonctionnement permettent, dans certains cas, d'atteindre des performances que le mode opératoire potentiostatique ou galvanostatique n'autorise pas. De plus, dans certaines conditions opératoires, les améliorations entre les modes statiques et optimisés sont numériquement très intéressantes. Les conditions optimales de fonctionnement ainsi déterminées sont de plus physiquement et techniquement réalisables. Il convient donc de vérifier ces résultats numériques par la mise en oeuvre expérimentale de ces profils optimaux de potentiels ou d'intensité. Cette mise en oeuvre doit cependant être réalisée dans un schéma de commande qui prend en compte les imperfections du modèle et les conditions réelles de fonctionnement. Une analyse de la sensibilité du système est donc nécessaire. La mise au point d'une loi de commande en boucle fermée est ensuite l'étape indispensable avant la validation expérimentale.

Chapitre 4

Mise en oeuvre de la commande optimale

Les conditions de fonctionnement optimal des procédés électrochimiques ont été présentées dans le chapitre précédent. Les résultats sont basés sur un modèle du procédé supposé parfait. Ce chapitre est consacré aux étapes de mise en oeuvre de ces conditions optimales de fonctionnement en prenant en compte les imperfections du modèle. Il est divisé en trois parties. La première partie présente les principes et les résultats de l'analyse de la sensibilité du système optimal. La seconde partie décrit les observateurs d'état mis au point pour estimer les états non mesurés à partir de la mesure de la sortie du système. La troisième partie présente des techniques de commande optimale en boucle fermée et propose une loi optimale de retour d'état.

4.1 Analyse de la sensibilité

Dans cette partie, l'analyse de la sensibilité du système dans son mode de fonctionnement optimal est présentée. On s'intéresse dans un premier temps à la sensibilité du critère optimal ainsi qu'à la sensibilité des grandeurs qui caractérisent l'optimalité des résultats (contrainte, indice d'optimalité). Dans un second temps, l'analyse de la sensibilité des trajectoires optimales de l'état et de la commande est présentée. L'application est faite pour le problème de maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ à taux de conversion X_A imposé.

4.1.1 Introduction

Dans tout ce qui précède, la détermination des trajectoires optimales est réalisée à partir d'un modèle de connaissance du procédé. Cependant, il peut exister des écarts importants entre ce modèle nominal et le procédé qu'il représente. Ces écarts qui caractérisent l'imperfection du modèle peuvent dégrader la qualité des résultats obtenus.

On distinguera deux sources à l'origine de ces écarts :

- les perturbations externes au système (bruit, erreur de mesure ...).

Elles interviennent dans la mise en oeuvre de la commande optimale et la troisième partie de ce chapitre est consacrée à ces problèmes. Leurs influences ne seront donc pas traitées dans cette section.

- les erreurs d'estimation des paramètres du modèle.

Ces erreurs d'estimation se produisent pendant l'étape de modélisation du procédé ou pendant l'adaptation *en ligne* des paramètres en cours de fonctionnement. L'objet de cette partie est d'étudier leurs influences sur les résultats de l'optimisation.

Les origines de l'inadéquation entre les paramètres nominaux du modèle et les paramètres réels du procédé sont multiples. Parmi les plus importantes, on peut citer les suivantes :

- Une des qualités du Génie des Procédés est son approche phénoménologique des systèmes. La modélisation en Génie des Procédés consiste à mettre au point des modèles de connaissance. Les hypothèses qui conduisent à définir ce modèle et ses paramètres sont cependant généralement simplificatrices. Certains phénomènes sont en effet négligés. Ces hypothèses mènent donc forcément à des paramètres dont la signification est physique mais approximative.
- L'estimation des paramètres du modèle est toujours entachée d'erreurs. L'estimation minimise en effet l'écart entre modèle et procédé mais ne l'annule pas systématiquement. Lorsque l'estimation est réalisée hors-ligne, les conditions d'estimation sont proches des conditions de fonctionnement mais pas identiques. Une manière de limiter les erreurs à ce niveau consiste à réaliser les estimations en ligne. Cette estimation n'est cependant pas toujours réalisable que ce soit pour des raisons techniques ou de coûts.

L'analyse de la sensibilité du système consiste à étudier l'influence des écarts entre un modèle nominal et un modèle perturbé. Ces analyses permettent ainsi de déterminer si l'imperfection du modèle par rapport au procédé peut ou non dégrader la qualité des résultats obtenus numériquement. Cette analyse est un élément indispensable lors des études numériques car elle place les résultats dans un contexte plus réaliste.

Définitions

La première étape de l'analyse de la sensibilité consiste à donner une définition de la sensibilité. La sensibilité d'une variable par rapport à un paramètre est une grandeur qui doit caractériser l'influence des variations du paramètre sur la variable. Mathématiquement, cette grandeur correspond à une dérivée partielle. On distingue la sensibilité *absolue* et la sensibilité *relative*.

Définition 1 La sensibilité absolue d'une grandeur z par rapport à un paramètre p est définie comme la dérivée partielle :

$$\frac{\partial z}{\partial p}$$

Cette forme exprime les variations absolues de z consécutives à des variations absolues de p .

Définition 2 La sensibilité relative d'une grandeur z par rapport à un paramètre p est définie comme la dérivée partielle :

$$\frac{\partial \ln z}{\partial \ln p} = \frac{\frac{1}{z} \partial z}{\frac{1}{p} \partial p} = \frac{p}{z} \frac{\partial z}{\partial p}$$

Cette forme exprime les variations relatives de z consécutives à des variations relatives de p .

On peut également exprimer la sensibilité par une des deux formes intermédiaires $1/z (\partial z/\partial p)$ ou $p (\partial z/\partial p)$.

Bibliographie

On distingue deux approches pour calculer un coefficient de sensibilité : une approche numérique et une approche plus analytique.

La première consiste à approximer les dérivées partielles précédentes par une différence finie. Pour cela, les équations reliant les grandeurs z et p sont successivement résolues pour différentes valeurs des paramètres perturbés autour d'une valeur dite *nominale*. La complexité du calcul d'une sensibilité dépend de la nature de la variable, du paramètre considéré ainsi que du type de relations manipulées.

La complexité du calcul d'une sensibilité peut ainsi être plus ou moins importante en fonction de la nature du modèle considéré (algébrique, différentiel ordinaire, différentiel partiel), de la nature des grandeurs z et p (paramètre, fonction, intégrale, ...) ou du type de problème résolu (simulation, optimisation, ...).

Dans le cas de procédés mettant en jeu la résolution de systèmes algébriques ou de problèmes d'intégration à partir d'une condition initiale, l'analyse de la sensibilité est traditionnellement réalisée par résolutions successives (Seferlis et Hrymak, 1996; Shukla et Pushpavanam, 1994). La sensibilité est souvent approximée par une différence finie centrée. D'autres techniques permettent d'améliorer la précision d'une telle approximation comme l'utilisation de moyenne de cette différence finie ou de moyens statistiques plus poussés (Gordillo et al., 1996).

Dans le cadre de la commande optimale des procédés, on conçoit cependant que l'approximation de la sensibilité par différence finie est inadaptée. En effet, à chaque problème perturbé correspond la résolution d'un problème aux conditions limités partagées (*TPBVP*, *Two Point Boundary Value Problem*). Une telle résolution peut être très coûteuse en temps de calcul.

La seconde approche consiste à développer analytiquement les expressions qui définissent les dérivées partielles précédentes. On applique alors une méthode de différentiation directe (House et al., 1993). Il existe également des méthodes dérivées du Principe du Maximum qui permettent de calculer les sensibilités en utilisant les fonctions d'influence que représentent les variables adjointes et le Hamiltonien (House et al., 1993; Evers, 1980; Nikolaou et Manousiouthakis, 1990; Peterson, 1974; Kreindler, 1972). En utilisant uniquement l'information contenue dans la solution optimale nominale, cette analyse se réduit alors à un simple problème d'intégration à partir d'une condition initiale.

Cette partie est consacrée à l'analyse de la sensibilité de la solution optimale des problèmes d'optimisation dynamique des systèmes électrochimiques. Les méthodes utilisées sont basées sur l'information contenue dans les variables du Principe du Maximum. Les résultats obtenus sont comparés à l'approximation par différence finie pour montrer la qualité de cette méthode.

Contexte de l'analyse

On considère le problème de commande optimale (*OCP, Optimal Control Problem*) $OCP(n)$ (4.1). Cette formulation correspond à celle proposée dans le chapitre 2.

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} \bar{J}[u(t)] &= G[\mathbf{x}(t_f), \mathbf{p}] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) dt \\ \text{soumis à:} \quad \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) \\ \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\ \Phi(\mathbf{x}_f, \mathbf{p}) &= 0 \end{aligned} \quad (4.1)$$

où l'état $\mathbf{x} \in \mathbb{R}^n$, la commande $u \in \mathbb{R}$, la contrainte Φ est un vecteur de fonctions de \mathbb{R}^q avec $q \leq n$ et $\mathbf{p} \in \mathbb{R}^r$ est un vecteur de paramètres.

On considère le cas où les paramètres \mathbf{p} du modèle n'interviennent pas en tant que variable d'optimisation. Ces derniers sont explicitement donnés pour préciser les conditions opératoires de l'optimisation dynamique.

La trajectoire optimale $u(t)$ de ce problème est déduite de la résolution du système algébro-différentiel suivant, basé sur le Hamiltonien $H(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}, \boldsymbol{\lambda}) = F(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) + \boldsymbol{\lambda}^T f(\mathbf{x}, u, \mathbf{p})$:

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) \quad (4.2)$$

$$\dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \quad (4.3)$$

$$0 = \frac{\partial H}{\partial u} \quad (4.4)$$

$$\mathbf{x}(0) = \mathbf{x}_0 \quad (4.5)$$

$$\boldsymbol{\lambda}^T(t_f) = \left[\frac{\partial G}{\partial \mathbf{x}} + \nu^T \frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{x}} \right]_{t_f} \quad (4.6)$$

• Notation

La sensibilité est associée à la notion de paramètre *nominal* et *perturbé*. On notera $OCP(p)$, le problème correspondant à $OCP(n)$ où le vecteur de paramètre \mathbf{p}_n est perturbé $\mathbf{p}_p = \mathbf{p}_n + \delta\mathbf{p}$.

De même, les solutions du problème associées aux conditions paramétriques *nominales* sont indicées "n" et celles associées aux conditions *perturbées*, "p". A titre d'exemple, $u_n(t)$ est le profil optimal de commande du problème associé au vecteur nominal de paramètres \mathbf{p}_n et $u_p(t)$ de celui associé au vecteur perturbé \mathbf{p}_p .

Dans cette section, la notation précisant le caractère optimal de chacune des grandeurs mentionnées est volontairement omise afin de ne pas alourdir les relations. Il est cependant évident que la grandeur considérée ne peut être optimale que lorsque son indice et celui des paramètres opératoires correspondent. En d'autres termes, le critère J_p et la trajectoire de commande u_p ne sont optimaux que lorsqu'ils sont associés aux conditions opératoires \mathbf{p}_p .

Dans cette étude, la première partie est consacrée à l'analyse de la sensibilité du critère optimal J et la seconde partie est dédiée à l'analyse de la sensibilité des trajectoires optimales $\mathbf{x}(t)$, $\boldsymbol{\lambda}(t)$ et $u(t)$.

4.1.2 Sensibilité du critère optimal

Définitions

Dans cette section, la sensibilité du système est étudiée en analysant l'influence des erreurs des paramètres sur le critère d'optimisation. Cette grandeur est en effet le seul élément qui permet de caractériser la solution optimale du problème. Un indice de déviation du critère représentant les variations relatives du critère perturbé $J_p(\cdot)$ par rapport au critère nominal $J_n[u_n(t)]$, est défini :

$$S = \frac{(J_p(\cdot) - J_n[u_n(t)])}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.7)$$

D'autre part, la comparaison du critère issu de la commande optimisée $u(t)$ et du critère issu de la meilleure commande uniforme v , permet de montrer l'intérêt de l'optimisation dynamique. Afin de quantifier l'optimalité de ces résultats, nous avons défini un indice I d'optimalité qui traduit l'amélioration relative entre le critère optimal $J(u(t))$ et le critère statique $J(v)$.

$$I = \frac{[J(u(t)) - J(v)]}{J(v)} \quad (4.8)$$

L'analyse de la sensibilité de cet indice d'optimalité doit montrer dans quelle mesure les améliorations observées entre les opérations statiques et dynamiques restent intéressantes, même en cas d'erreurs sur les paramètres du modèle.

La présence de contraintes a de toute évidence une influence importante sur les résultats optimaux. L'analyse de leur sensibilité est donc indispensable. Les écarts de la contrainte sont normalisés par $J_n[u_n(t)]$ et exprimés par l'indice σ :

$$\sigma = \frac{\phi_p(\cdot)}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.9)$$

La définition des indices S , I et σ fournit les écarts normalisés des grandeurs correspondantes, en cas de perturbations des paramètres. Les perturbations δp sont également normalisées en les exprimant par une relation du type $\delta p = \epsilon p_n$. La sensibilité relative de ces grandeurs est ainsi définie comme la pente des courbes $S(\epsilon)$, $I(\epsilon)$ et $\sigma(\epsilon)$

L'analyse de la sensibilité consiste donc à étudier l'influence des perturbations des paramètres sur les grandeurs précédemment décrites. Pour un problème d'optimisation, la notion de perturbation se traduit :

- au niveau du problème à résoudre :

On a distingué alors le problème *nominal* $OCP(n)$, associé à l'optimisation du critère J_n et le problème *perturbé* $OCP(p)$, associé à l'optimisation du critère J_p

- au niveau de la solution du problème :

On a distingué alors le profil de commande *nominal* $u_n(t)$, solution optimale de $OCP(n)$ et le profil *perturbé* $u_p(t)$, solution de $OCP(p)$.

Il existe donc deux manières d'analyser l'influence des perturbations sur le critère. On peut en effet considérer :

- (i) le cas où la commande optimale *nominale* $u_n(t)$ est utilisée comme solution du problème *perturbé* $OCP(p)$. Il est alors nécessaire de résoudre un problème de valeur initiale (Caracotsios et Stewart, 1985; Nikolaou et Manousiouthakis, 1990; Fournier et Latifi, 1997). D'un point de vue pratique, ce cas illustre la prédiction des résultats optimaux si la solution optimale idéale était utilisée pour conduire le procédé.
- (ii) le cas où la commande optimale *perturbée* $u_p(t)$ est utilisée sur le problème *perturbé* $OCP(p)$. Il est alors nécessaire de résoudre un problème aux conditions limites séparées ($TPBVP$). Ce cas illustre le "décalage" des conditions optimales lorsque celles-ci sont déterminées pour le procédé réel et non plus pour le procédé modélisé.

Sensibilité du critère On distingue alors deux indices de déviation du critère S :

- (i) l'indice de déviation du critère soumis à la commande *nominale* $u_n(t)$:

$$S_n = \frac{(J_p[u_n(t)] - J_n[u_n(t)])}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.10)$$

- (ii) l'indice de déviation du critère soumis à la commande *perturbée* $u_p(t)$:

$$S_p = \frac{(J_p[u_p(t)] - J_n[u_n(t)])}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.11)$$

Sensibilité des contraintes Dans le cas où la commande nominale est utilisée pour un système perturbé (i), l'analyse de la sensibilité des contraintes est similaire à celle du critère. Les résultats sont présentés sous la même forme, à savoir :

$$\sigma_{in} = \frac{\phi_{ip}[u_n(t)]}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.12)$$

Leur interprétation est d'ailleurs immédiate.

Dans le cas du système perturbé fonctionnant dans ses conditions optimales (ii), la déviation des contraintes s'exprime sous une toute autre forme. En effet, les contraintes $\Phi = 0$ sont, dans les conditions optimales, satisfaites. Il n'est donc pas possible d'étudier leurs variations. Cependant, la nécessité de satisfaire les contraintes conduit à une valeur du critère qui est différente de celle obtenue en absence de contrainte. Les contraintes provoquent donc une déviation du critère. Nous verrons plus loin que l'analyse de la sensibilité du critère *perturbé* permet de quantifier cette déviation. La sensibilité des contraintes sera donc exprimée sous la forme d'un indice de déviation du type :

$$\sigma_{ip} = \frac{\Delta\phi_i}{J_n[u_n(t)]} \quad (4.13)$$

où $\Delta\phi_i$ correspond à la déviation du critère optimal *perturbé* provoquée par la nécessité de satisfaire la contrainte Φ .

Sensibilité de l'indice d'optimalité La distinction des cas (i) et (ii) conduit à utiliser pour le calcul des indices d'optimalité, différents critères statiques de référence. Contrairement à cette distinction, les valeurs des critères issus des opérations à profil de commande uniforme sont toujours considérées dans des conditions optimales, c'est-à-dire qu'on utilise comme référence statique :

- (i) la valeur du critère $J_n(v_n)$ obtenue pour la meilleure opération statique avec le modèle nominal. La grandeur permettant de quantifier l'optimalité entre les modes opératoires dynamique et statique, est donnée par l'indice I_n :

$$I_n = \frac{[J_p(u_n) - J_n(v_n)]}{J_n(v_n)} \quad (4.14)$$

- (ii) la valeur du critère $J_p(v_p)$ obtenue pour la meilleure opération statique avec le modèle perturbé. La grandeur permettant de quantifier l'optimalité entre les deux modes opératoires, est donnée par la relation :

$$I_p = \frac{[J_p(u_p) - J_p(v_p)]}{J_p(v_p)} \quad (4.15)$$

Dans les définitions des indices d'optimalité et de déviation précédents, il est nécessaire de calculer les critères pour les modèles nominaux et perturbés dans des opérations à profil de commande uniforme et optimisé. La détermination des conditions relatives aux meilleures opérations statiques ne pose aucun problème. De même, le calcul du critère issu de l'application de la commande optimale nominale sur le système perturbé ne nécessite qu'une simple intégration numérique. En revanche, la détermination des conditions optimales relatives aux opérations perturbées est plus longue. Elle nécessite traditionnellement, la résolution d'un problème aux conditions limites partagées (*TPBVP*). La section suivante présente une méthode permettant d'éviter ces multiples résolutions en exploitant l'information disponible dans les conditions optimales nominales (Evers, 1980; Peterson, 1974; House et al., 1993; Kreindler, 1972).

Méthode d'estimation des conditions optimales perturbées

Pour estimer les variations des conditions optimales en présence de variations des paramètres, on considère le développement de l'expression du critère au voisinage des conditions optimales nominales \mathbf{x}_n , λ_n , u_n et \mathbf{p}_n :

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} &= \bar{J}(\mathbf{x}_p, u_p, \mathbf{p}_p) - \bar{J}(\mathbf{x}_n, u_n, \mathbf{p}_n) \\ &= \frac{\partial \bar{J}}{\partial \mathbf{x}} \delta \mathbf{x} + \frac{\partial \bar{J}}{\partial u} \delta u + \frac{\partial \bar{J}}{\partial \mathbf{p}} \delta \mathbf{p} \end{aligned} \quad (4.16)$$

où chaque dérivée partielle est calculée le long des trajectoires optimales nominales.

D'autre part, on a aussi :

$$\begin{aligned} \delta \bar{J} &= \bar{J}(\mathbf{x}_p, u_p, \mathbf{p}_p) - \bar{J}(\mathbf{x}_n, u_n, \mathbf{p}_n) \\ &= J(\mathbf{x}_p, u_p, \mathbf{p}_p) + \nu_p \Phi_p - J(\mathbf{x}_n, u_n, \mathbf{p}_n) + \nu_n \Phi_n \\ &= J(\mathbf{x}_p, u_p, \mathbf{p}_p) - J(\mathbf{x}_n, u_n, \mathbf{p}_n) \\ &= \delta J \end{aligned} \quad (4.17)$$

En exprimant l'intégrande F du critère (4.1) sous la forme $F = H_0 - \lambda_0 f$ et les conditions d'optimalité qui sont satisfaites pour les trajectoires nominales, les développements conduisent à (Evers, 1980; Nikolaou et Manousiouthakis, 1990) :

$$\delta J = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_0}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \delta \mathbf{p} \right] dt + \nu^T \delta \Phi \quad (4.18)$$

Superposition des problèmes

Dans le développement de (4.18), les auteurs distinguent le critère et les contraintes du problème. Les contraintes ϕ_i peuvent être exprimées sous une forme *canonique* (Teo et al., 1991), équivalente à celle du critère. Elles sont alors associées à un Hamiltonien H_i et à un vecteur adjoint λ_i .

À l'optimisation du critère augmenté $\bar{J} = J_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \phi_i$ correspond alors un Hamiltonien augmenté $H = H_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i H_i$ et un vecteur adjoint augmenté $\lambda = \lambda_0 + \sum_{i=1}^q \nu_i \lambda_i$.

Les variations δJ du critère s'expriment alors par :

$$\delta J = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_0}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \delta \mathbf{p} \right] dt + \sum_{i=1}^q \nu_i \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_i}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \delta \mathbf{p} \right] dt \quad (4.19)$$

Lorsque le problème nominal a été résolu, ce résultat peut être utilisé de plusieurs façons. On peut en effet s'intéresser à la sensibilité :

- soit d'une manière globale en considérant le coefficient W_J :

$$W_J = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \right] dt \mathbf{p}_n \quad (4.20)$$

Ce terme conduit au calcul des indices de déviation et d'optimalité précédemment définis.

- soit d'une manière individuelle, en considérant la contribution *intrinsèque* W_{J_0} et la contribution des contraintes W_{ϕ_i} , $i = 1, q$ sur la déviation globale du critère :

$$W_{J_0} = \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_0}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \right] dt \mathbf{p}_n \quad (4.21)$$

$$W_{\phi_i} = \nu_i \int_0^{t_f} \left[\frac{\partial H_i}{\partial \mathbf{p}^T}(\mathbf{x}_n, \lambda_n, u_n, \mathbf{p}_n) \right] dt \mathbf{p}_n \quad (4.22)$$

L'évaluation des termes W_{ϕ_i} permet de quantifier les variations du critère liées au fait que la commande $u_p(t)$ satisfait également la contrainte $\Phi = \mathbf{0}$. Ce terme indique donc la sensibilité du critère par rapport aux contraintes. La forme canonique des contraintes permet ainsi dans certains cas, d'évaluer la contribution spécifique de la satisfaction des contraintes sur les variations du critère.

- soit d'un point de vue de la distribution temporelle de ces influences. On considère alors la fonction de sensibilité définie par :

$$\omega_i(t) = \frac{\partial H_i(t)}{\partial \mathbf{p}^T} \quad (4.23)$$

Cette étude permet alors de préciser les périodes pendant lesquelles la sensibilité du critère est la plus grande. Il est alors possible, lors de la mise en oeuvre de la commande optimale, de focaliser les précautions de mesure et de contrôle sur certaines périodes "sensibles" de l'opération. Ces fonctions de sensibilité ne sont pas présentées dans cette section car des fonctions équivalentes font l'objet de la section suivante.

Dans (4.19), les multiplicateurs de Lagrange optimaux ν_i sont ceux associés à la solution optimale nominale du problème. Cependant, selon la méthode utilisée, la valeur de ce multiplicateur est plus ou moins directement accessible. Dans la méthode d'itération sur les conditions limites (*BCI, Boundary Condition Iteration*), par exemple, les variables adjointes et le Hamiltonien manipulé sont associés au critère augmenté. Les multiplicateurs ν_i ne sont alors pas explicitement accessibles. Le calcul des multiplicateurs à partir des grandeurs globales n'est d'ailleurs possible que dans des cas particuliers. Dans les méthodes d'itération du vecteur de commande (*CVI, Control Vector Iteration*) et de paramétrisation du vecteur de commande (*CVP, Control Vector Parametrisation*), la résolution est effectuée par superposition des problèmes et les multiplicateurs de Lagrange sont solutions explicites du problème.

Application à la maximisation de la concentration

On considère le problème de la maximisation de la concentration finale en B , à conversion de A imposée, dans le schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$. L'ensemble des relations décrivant

Coefficient	Unité	Valeur
k_{dA}	$m.s^{-1}$	$5 - 10 \cdot 10^{-5}$
$r_k = k_{dB}/k_{dA}$	<i>S.I</i>	0.1
C_{A0}	$mol.m^{-3}$	680.0
C_{B0}	$mol.m^{-3}$	0.0
C_{D0}	$mol.m^{-3}$	0.0
X_{Af} imposée	<i>S.I</i>	0.8
t_f	<i>s</i>	3600

Tableau 4.1: Conditions de l'analyse de sensibilité.

ce problème est donné dans les chapitres 1 et 2. Le système résultant de l'application du Principe du Maximum est détaillé en annexe A. Le problème et la solution optimale sont donc définis par le problème aux conditions limites partagées (TPBVP) :

$$\begin{aligned}
 \dot{\mathbf{x}} &= A(\mathbf{u}, \mathbf{p}) \mathbf{x} + B(\mathbf{u}, \mathbf{p}) \\
 J_0 &= x_2(t_f) \\
 \phi_1 &= x_1(t_f) - x_{10}(1 - X_{Af}) = 0 \\
 H_i(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}_i, \mathbf{u}) &= \boldsymbol{\lambda}_i^T f(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \quad i = 0, 1 \\
 \dot{\boldsymbol{\lambda}}_i &= A^T(\mathbf{u}, \mathbf{p}) \boldsymbol{\lambda}_i \quad i = 0, 1 \\
 \boldsymbol{\lambda}_0^T(t_f) &= (0 \quad -1) \\
 \boldsymbol{\lambda}_1^T(t_f) &= (1 \quad 0)
 \end{aligned} \tag{4.24}$$

On définit également le Hamiltonien H et le vecteur adjoint associés au critère augmenté $\bar{J} = J_0 + \nu_1 \phi_1$:

$$\begin{aligned} H(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}, u) &= H_0(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}_0, u) + \nu_1 H_1(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}_1, u) \\ \boldsymbol{\lambda} &= \boldsymbol{\lambda}_0 + \nu_1 \boldsymbol{\lambda}_1 \end{aligned} \quad (4.25)$$

Les éléments des matrices $A(u, \mathbf{p})$ et $B(u, \mathbf{p})$ sont des fonctions non-linéaires de la commande, des coefficients cinétiques k_{fi} , k_{bi} , β_i et α_i et des coefficients de transfert de matière k_{di} . Le schéma réactionnel est considéré irréversible, le vecteur de paramètres influant sur le modèle est donc :

$$\mathbf{p}^T = (k_{dA} \quad k_{dB} \quad k_{f10} \quad k_{f20} \quad \beta_1 \quad \beta_2) \quad (4.26)$$

Les variations du critère optimal perturbé sont données par :

$$\delta J = \int_0^{t_f} \sum_{i=1}^r \left[\frac{\partial H_0}{\partial p_i} + \nu_1 \frac{\partial H_1}{\partial p_i} \right] \delta p_i dt \quad (4.27)$$

où les termes $\frac{\partial H_i}{\partial p_j}$, $i = 0, 1$, $j = 0, 1, n_p$ sont donnés par :

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_i}{\partial p_j} &= \boldsymbol{\lambda}_i^T \left[\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial p_j} \mathbf{x} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial p_j} \right] \\ &= \lambda_{i1} \left[\frac{\partial A_{11}}{\partial p_j} x_1 + \frac{\partial A_{12}}{\partial p_j} x_2 + \frac{\partial B_1}{\partial p_j} \right] \\ &\quad + \lambda_{i2} \left[\frac{\partial A_{21}}{\partial p_j} x_1 + \frac{\partial A_{22}}{\partial p_j} x_2 + \frac{\partial B_2}{\partial p_j} \right] \end{aligned} \quad (4.28)$$

Les détails des développements des dérivées partielles ne présentent pas d'intérêt particulier et sont donc fournis en annexes D.

Les conditions opératoires considérées pour la détermination des conditions optimales et l'analyse de la sensibilité, sont résumées dans le tableau 4.1.

Résultats

Système perturbé en condition optimale nominale: $J_p(u_n)$ Dans cette section, l'évolution du critère J_p et de la contrainte ϕ_{1p} du système perturbé, soumis à la commande optimale du système *nominale* u_n en fonction des erreurs commises sur chacun des paramètres, est considérée. Cette évolution est présentée sous la forme d'un indice de déviation S_n rapporté au critère optimal nominal $J_n(u_n)$. Les valeurs du critère et de la contrainte du système perturbé soumis à commande nominale ont été obtenues par simple intégration du système.

Les figures 4.1, 4.3 et 4.5 présentent l'évolution de cet indice de déviation pour des erreurs sur chacun des paramètres variant de -50% à $+50\%$ pour les deux premières et de -5% à $+5\%$ pour la troisième. Ces figures montrent que le système dans de telles conditions est moins sensible à une éventuelle erreur sur les coefficients de transfert de matière k_d qu'à une erreur sur les facteurs de fréquence k_{f0} , les paramètres les plus sensibles étant bien évidemment les coefficients énergétiques β_i .

La figure 4.1 montre que les influences des coefficients de transfert k_{dA} et k_{dB} sur l'indice de déviation du critère sont équivalentes et agissent dans le même "sens", en provoquant une déviation positive lorsque l'erreur sur le paramètre est positive.

Les figures 4.3 et 4.5 montrent que les influences des coefficients cinétiques de chacune des deux réactions sont opposées. Ces coefficients favorisent ou défavorisent soit la réaction

$$S_n = [J_p(u_n) - J_n(u_n)]/J_n(u_n)$$

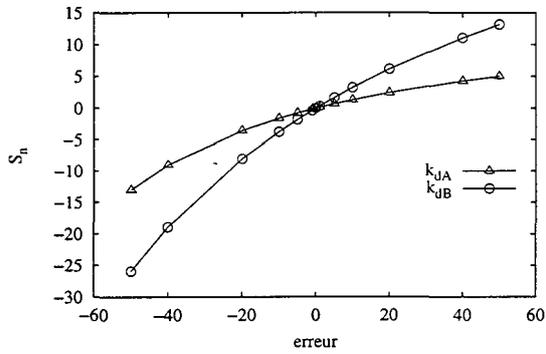


Figure 4.1: Sensibilité du critère aux coefficients de transfert de matière.

$$\sigma_n = \phi_{1p}(u_n)/J_n(u_n)$$

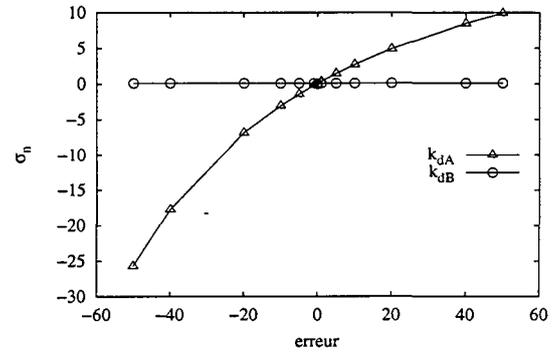


Figure 4.2: Sensibilité de la contrainte aux coefficients de transfert de matière.

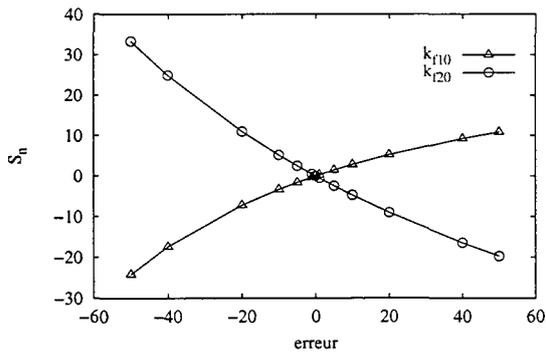


Figure 4.3: Sensibilité du critère aux facteurs de fréquence.

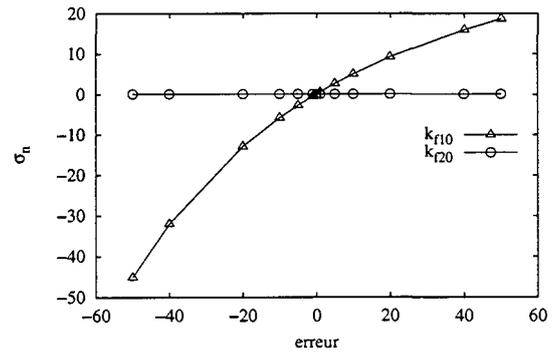


Figure 4.4: Sensibilité de la contrainte aux facteurs de fréquence.

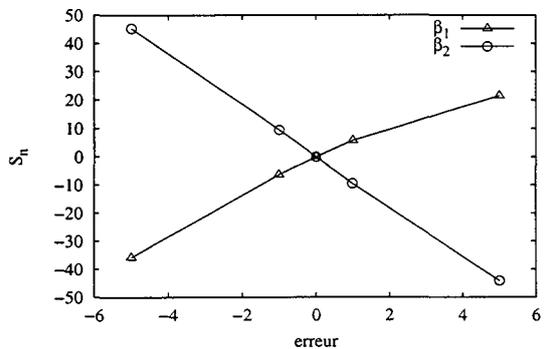


Figure 4.5: Sensibilité du critère aux coefficients énergétiques.

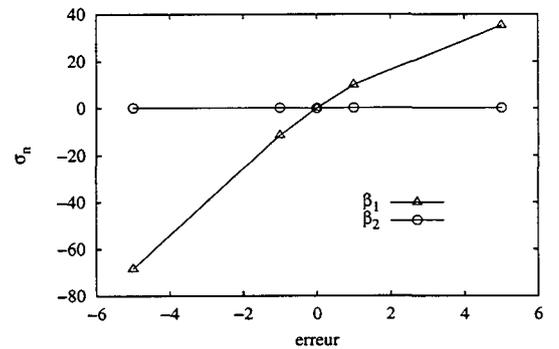


Figure 4.6: Sensibilité de la contrainte aux coefficients énergétiques.

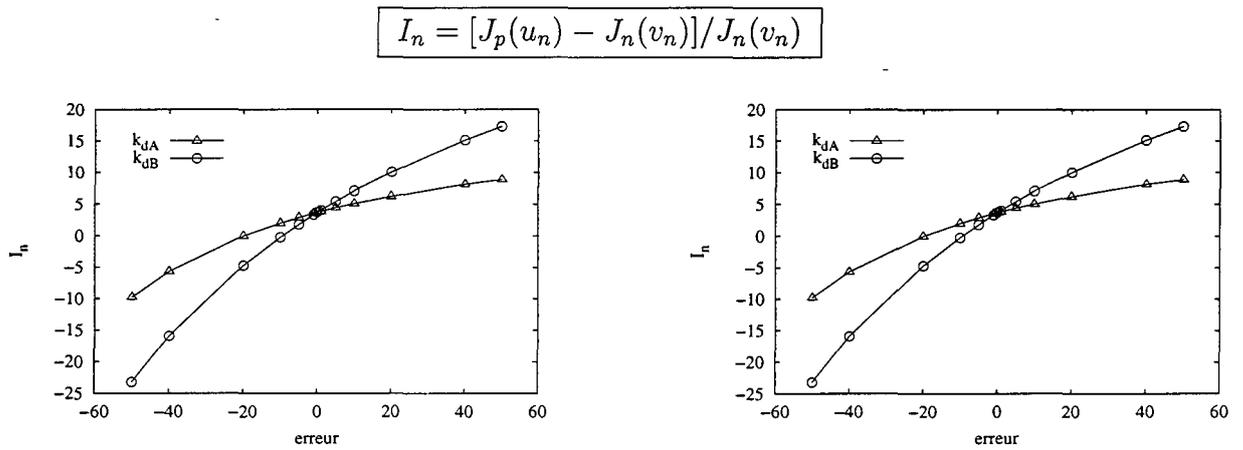


Figure 4.7: Sensibilité de l'amélioration aux coefficients de transfert de matière.

Figure 4.8: Sensibilité de l'amélioration aux facteurs de fréquence.

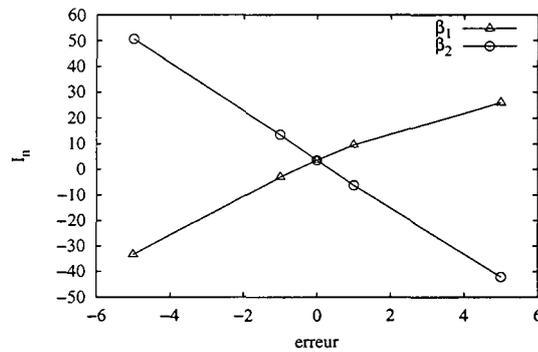


Figure 4.9: Sensibilité de l'amélioration aux coefficients énergétiques.

$A \rightarrow B$ soit $B \rightarrow D$ et interviennent donc directement et d'une manière antagoniste sur le rendement en B . La compétition entre les deux réactions est à l'origine de ce résultat. La sensibilité de la contrainte est illustrée sur les figures 4.2, 4.4 et 4.6. La contrainte du système est naturellement insensible aux paramètres k_{dB} , k_{f20} et β_2 puisque ces derniers paramètres n'interviennent pas dans les phénomènes de conversion de A . La sensibilité de la contrainte par rapport aux autres paramètres indique cependant que l'utilisation du profil nominal $u_n(t)$ ne convient évidemment pas aux objectifs de conversion imposés. La présentation des résultats sous la forme d'un indice relatif au critère optimal nominal montre de plus le *poids* des déviations des contraintes par rapport aux déviations du critère.

Les figures 4.7, 4.8 et 4.9 présentent l'évolution de l'amélioration du critère entre une opération où le système perturbé est soumis à la commande optimale nominale et une opération statique nominale. Cette grandeur permet, en cas d'erreur sur les paramètres, d'estimer la validité des indices d'optimalité présentés dans la chapitre 3. A la lumière de ces résultats, il est possible d'affirmer que les améliorations obtenues sont relativement peu sensibles aux erreurs sur les paramètres k_d et k_f . En revanche, la sensibilité aux coefficients énergétiques est telle qu'une erreur de 1% sur β_2 conduit à une dégradation de l'amélioration qui rend le bénéfice de l'optimisation dynamique nul ou négligeable.

Tous ces résultats traduisent la sensibilité de l'amélioration entre les opérations dynamique et statique mais ne prennent pas en compte la violation de la contrainte. Il est clair que dans ces conditions, on ne peut plus parler d'optimalité. La sensibilité de l'amélioration précédemment décrite est donc à traiter plus d'une manière qualitative que quantitative.

Paramètre	Contribution		
	Coefficient de Sensibilité Globale (W_J)	Intrinsèque (W_{J0})	Contrainte (W_{ϕ_1})
k_{dA}	0.093	0.057	0.0363
k_{dB}	0.136	0.136	0.000
k_{f10}	0.187	0.119	0.068
k_{f20}	-0.193	-0.193	0.000
β_1	3.732	2.364	1.368
β_2	-3.732	-3.732	0.000

Tableau 4.2: Contribution de la contrainte aux coefficients de sensibilité globale du critère

Importance de la contrainte sur le critère optimal D'une manière intuitive, la déviation du critère optimal lorsque l'on "passe" du problème $OCP(n)$ au problème $OCP(p)$ correspond à la contribution de deux phénomènes (phénomène est entendu au sens mathématique et non pas physique). La première contribution correspond à la déviation intrinsèque du critère, la déviation du critère entre $OCP(n)$ et $OCP(p)$ mais en absence de contraintes. La seconde contribution résulte du fait qu'en satisfaisant la contrainte Φ , la valeur du critère optimal atteinte est différente de la valeur intrinsèque. La distinction entre ces deux contributions est possible grâce à la relation (4.19). Le tableau 4.2 donne une idée sur les ordres de grandeur et les contributions à la fois du critère et des contraintes. Il présente ainsi les valeurs du coefficient global de sensibilité du critère W_J , de

la contribution intrinsèque du critère W_{J_0} et de la contribution des contraintes $\nu_1 W_{\phi_1}$. Ces coefficients ont été calculés à partir des relations (4.20) - (4.22).

Les indices de déviations associés aux coefficients k_{dB} , k_{f20} et β_2 sont naturellement nuls puisqu'ils n'agissent pas sur la contrainte. Les résultats montrent que la contribution de la contrainte sur les déviations du critère s'élève à plus de 30%. Ceci montre le poids que peut avoir une contrainte sur les performances optimales du système.

4.1.3 Sensibilité des trajectoires

Définitions

Dans la première partie de cette section, l'analyse de la sensibilité du critère a été présentée. Cette analyse caractérise l'influence des erreurs d'estimation des paramètres sur la valeur du critère en fin d'opération. Le critère ne constitue cependant pas une grandeur opératoire du système dans son fonctionnement optimal. D'un point de vue pratique, la sensibilité des trajectoires de l'état et surtout de la commande semble plus intéressante. Cette analyse permet en effet de localiser les périodes de l'opération où le système mérite une très grande attention mais elle permet en plus de focaliser l'attention sur l'élément du système qui mérite cette attention. Il est ainsi possible de favoriser soit la précision du régulateur optimal, soit la précision de l'estimateur d'état pour l'un et/ou l'autre des états en fonction de la sensibilité des variables associées.

On définit pour le système considéré, les fonctions de sensibilité $W_z(t)$ représentant l'influence des paramètres p sur la trajectoire $z(t)$:

$$W_z(t) = \frac{\partial z}{\partial p} \quad (4.29)$$

Dans le cas présent, les trajectoires $z(t)$ considérées sont celles des variables $x(t)$, $\lambda(t)$ et $u(t)$.

$$W_x = \frac{\partial x}{\partial p} \quad W_\lambda = \frac{\partial \lambda}{\partial p} \quad \text{et} \quad W_u = \frac{\partial u}{\partial p} \quad (4.30)$$

Les équations de sensibilité des variables d'état x , des variables adjointes λ et de la commande u , sont données par différentiation des équations algèbro-différentielles du Principe du Maximum, par rapport aux paramètres p considérés, soit :

$$\left[\frac{\partial \dot{z}}{\partial p} \right] = \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial z}{\partial p} \right] = \frac{\partial \left[\frac{dz}{dt} \right]}{\partial p} = \frac{\partial \dot{z}}{\partial p} \quad (4.31)$$

Pour un système sans contrainte terminale, les équations des indices de sensibilité des grandeurs du Principe du Maximum sont ainsi données par :

$$\begin{aligned} \dot{W}_x &= \frac{\partial}{\partial p} \left[\frac{\partial H}{\partial \lambda^T} \right] & W_x(0) &= 0 \\ \dot{W}_\lambda &= -\frac{\partial}{\partial p} \left[\frac{\partial H}{\partial x^T} \right] & W_\lambda(t_f) &= 0 \\ 0 &= \frac{\partial}{\partial p} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right] \end{aligned} \quad (4.32)$$

Ce qui, compte tenu de l'expression du système hamiltonien, conduit à :

$$\begin{aligned}
\dot{W}_x &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \left[\frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\lambda}^T} \right] W_x + \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{\lambda}} \left[\frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\lambda}^T} \right] W_\lambda + \frac{\partial}{\partial u} \left[\frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\lambda}^T} \right] W_u + \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \left[\frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\lambda}^T} \right] \\
W_x(0) &= 0 \\
\dot{W}_\lambda &= -\frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \left[\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \right] W_x - \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{\lambda}} \left[\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \right] W_\lambda - \frac{\partial}{\partial u} \left[\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \right] W_u - \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \left[\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \right] \\
W_\lambda(t_f) &= 0 \\
0 &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right] W_x + \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{\lambda}} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right] W_\lambda + \frac{\partial}{\partial u} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right] W_u + \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \left[\frac{\partial H}{\partial u} \right]
\end{aligned} \tag{4.33}$$

Dans le cas d'un système soumis à des contraintes terminales sur l'état, les conditions terminales de ce problème aux conditions limitées partagées (TPBVP) se déduisent immédiatement des conditions terminales $\mathbf{x}(t_f)$ et $\boldsymbol{\lambda}(t_f)$.

Il est évident que l'analyse de la sensibilité des trajectoires adjointes ne présente qu'un intérêt très limité dans la mesure où elle n'est pas aussi facilement exploitable que la sensibilité des profils d'état et de commande. Elle n'est présentée ici que dans le but de conserver la forme hamiltonienne du système et de montrer l'analogie avec le système du PMP dont ce système linéarisé découle.

L'analyse de la sensibilité des trajectoires optimales consiste donc à résoudre, un problème aux conditions aux limites séparées. À la différence de Eaton et Rawlings (1990) qui présentent une analyse similaire dans le cas d'une commande paramétrée, la résolution du TPBVP est envisagée dans sa forme continue. La résolution de ce TPBVP est cependant plus simple que celle du problème d'optimisation dont il est issu. En effet, la sensibilité optimale W_u est explicitement donnée par la relation algébrique (4.33) de ce système.

Application à la maximisation de la concentration

On considère le problème de la maximisation de la concentration finale en B , à conversion de A imposée, dans le schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$. La différentiation par rapport à \mathbf{p} du système du Principe du Maximum conduit alors à :

$$\begin{aligned}
\dot{W}_x &= A W_x + \left[\frac{\partial A}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial u} \right] W_u + \left[\frac{\partial A}{\partial \mathbf{p}} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial \mathbf{p}} \right] \\
W_x^T(0) &= (0 \quad 0) \\
\dot{W}_\lambda &= -A^T W_\lambda - \left[\frac{\partial A}{\partial u} \right]^T \boldsymbol{\lambda} W_u - \left[\frac{\partial A}{\partial \mathbf{p}} \right]^T \boldsymbol{\lambda} \\
W_x^T(t_f) &= (0 \quad -) \\
W_\lambda^T(t_f) &= (- \quad 0) \\
0 &= \boldsymbol{\lambda} \left[\frac{\partial A}{\partial u} \right] W_x + \left[\mathbf{x}^T \frac{\partial A^T}{\partial u} + \frac{\partial B^T}{\partial u} \right] W_\lambda \\
&\quad + \boldsymbol{\lambda}^T \left[\frac{\partial^2 A^T}{\partial u^2} \mathbf{x} + \frac{\partial^2 B}{\partial u^2} \right] W_u + \boldsymbol{\lambda}^T \left[\frac{\partial^2 A}{\partial \mathbf{p} \partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial^2 B}{\partial \mathbf{p} \partial u} \right]
\end{aligned} \tag{4.34}$$

Les détails des développements des dérivées partielles sont fournis en annexe D. Les conditions opératoires considérées sont résumées dans le tableau 4.1.

$$p W_x(t) = p \frac{\partial x(t)}{\partial p}$$

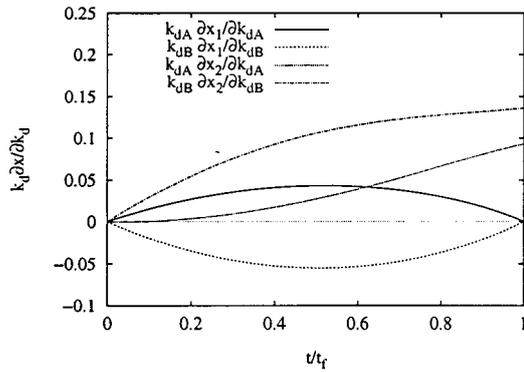


Figure 4.10: Sensibilité des états aux coefficients de transfert de matière.

$$p W_u(t) = p \frac{\partial u(t)}{\partial p}$$

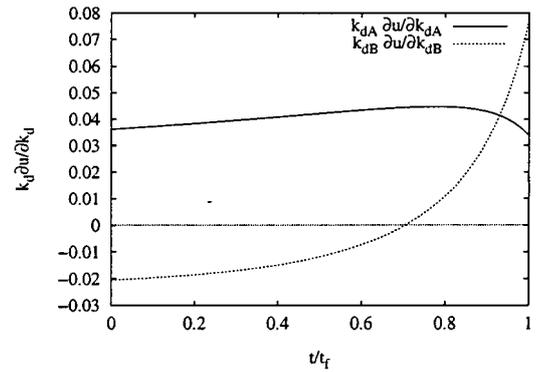


Figure 4.11: Sensibilité de la commande aux coefficients de transfert de matière.

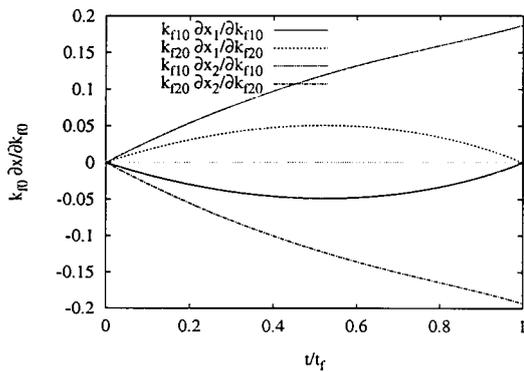


Figure 4.12: Sensibilité des états aux facteurs de fréquence.

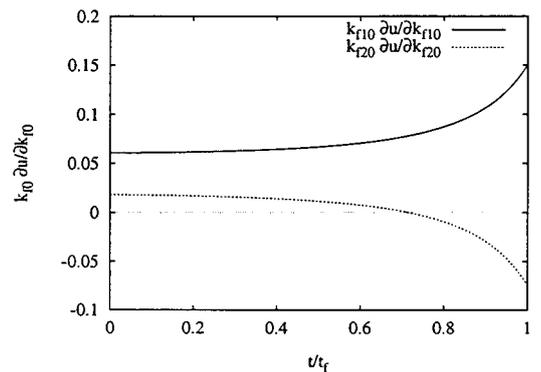


Figure 4.13: Sensibilité de la commande aux facteurs de fréquence.

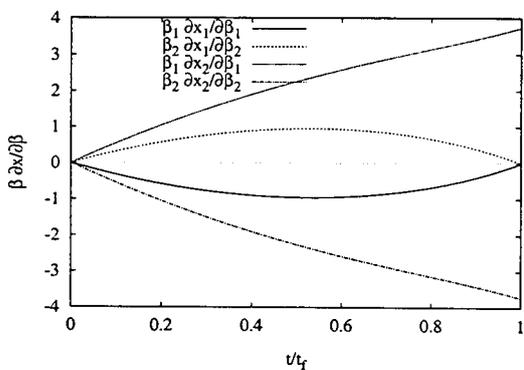


Figure 4.14: Sensibilité des états aux coefficients énergétiques.

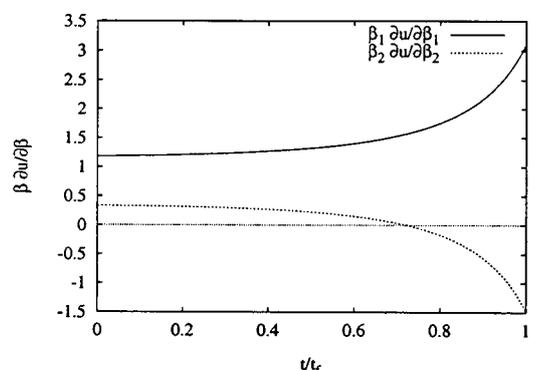


Figure 4.15: Sensibilité de la commande aux coefficients énergétiques.

Résultats

Les fonctions de sensibilité de l'état et de la commande ont été calculées par résolution du problème aux conditions limites partagées *TPBVP* (4.34). Les fonctions de sensibilité ont par ailleurs été estimées par perturbations numériques, en résolvant un problème à paramètre perturbé et en calculant pour chaque trajectoire l'estimation :

$$W_z^{num}(t) = \frac{[z_p(t) - z_n(t)]}{\epsilon p_n} p_n \quad (4.35)$$

La valeur de la perturbation relative ϵ utilisée varie de 0.1 à 1% en fonction de la sensibilité du système au coefficient considéré. La comparaison des profils calculés analytiquement et estimés par perturbations numériques, des fonctions de sensibilité $W_{x_1}(t)$, $W_{x_2}(t)$ et $W_u(t)$ ne présente pas d'intérêt particulier puisqu'ils ne peuvent pas être distingués. Ce résultat permet de vérifier la fiabilité des résultats obtenus à partir d'un développement au premier ordre des conditions d'optimalité du Principe du Maximum.

Les profils de la sensibilité des trajectoires d'état sont donnés sur les figures 4.10, 4.12 et 4.14. Les fonctions représentées sont normalisées en les multipliant par la valeur nominale du paramètre considéré. Cette normalisation supprime ainsi l'influence de la dimension du paramètre et permet la comparaison. Comme dans le cas de l'analyse de la sensibilité du critère, les ordres de grandeurs des sensibilités de l'état vérifient la hiérarchie $k_d < k_f \ll \beta$. La sensibilité terminale de l'état x_1 est toujours nulle puisque cet état correspond au titre du réactif A qui est imposé. On relève de plus une certaine symétrie temporelle dans les profils des sensibilités de l'état x_1 indiquant que les paramètres ont le plus d'influence sur la concentration optimale de A au "milieu" de l'opération. La symétrie entre des profils relatifs aux coefficients de transfert ou aux facteurs de fréquence ou aux coefficients énergétiques montre les effets antagonistes des paramètres. Il est difficile d'interpréter cette symétrie. Il faut toutefois noter que le profil de x_1 est relatif à un problème de maximisation de $C_B(t_f)$. On peut penser que les effets antagonistes des paramètres k_{dA} , k_{f1} et β_1 , d'une part, et k_{dB} , k_{f2} et β_2 d'autre part, sur la production de B , se traduisent directement sur la consommation de A .

En ce qui concerne la sensibilité de l'état x_2 , les effets antagonistes des paramètres cinétiques sur la production de B conduisent à une symétrie des profils plus explicite. Les profils de sensibilité de x_2 aux coefficients de transfert indiquent par ailleurs que ces derniers ont le même type d'influence sur la concentration de B même si leur ampleur et leur répartition temporelle sont différentes. Il est concevable en effet que le paramètre k_{dB} ait, dès le début de l'opération, une influence sur la production de B comme l'indique la figure 4.10. En effet, le transfert de B depuis l'électrode vers le coeur de la solution électrolytique conditionne directement et de manière irréversible, le titre en B . L'influence du coefficient k_{dA} sur cette production en fin d'opération est probablement due à la contrainte sur le taux de conversion de A . Compte tenu du rapport des coefficients cinétiques énergétiques, cette contrainte n'est satisfaite qu'aux dépens de la production de B . Le profil optimal du potentiel d'électrode, illustré sur la figure 3.54 page 133, présente en effet une "brusque" baisse en fin d'opération.

Le critère du problème étudié correspond d'ailleurs au titre x_2 et il est ainsi possible de faire le lien avec les résultats obtenus lors de l'analyse de la sensibilité du critère. La valeur finale de la sensibilité $W_{x_2}(t_f)$ correspond en effet à la sensibilité du critère et on retrouve ainsi les résultats décrits dans le tableau 4.2.

Les figures 4.11, 4.13 et 4.15 illustrent la sensibilité du profil optimal de commande aux différents types de paramètre du modèle.

L'ordre des sensibilités croissantes est conservé mais l'influence des paramètres k_d sur le profil de commande est sensiblement moins importante que sur le critère ou sur les trajectoires d'état. Il faut cependant être conscient de la nature qualitative des sensibilités W_x et W_u qui ont été définies. En effet, les sensibilités des trajectoires ont été normalisées en ce qui concerne l'influence du paramètre p mais pas en ce qui concerne x et u . Ces derniers ont un ordre de grandeurs proche de l'unité mais ils peuvent varier de 0 à 1 dans le cas de l'état x et de -1.7 à -1.0 dans le cas de u . Les sensibilités présentées sur les figures expriment des variations absolues de x et de u autour de leur trajectoire nominale. La comparaison des valeurs des sensibilités n'est possible que si les variations ainsi exprimées sont relatives. La forme absolue permet toutefois de conserver la dimension de la variable et donne un sens plus pragmatique aux déviations présentées.

En ce qui concerne l'allure du profil de la sensibilité de u , il apparaît que la variable de commande est très sensible aux différents paramètres dans la dernière partie de l'opération. C'est en effet pendant cette période que le potentiel d'électrode varie brutalement pour satisfaire la contrainte de conversion de A . De plus, contrairement aux résultats relatifs à la sensibilité du critère, l'influence des paramètres k_{dB} , k_{f20} et β_2 sur la commande, est explicite. Les figures montrent que si la valeur optimale du critère est insensible à ces paramètres, le profil optimal du potentiel est, quant à lui, aussi sensible à ces derniers qu'aux paramètres k_{dA} , k_{f10} et β_1 .

Les profils de la sensibilité de la variable de commande donnent ainsi une idée des périodes de l'opération où le profil optimal doit être le plus scrupuleusement respecté. Une autre approche intéressante consiste à déterminer un domaine fermé autour du profil optimal nominal dans lequel l'évolution du profil de commande provoquerait des déviations de la valeur du critère optimal, inférieures à une tolérance choisie. Cette approche permettrait en effet de connaître la précision nécessaire sur la régulation des profils optimaux de commande. La difficulté de ce problème réside dans la formulation du problème d'optimisation correspondant. En effet, ces formulations conduisent souvent à des systèmes dont la solution est souvent triviale ou inexistante. Il est en revanche possible de résoudre des formulations complexes mais dont l'interprétation est délicate. Des résultats dans ce sens ont été présentés (Eaton et Rawlings, 1990) dans le cas d'un réacteur chimique batch à commande paramétrée (température). Cependant, ils ne correspondent pas exactement à la définition précédente. D'une part, les résultats obtenus correspondent à la sensibilité du problème aux paramètres numériques du modèle. Les phénomènes physiques qui lient ces paramètres ne sont pas pris en compte. D'autre part, l'encadrement du profil de commande présentée ne traduit pas rigoureusement l'enveloppe décrite par les auteurs. Dans les cas continus qui nous intéressent, la perspective de la résolution de ce type de problème semble des plus intéressante. Elle apporterait une information importante sur les conditions de régulation nécessaires pour un fonctionnement optimal du système.

4.1.4 Conclusions

L'analyse de la sensibilité du système électrochimique apporte de nombreux résultats très intéressants pour une meilleure connaissance du fonctionnement optimal du procédé. Certains de ces résultats ne sont que la confirmation de certaines idées admises, à juste titre, comme l'extrême sensibilité du système aux coefficients énergétiques β_i . D'autres résultats sont souvent intuitifs et cette analyse permet à la fois de les préciser et de les quantifier. Enfin, ce type d'analyse permet de mettre en évidence des résultats qui ne sont pas, même intuitivement, accessibles comme ceux relatifs à la contribution des contraintes

aux déviations du critère perturbé.

La première conclusion que l'analyse de la sensibilité permet d'établir est la grande précision des estimations qui peuvent être faites à partir des relations présentées. Cette précision est une qualité très importante car elle évite la résolution de *TPBVP* et donc réduit le temps de calcul par rapport à une analyse de sensibilité conventionnelle.

La distinction entre la sensibilité *absolue* et la sensibilité *relative* est d'une importance capitale dans l'interprétation des résultats. La normalisation permet en effet de comparer les sensibilités *relatives* de grandeurs différentes par rapport à des paramètres de nature différentes. Elle correspond à une approche quantitative de l'analyse de la sensibilité. En revanche, la sensibilité *absolue* qui ne permet pas ce type de comparaison, fournit une information dont l'interprétation quantitative est plus pragmatique.

L'analyse de la sensibilité du critère pour un système *perturbé* dans des conditions optimales *nominales* a montré que l'utilisation de la solution *nominale* ne dégrade pas systématiquement l'amélioration relevée entre opération à profil de potentiel optimisé et profil de potentiel uniforme. Les indices d'optimalité qui quantifient le bénéfice de l'optimisation dynamique se sont avérés, en plus d'être encourageants, réalistes dans la mesure où les erreurs d'estimation des coefficients énergétiques β_i sont faibles (<1%).

L'analyse pour un système *perturbé* dans ses conditions optimales a permis de mettre en évidence l'influence de la contrainte de conversion de *A* sur le rendement en *B*. Elle a également révélé une large gamme de conditions opératoires, à l'exception des coefficients β_i , où l'indice d'optimalité est satisfaisant.

L'analyse de la sensibilité des trajectoires d'état et du profil de commande a montré que le début de l'opération est relativement peu sensible aux erreurs sur les paramètres du modèle. Elle a précisé quelles sont les zones sensibles en terme de contrainte x_1 , en terme de critère et en terme de commande u . Dans le cas étudié, la sensibilité de la trajectoire x_1 se situe au milieu de l'opération. Pour l'état x_2 , la sensibilité semble uniformément croissante du début à la fin de l'opération tandis que pour la commande, la sensibilité est principalement localisée dans les derniers instants de l'opération.

Tous ces résultats conduisent à aborder la mise en oeuvre de la commande optimale de ce système électrochimique dans des conditions très encourageantes.

4.2 Observateur d'État

La détermination des profils optimaux de commande est le résultat d'une étude importante. L'utilisation de ces profils dans un schéma de commande en *boucle ouverte* peut conduire à une dégradation des améliorations apportées par cette étude. Il convient donc de placer le procédé dans un schéma de commande en *boucle fermée*. Dans notre étude, on envisage d'utiliser une loi de retour d'état qui, comme son nom l'indique, consiste à utiliser l'état du système pour calculer la commande. Elle nécessite, à chaque instant, la connaissance de l'état du système. Ces états ne sont cependant pas toujours mesurables et on utilise alors un observateur d'état chargé d'estimer les états à partir des mesures des sorties du système.

Cette partie présente les différentes formes d'observateur d'état mis au point dans le cadre de la commande optimale des procédés électrochimiques.

4.2.1 Introduction

Dans tout ce qui précède, le modèle du procédé est caractérisé par ses variables d'état. Dans chacune des méthodes numériques présentées, leur valeur est supposée instantanément accessible. Dans la pratique, la mesure de ces états n'est cependant pas toujours possible.

Dans le cas du schéma réactionnel électrochimique $A \rightleftharpoons B$, les grandeurs mesurées sont la tension de cellule et l'intensité du courant (commande). La variable d'état est, dans ce cas, la concentration en réactif A . Il est possible de la mesurer (dosage, chromatographie, spectrométrie ...) mais la durée nécessaire pour obtenir le résultat est rédhibitoire, dans un contexte de commande, par rapport aux durées des opérations considérées. L'estimation de l'état à partir des mesures disponibles apparaît comme un moyen de combler cette lacune.

Dans le cas du système $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$, on dispose des mesures du courant et du potentiel d'électrode (commande). Pour les mêmes raisons que précédemment, les concentrations ne sont pas toujours *mesurables*. Il faut là encore utiliser l'information disponible pour estimer les variables d'état qui correspondent aux concentrations en réactif A et en produit B .

La connaissance des variables d'état d'un procédé est pourtant essentielle dans tous les schémas de commande. En commande optimale, ce point est d'autant plus vrai que les variables d'état sont utilisées au sein d'un problème d'optimisation dynamique. Il est donc nécessaire de les connaître précisément sous peine d'optimiser un système irréaliste.

Les observateurs utilisent un modèle de connaissance et les mesures du procédé afin d'estimer les variables d'état qui ne sont pas *accessibles*. Le schéma de principe d'un observateur est donné par la figure 4.16. On distingue trois groupes : le procédé, le modèle dynamique et l'observateur d'état. Le procédé n'est pas, dans le cadre de notre étude, disponible. Le modèle dynamique a été utilisé avec des perturbations stochastiques pour simuler le fonctionnement du procédé. Ceci permet de tester les capacités d'estimation de l'observateur. Dans cette partie, trois familles d'observateurs d'état seront présentées :

- La première d'entre elles correspond à l'observateur de Luenberger (1966, 1971). Ce dernier est le plus simple à mettre en oeuvre et fait partie des observateurs couramment rencontrés en Génie des Procédés.

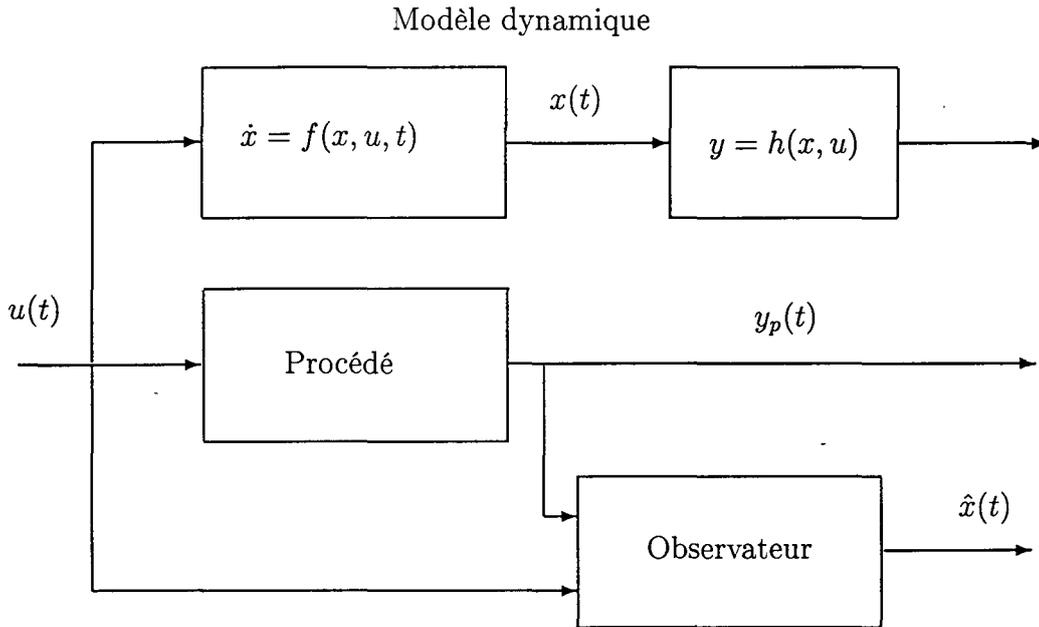


Figure 4.16: Observateur d'état d'un système.

- Le second type correspond à l'ensemble des Filtres de Kalman (1960); Kalman et Bucy (1961) (classique et étendu). Il s'agit certainement du filtre le plus fréquemment utilisé dans notre discipline, en raison de sa simplicité de mise en oeuvre et de ses performances.
- Le troisième type correspond à des observateurs d'une forme moins classique. Il s'agit d'observateurs dits *passifs* ou *semi-passifs*, où l'information sur la sortie est utilisée d'une manière originale, pour améliorer la dynamique des filtres précédents.

Bien qu'également courants dans les domaines conjoints de la commande et du Génie des Procédés, les observateurs Grand Gain (Gauthier et al., 1992; Gibon-Fargeot et al., 1994), ne sont pas utilisés. La variété des observateurs d'état et des estimateurs est en effet très étendue (Misawa et Hedrick, 1989) et les progrès dans ce domaine, notamment pour les systèmes non-linéaires, sont très nombreux.

Dans toutes nos études, on considère un procédé représenté par le modèle :

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, u, t) \quad (4.36)$$

$$y = h(\mathbf{x}(t)) \quad (4.37)$$

où f est un champ de vecteurs, \mathbf{x} le vecteur d'état du système, t le temps, u la variable de commande, y le vecteur de sortie du système, h un champ de scalaires.

La non-idéalité du procédé réel est représentée en ajoutant à ce modèle, un bruit de mesure $v(t)$ et une erreur de modèle $w(t)$ stochastiques. Le système est alors décrit par :

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, u, t) + w(t) \quad (4.38)$$

$$y = h(\mathbf{x}(t)) + v(t) \quad (4.39)$$

Les perturbations stochastiques $v(t)$ et $w(t)$ sont des bruits blancs gaussiens centrés de

covariance respective $Q_f(t)$ et $R_f(t)$:

$$\begin{aligned}
 E[w(t)] &= 0 \\
 E[w(t) w^T(t')] &= Q_f(t) \delta(t, t') \\
 E[v(t)] &= 0 \\
 E[v(t) v^T(t)] &= R_f(t)
 \end{aligned} \tag{4.40}$$

L'initialisation des grandeurs Q_f et R_f qui caractérisent la nature stochastique du modèle est basée sur les écart-types des erreurs impliquées :

$$\begin{aligned}
 R_f(t) &= (\sigma_y)^2 \\
 Q_f(t) &= \text{diag}[(\sigma_{xi})^2]
 \end{aligned}$$

La construction d'un observateur d'état consiste à définir un système :

$$\dot{\hat{x}} = \hat{f}(\hat{x}, u, t, K) \tag{4.41}$$

$$\tag{4.42}$$

où \hat{f} est un champ de vecteurs judicieusement choisi et K un vecteur de paramètres ajustables.

L'erreur d'estimation de cet observateur est notée $\epsilon = \hat{x} - x$. La propagation de cette erreur est donnée par :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\hat{x}} - \dot{x} = f(\hat{x}, u, t) - \hat{f}(\hat{x}, u, t, K) \tag{4.43}$$

$$\tag{4.44}$$

L'évolution de l'erreur d'estimation est liée à la dynamique du système $f - \hat{f}$. La construction du filtre consiste à déterminer une fonction \hat{f} dont la dynamique est telle que l'erreur converge (rapidement) vers 0.

La mesure du système est ensuite exploitée pour corriger les états ainsi estimés selon un schéma du type :

$$\text{État estimé corrigé} = \text{État estimé} + \text{Gain} \times (\text{Erreur mesurée}) \tag{4.45}$$

On distingue différentes formes temporelles d'observateurs d'état : Continu-Continu, Continu-Discret et Discret-Discret. Ce doublet caractérise la manière dont sont considérées, respectivement :

- la propagation de l'état estimé entre deux mesures,
- la correction de l'estimation au moment de la mesure.

Dans l'étude des systèmes électrochimiques présentée, les systèmes rencontrés sont linéaires par rapport à l'état. Les mesures, malgré une période d'échantillonnage très courte, sont considérées comme discrètes puisqu'elles sont utilisées dans un contexte numérique. Les observateurs utilisés sont donc de la forme *Continu-Discrete*.

Les étapes de propagation et de correction des observateurs sont définies comme suit :

1. Entre les instants (t_{k-1}) et (t_k) , on ne prend pas de mesure. L'état estimé \hat{x} se propage selon l'équation :

$$\dot{\hat{x}}(t) = \hat{f}(\hat{x}(t), u) \quad (4.46)$$

2. à l'instant t_k , une mesure y_k est réalisée. L'état estimé est corrigé selon :

$$\hat{x}_k^+ = \hat{x}_k^- + K_k [y_k - h(\hat{x}_k^-)] \quad (4.47)$$

L'indice inférieur k dénote les valeurs des variables à l'instant t_k , les exposants $-$ et $+$ représentent les valeurs des variables respectivement avant et après la correction.

K_k est appelé le gain du filtre.

La qualité de l'observation est liée au choix du gain du filtre. Ce choix doit tenir compte de deux facteurs : la vitesse de convergence de l'erreur d'estimation ϵ et l'amplification des bruits de mesure. L'influence du gain sur ces deux facteurs est naturellement antagoniste. Les filtres de Luenberger et les filtres de Kalman sont deux types d'observateur qui se distinguent essentiellement au niveau de ce choix.

4.2.2 Observateur de Luenberger

Construction de l'observateur

On considère le système stochastique (4.38)-(4.39) pour lequel on se limite à la classe des systèmes où $f(x, u, t)$ et $h(x, t)$ sont linéaires :

$$\dot{x} = A x + B + w(t) \quad (4.48)$$

$$y = C x + v(t) \quad (4.49)$$

Le filtre de Luenberger est probablement une des formes les plus simples des observateurs d'état. Il est construit à partir de la dynamique du système original et on utilise un gain constant. L'information sur la sortie est donc exploitée à travers un vecteur de gain donc la valeur doit être déterminée au préalable. La simplicité de ce type de filtre ne lui enlève cependant pas ses bonnes qualités d'observation.

Les étapes de propagation et de correction du filtre de Luenberger sont définies comme suit :

1. Propagation

$$\dot{\hat{x}}(t) = A \hat{x} + B \quad (4.50)$$

2. Correction

$$\hat{x}_k^+ = \hat{x}_k^- + K_l [y_k - C_k \hat{x}_k^-] \quad (4.51)$$

$$K_l = \text{cte} \quad (4.52)$$

où K_l est le gain du filtre de Luenberger.

Les valeurs propres de la matrice $A - K_l C$ caractérisent la dynamique de l'évolution de l'erreur ϵ . Le choix de la valeur de K_l permet d'assurer la stabilité de l'observateur et de régler la vitesse de convergence.

Reconstruction de l'état du système ABD

Dans le cadre de la maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ dans un schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$, sous contrainte de conversion X_A , les estimations des concentrations $C_A(t)$ et $C_B(t)$ sont nécessaires. Dans ce problème, la variable de commande choisie est le potentiel d'électrode ($u = E$) dont les mesures sont évidemment disponibles. La sortie du système considérée est l'intensité du courant ($y = I$).

On considère donc le modèle dynamique du système (4.53) et (4.54) :

$$\dot{\mathbf{x}} = A(u) \mathbf{x} + B(u) \quad (4.53)$$

$$y = C(u) \mathbf{x} + D(u) \quad (4.54)$$

où la matrice A , les vecteurs B , C et le scalaire D sont donnés dans le chapitre consacré à la description des systèmes étudiés.

Les performances de l'observateur de Luenberger sont évaluées à l'aide de simulation mettant en jeu, les erreurs sur :

- l'estimation de l'état initial $\hat{\mathbf{x}}(0)$
- la mesure de la sortie Δy (injectée sous forme d'un unique créneau et ajouté à la sortie mesurée).

Ces perturbations du système permettent en effet d'évaluer (i) la capacité du filtre à reconstruire l'état du système (ii) sa robustesse par rapport aux bruits et aux erreurs de mesures.

L'influence du gain sur l'estimation et sur la reconstruction de la sortie est étudiée en comparant deux situations représentant les performances extrêmes de l'observateur de Luenberger. Les conditions d'initialisation des perturbations du système et du filtre de Luenberger sont présentées dans le tableau 4.3.

Paramètre	Valeur
σ_y	$4 \cdot 10^{-2}$ (A)
Δy	10^{-1} (A)
K_{l1}	de 10^{-3} à $5 \cdot 10^{-2}$
K_{l2}	de 10^{-2} à 1.0
$\mathbf{x}(0)$	$(1.0 \quad 0.0)^T$
$\hat{\mathbf{x}}(0)$	$(0.90 \quad 0.05)^T$

Tableau 4.3: Initialisation de l'observateur de Luenberger.

Erreur d'estimation initiale et de mesure Le filtre de Luenberger est testé autour des trajectoires optimales dans un schéma en boucle ouverte avec un gain $K_l = (0.05 \quad 0.01)$. Les figures 4.17 et 4.18 représentent respectivement les erreurs d'estimation et les profils réels et estimés des variables d'état. L'absence de bruit sur les profils des

erreurs d'estimation ϵ , observée sur la figure 4.17, souligne la capacité de l'observateur de Luenberger à filtrer les bruits de mesure. La capacité du filtre à reconstruire l'état à partir de la sortie y est assez faible comme l'indiquent les figures 4.17 et 4.18. En effet, l'erreur d'estimation initiale sur x_1 est relativement bien corrigée par l'observateur. En revanche, il ne corrige pas et dégrade même l'estimation initiale de x_2 au début de l'opération. L'erreur d'estimation de x_2 est ainsi quadruplée. Par la suite, l'observateur présente une lente convergence qui fait tendre les erreurs d'estimation vers 0 sans jamais l'atteindre. Cette faible convergence n'a pas une grande influence sur l'estimation de x_1 comme le montrent les profils comparés de x_1 et de \hat{x}_1 sur la figure 4.18. Par contre, l'erreur augmentée aux premiers instants et non compensée par la suite, conduit à une erreur d'estimation de x_2 inacceptable dans un schéma de commande optimale. Les résultats relatifs à la sortie reconstruite correspondante sont illustrés sur les figures 4.19 et 4.20. La figure 4.19 indique que la mauvaise convergence n'est pas liée à une défaillance de l'observateur de Luenberger mais plutôt à une incapacité de reconstruire l'état à partir de la sortie. L'erreur entre la sortie mesurée et la sortie reconstruite est en effet quasiment nulle tout au long de l'opération montrant que l'observateur exploite pleinement l'information qui lui est fournie.

La présence d'une erreur de mesure d'amplitude $0.1A$ introduite sous la forme d'un échelon entre les instants $\tau = 0.25$ et $\tau = 0.50$, confirme les faibles performances de l'observateur en terme de reconstruction d'état. La perturbation ainsi introduite ne conduit cependant pas à une importante perturbation de l'estimation de l'état (fig. 4.18). L'exploitation de la mesure est cohérente. L'erreur entre la sortie reconstruite et la sortie mesurée au début et à la fin de la perturbation est instantanément compensée (fig. 4.20) et n'est même pas détectable en terme d'erreur (fig. 4.19).

Influence du gain Le gain K_l de l'observateur est un des seuls paramètres de réglage. Son choix est essentiellement empirique et est issu d'une procédure essai-erreur. D'un point de vue intuitif, plus le gain est élevé, plus la vitesse de convergence de l'erreur ϵ sera importante. Les valeurs élevées des gains réduisent cependant la stabilité du système. Le réglage de l'observateur est un classique compromis entre vitesse et précision. La technique utilisée pour déterminer la *meilleure* valeur du gain consiste à augmenter ce dernier jusqu'à ce que le système soit déstabilisé. Cette technique conduit au gain $K_l = (0.05 \quad 0.01)$. L'influence des gains K_{li} est présentée en comparant deux cas critiques au cas de référence $K_l = (0.05 \quad 0.01)$:

- Influence de K_{l1} : $K_l = (0.005 \quad 0.01)$ sur les figures 4.21, 4.23 et 4.25
- Influence de K_{l2} : $K_l = (0.05 \quad 0.40)$ sur les figures 4.22, 4.24 et 4.26.

La sortie y est une combinaison linéaire des états à estimer (Eq. (4.54)). Par conséquent, le choix des gains caractérise la manière dont l'information y est exploitée pour reconstruire l'état x_1 et l'état x_2 .

Lorsque K_{l1} augmente, l'information y est exploitée essentiellement pour évaluer \hat{x}_1 aux dépens de \hat{x}_2 . Les profils des figures 4.21 et 4.23 illustrent ce résultat. On constate qu'il y a toujours convergence de l'observation de x_1 . En revanche, la convergence de l'estimation \hat{x}_2 est quasiment nulle. Le choix d'un gain K_{l1} trop élevé peut même conduire à la divergence de l'observation de x_2 . En terme de sortie reconstruite, la figure 4.25 montre que l'information y est partiellement exploitée lorsque K_{l1} est trop faible. La pondération K_{l1} caractérise ainsi à la fois l'observation de x_1 et l'exploitation de l'information y .

Filtre de Luenberger : Réponse à une erreur sur l'estimation initiale et sur la sortie mesurée.

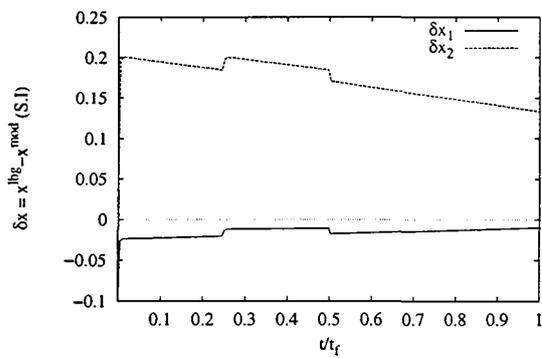


Figure 4.17: Erreur d'estimation de l'état x .

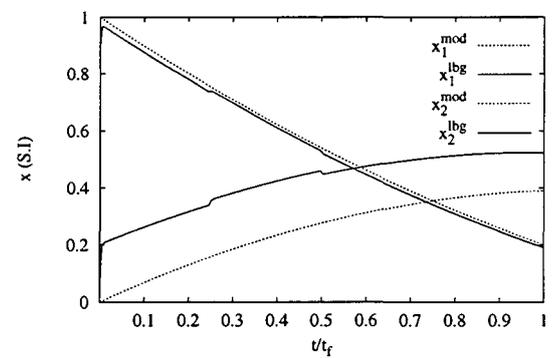


Figure 4.18: États estimé et réel.

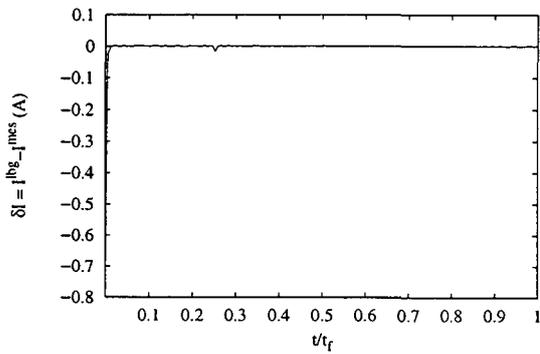


Figure 4.19: Erreur de reconstruction de la sortie y .

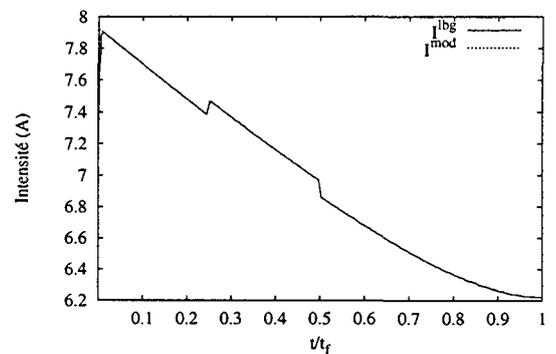


Figure 4.20: Sorties estimée et réelle.

L'influence du gain K_{l2} est d'une toute autre nature. En effet, il influe très peu sur l'observation de x_1 et sur \hat{y} . En revanche, il conditionne très fortement l'observation de x_2 en amplifiant l'erreur d'estimation lorsque le gain est trop élevé.

Ces résultats antagonistes soulèvent le problème de la consistance de la mesure. L'analyse de la dynamique du système permet en effet de montrer que le système est *observable* mais que sa matrice d'observabilité est très mal conditionnée. La mesure de la sortie permet une bonne estimation de l'état x_1 mais la dépendance entre le courant I (y) et la concentration C_B (x_2) ne semble pas suffisante pour estimer cette concentration.

Ce comportement est prévisible en début d'opération. En effet, à l'instant initial, le composé A est seul présent en solution. Seule la réaction $A \rightarrow B$ peut alors se produire. L'observation de A est possible car l'évolution de I et celle du courant I_1 associé à cette réaction, sont très proches (le rendement électrique de la première réaction est d'ailleurs proche de 100%).

En revanche, pour le reste de l'opération, ce résultat mérite une étude plus approfondie. La concentration B dépend des deux phénomènes réactionnels. La mesure de l'intensité globale du courant ne permet cependant pas de distinguer les courants I_1 et I_2 relatifs à chaque réaction. La dépendance de C_B et de I est conditionnée par le rendement électrique ponctuel I_2/I_1 . Lorsque le taux de conversion de A augmente, le déséquilibre entre les rendements électriques I_1/I et I_2/I ne s'atténue pas. L'observabilité de C_B reste donc très médiocre.

D'un point de vue numérique, le rapport C_2/C_1 des coefficients de la relation linéaire $y = C x + D$ se révèle, dans les conditions de l'étude, de l'ordre de 1/30. De plus, le rapport des titres x_1/x_2 amplifie ce déséquilibre et conduit à cette mauvaise observabilité.

Compte tenu de ces remarques et de la simplicité de l'observateur de Luenberger, l'utilisation d'un autre type d'observateur est nécessaire pour réduire ces effets. Le choix s'oriente vers le filtre de Kalman qui est un observateur d'état optimal.

4.2.3 Filtre de Kalman

Construction de l'observateur

Le filtre de Kalman a été développé par Kalman (1960), Kalman et Bucy (1961). La construction de ce filtre est aussi basée sur la recopie de la dynamique du système original. Il se distingue du filtre de Luenberger par le calcul du gain utilisé pour l'étape de correction de l'estimation à partir de la mesure. Les gains sont déterminés pour minimiser les variances des erreurs de mesure et d'estimation. Le filtre de Kalman est ainsi un observateur optimal. Bryson et Ho (1975) présentent d'ailleurs le filtre de Kalman dans une approche mettant en parallèle, la nature optimale de cet observateur et l'optimisation dynamique. On distingue deux formes du filtre: le *filtre de Kalman* et le *filtre de Kalman Étendu*. Cette distinction est liée à la linéarité ou non du système (4.36)-(4.37). En effet, Kalman et Bucy ont développé ce filtre dans le cadre de la théorie des systèmes linéaires. Lorsque ce système est non-linéaire, ces développements ont été étendus en linéarisant ce dernier autour d'un point de référence (fonctionnement, équilibre, trajectoire, ...) et on utilise alors le terme de *Filtre de Kalman Étendu*.

Les étapes de propagation et de correction du filtre (E)KF sont définies comme suit :

1. Propagation

$$\dot{\hat{x}}(t) = f(\hat{x}(t), u) \quad (4.55)$$

Filtre de Luenberger : Influence des gains du filtre.

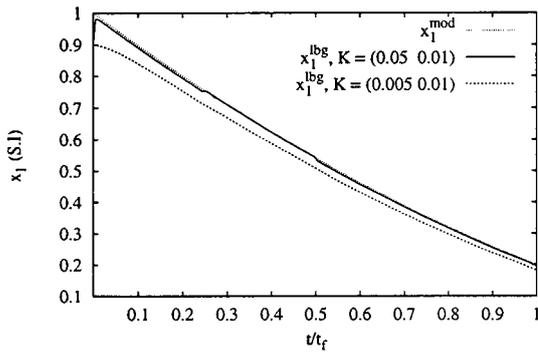


Figure 4.21: Influence de K_{l1} sur \hat{x}_1 .

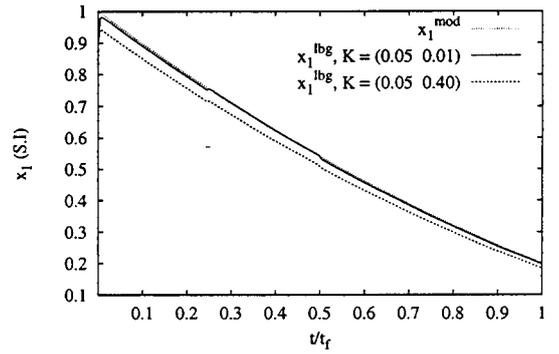


Figure 4.22: Influence de K_{l2} sur \hat{x}_1 .

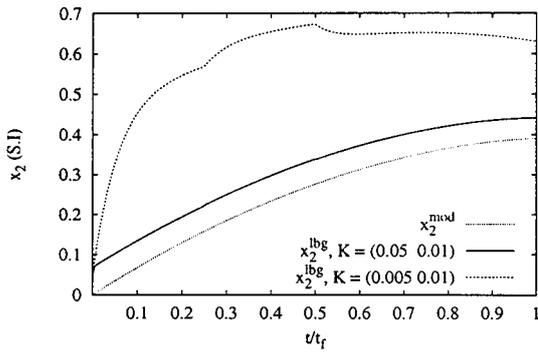


Figure 4.23: Influence de K_{l1} sur \hat{x}_2 .

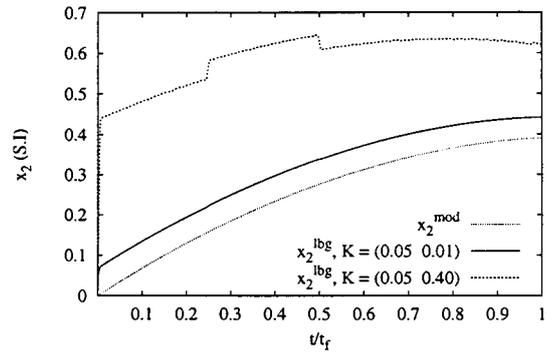


Figure 4.24: Influence de K_{l2} sur \hat{x}_2 .

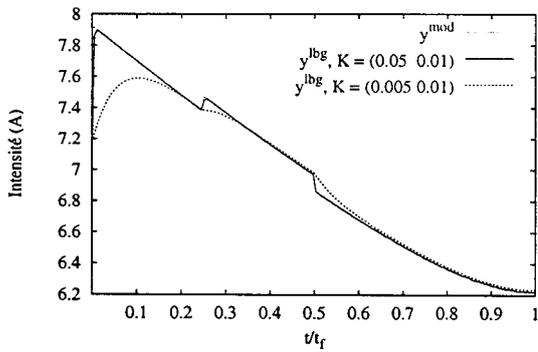


Figure 4.25: Influence de K_{l1} sur \hat{y} .

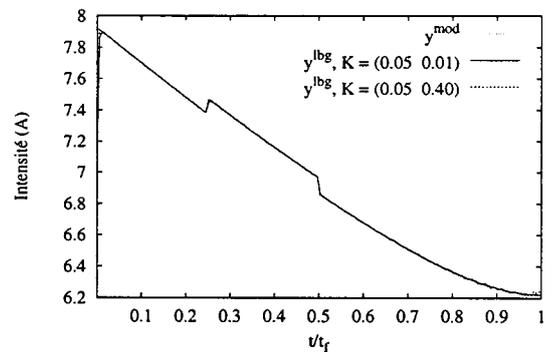


Figure 4.26: Influence de K_{l2} sur \hat{y} .

$$\dot{P}(t) = P(t) \frac{\partial f^T}{\partial \mathbf{x}} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} P(t) + Q_f(t) \quad t_{k-1} \leq t \leq t_k \quad (4.56)$$

avec P , la matrice de covariance de l'erreur d'estimation définie par :

$$P(t) = E [(\hat{\mathbf{x}}(t) - \mathbf{x}(t)) (\hat{\mathbf{x}}(t) - \mathbf{x}(t))^T] \quad (4.57)$$

2. Correction

Les grandeurs estimées sont corrigées en utilisant un gain K_f qui minimise P :

$$\hat{\mathbf{x}}_k^+ = \hat{\mathbf{x}}_k^- + K_{fk} [y_k - C \hat{\mathbf{x}}_k^-] \quad (4.58)$$

$$K_{fk} = P_k^- C_k^T [C_k P_k^- C_k^T + R_{fk}]^{-1} \quad (4.59)$$

$$P_k^+ = [I - K_k C_k] P_k^- \quad (4.60)$$

où le vecteur C_k correspond à $\frac{\partial h}{\partial \mathbf{x}}$ à l'instant t_k et K_f est appelé gain de Kalman.

L'indice inférieur k dénote les valeurs des variables à l'instant t_k , les exposants $-$ et $+$ représentent les valeurs des variables respectivement avant et après correction.

L'évolution de la matrice de covariance P est donnée par une équation de Riccati. Le choix de K_f dans (4.59) rappelle ainsi son caractère optimal. En effet, ce choix peut être mis en parallèle avec celui du gain du régulateur optimal d'un système linéaire à critère quadratique (Bryson et Ho, 1975).

L'initialisation de la matrice de covariance $P(0)$ est basée sur l'écart-type de l'erreur d'estimation initiale :

$$P(0) = \text{diag}[(\sigma_{x_i})^2] \quad (4.61)$$

Les performances du filtre Kalman ont été évaluées en le soumettant à :

- une erreur sur l'estimation de l'état initial $\hat{\mathbf{x}}(0)$
- une erreur sur la mesure de la sortie Δy

Ces grandeurs permettent de tester la capacité du filtre à reconstruire l'état du système et sa robustesse par rapport aux bruits et aux erreurs de mesure.

Reconstruction de l'état du système ABD

Dans le cadre de la maximisation de la concentration finale $C_B(t_f)$ dans un schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$, sous contrainte de conversion X_A , les estimations des concentrations $C_A(t)$ et $C_B(t)$ sont nécessaires. Dans ce problème, la variable de commande choisie est le potentiel d'électrode ($u = E$) dont les mesures sont évidemment disponibles. La sortie du système considérée est l'intensité du courant ($y = I$). On considère le modèle dynamique (4.53)-(4.54).

D'un point de vue numérique, la simulation de l'observateur d'état a été réalisée en dehors de la boucle de commande afin de pouvoir évaluer ses performances propres. Le fonctionnement réel du réacteur a été simulé en ajoutant à la sortie y un bruit blanc gaussien d'écart-type σ_y . Le filtre a été initialisé en se basant sur les écart-types des erreurs de modèle $\sigma_{\hat{x}_i}$, de mesure σ_y et d'estimation initiale σ_{x_i} . Les conditions initiales de l'estimateur sont données dans le tableau 4.4.

Paramètre	Valeur
σ_y	4.10^{-2}
$\sigma_{\dot{x}1}$	10^{-2}
$\sigma_{\dot{x}2}$	10^{-2}
σ_{x1}	10^{-1}
σ_{x2}	5.10^{-2}
$\mathbf{x}(0)$	$(1.0 \ 0.0)^T$
$\hat{\mathbf{x}}(0)$	$(0.90 \ 0.05)^T$

Tableau 4.4: Initialisation de l'observateur de Kalman

Dans un fonctionnement en boucle ouverte, les caractéristiques du filtre de Kalman P et K_f dépendent uniquement des écart-types des erreurs $\sigma_{\dot{x}}$, σ_y et σ_x mais pas des conditions opératoires testées $\hat{\mathbf{x}}(0)$ et Δy . Les variances des erreurs d'estimation P_{ii} , $i = 1, 2$ et les gains du filtre de Kalman K_{fi} , $i = 1, 2$ sont donc identiques dans les deux cas étudiés et sont respectivement donnés sur les figures 4.27 et 4.28. Les variances des erreurs d'estimation de la figure 4.27 représentent le critère d'optimisation qui permet la construction du filtre de Kalman. On peut ainsi constater que la minimisation de la variance de l'erreur d'estimation de x_1 est très rapide. La minimisation de la variance de l'erreur d'estimation de x_2 est en revanche plus lente et de plus faible ampleur.

La figure 4.28 présente des profils de gains totalement différents pour la correction des estimations de x_1 et de x_2 en fonction des mesures. En effet, la courbe K_{f1} indique que la correction de l'estimation \hat{x}_1 est très importante au début de l'opération pour décroître rapidement ensuite. Ce profil traduit une dépendance très forte entre l'intensité I et la concentration C_A en début d'opération. Le réactif A étant introduit pur dans le réacteur, les phénomènes de transfert d'électrons sont en effet principalement associés à la consommation de A selon $A \rightarrow B$. Le profil de K_{f2} présente un maximum autour de $\tau = 0.1$. Ce maximum traduit lui aussi la dépendance entre I et C_B qui se produit plus tardivement car le courant partiel I_2 associé à la réaction $B \rightarrow D$ ne devient important que lorsque suffisamment de B est présent en solution.

Erreur d'estimation de l'état initial.

Lorsque le filtre de Kalman est incorrectement initialisé, l'observateur présente une très rapide convergence pour l'estimation de x_1 et une lente convergence pour l'estimation de x_2 . Cette convergence est illustrée sur les figures 4.29 et 4.30 qui représentent respectivement les erreurs d'estimation et les profils réels et estimés des variables d'état. La convergence est en accord avec les conclusions déduites des figures 4.27 et 4.28. Ces faibles performances du filtre de Kalman sont cependant tempérées par les résultats des figures 4.31 et 4.32. Celles-ci montrent l'évolution de l'erreur entre la sortie réelle du système et la sortie reconstruite à partir des estimations de l'observateur. Cette erreur est présentée sous la forme d'écart (fig. 4.31) et sous la forme de grandeurs absolues (fig. 4.32). Ainsi, en terme d'intensité du courant, l'observateur exploite très rapidement

Filtre de Kalman : Grandeurs caractéristiques.

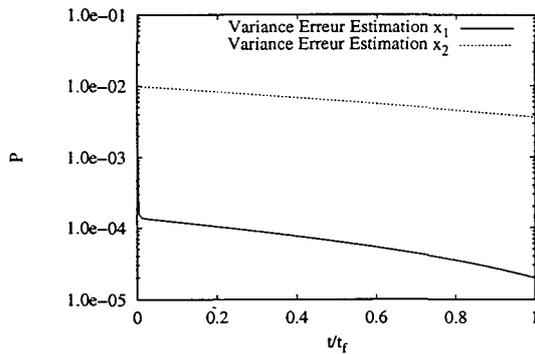


Figure 4.27: Variance des erreurs d'estimation P_{ii} $i = 1, 2$.

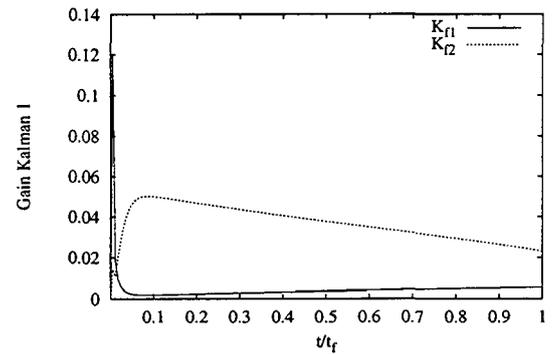


Figure 4.28: Gain du filtre de Kalman K_{fi} $i = 1, 2$.

l'information du système.

Erreur de mesure.

Les performances de l'observateur en présence d'une erreur sur la mesure de la sortie $\Delta y = 0.1A$ sont proposées sur les figures 4.33 à 4.36. Comme précédemment, les résultats sont présentés sous la forme de variables d'écart et de profils comparés pour les variables d'état et la sortie. La première phase de l'opération illustre le comportement de l'observateur en présence de bruit sur la sortie y , lorsque l'estimation initiale de l'état est correcte. La capacité de l'observateur à filtrer les erreurs de mesure d'amplitude supérieure aux précisions usuelles de mesure d'intensité est évidente.

Un échelon perturbation de $100mA$ est introduit à l'instant $\tau = 0.25$ et cesse à l'instant $\tau = 0.50$. Les profils des erreurs d'estimation (fig. 4.33) montrent que la perturbation est suffisamment tardive pour n'avoir sur \hat{x}_1 qu'un effet limité (cf. gain du filtre). La perturbation de la sortie est en revanche plus influente sur l'estimation de l'état x_2 . La convergence associée à cet état est en plus, la moins rapide et la perturbation de la sortie conduit à une mauvaise estimation de x_2 . Il est cependant évident que le filtre de Kalman exploite très rapidement l'information à sa disposition. En effet, l'erreur entre la sortie du réacteur et la sortie reconstruite, présentée sur la figure 4.35 est principalement due aux bruits de mesure. La période d'adaptation du filtre aux nouvelles conditions de sortie est très brève quel que soit le sens de la perturbation. Les profils de l'intensité réelle et reconstruite de la figure 4.36 illustrent cette courte période d'adaptation.

À la lumière de ces résultats, il est évident que la mesure de la sortie à l'instant initial fournit une information qui dépend de x_1 et pas de x_2 . Une variante du filtre de Kalman est donc utilisée. Elle consiste à corriger l'estimation de l'état initial à partir de la mesure y en inversant la relation algébrique (4.54). Cette variante permet ainsi d'améliorer notablement l'estimation initiale \hat{x}_1 sans perturber le fonctionnement du filtre de Kalman. Elle n'améliore cependant pas la convergence de l'estimation de x_2 et n'a qu'une influence limitée sur le résultat global. L'influence de cette modification de l'observateur n'est donc pas présentée.

Filtre de Kalman : Réponse à une erreur d'estimation de l'état initial.

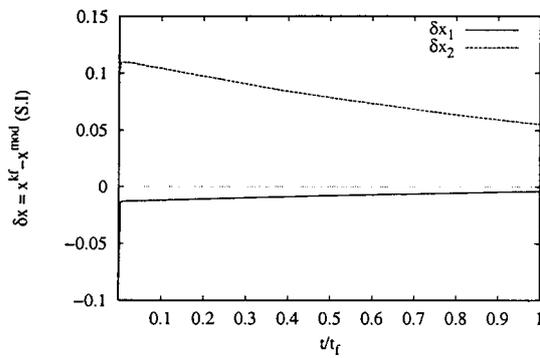


Figure 4.29: Erreur d'estimation de l'état x .

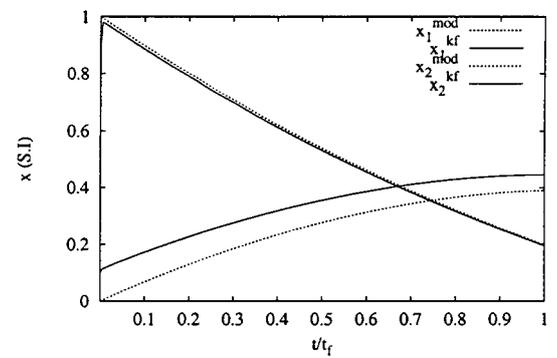


Figure 4.30: États estimé et réel.

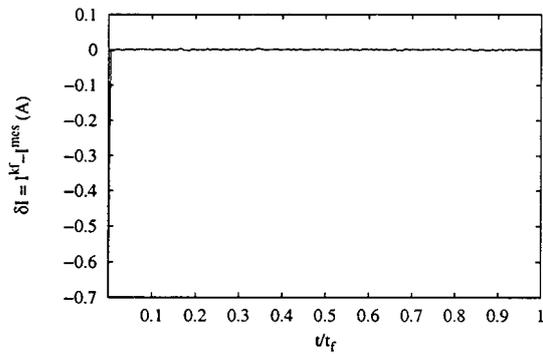


Figure 4.31: Erreur de reconstruction de la sortie y .

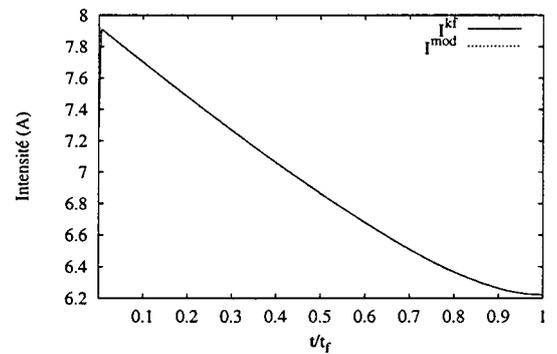


Figure 4.32: Sorties estimée et réelle.

Filtre de Kalman : Réponse à une erreur de mesure de la sortie.

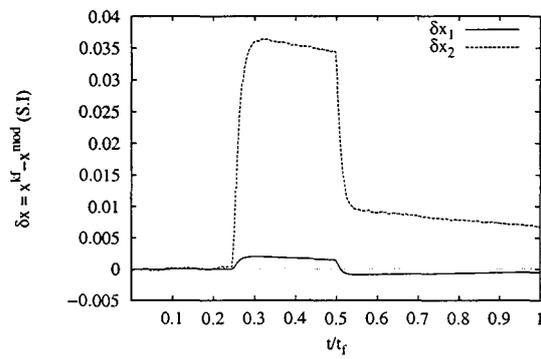


Figure 4.33: Erreur d'estimation de l'état x .

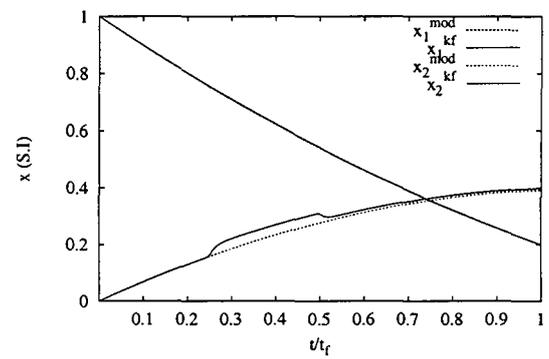


Figure 4.34: États estimé et réel.

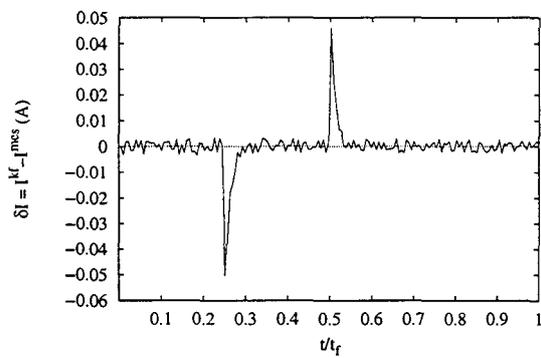


Figure 4.35: Erreur de reconstruction de la sortie y .

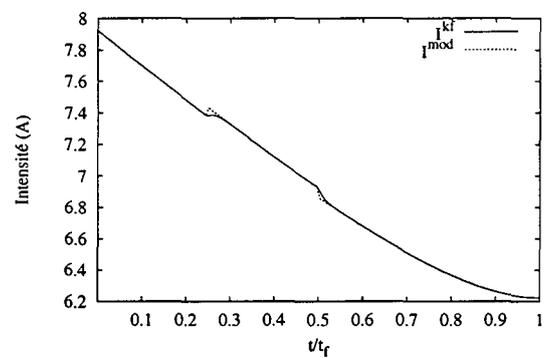


Figure 4.36: Sorties estimée et réelle.

4.2.4 Observateur passif

Construction de l'observateur

Un des points communs du filtre de Kalman et de l'observateur de Luenberger réside dans la dynamique de l'observateur. En effet, pour construire le filtre, la dynamique du système original est recopiée. Une alternative proposée par Guillaume et Rouchon (1997) consiste à accélérer la convergence de l'observateur en s'appuyant sur une dynamique du système original modifiée.

On considère la dynamique, (4.53)-(4.54), du système $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$, rappelée ci-dessous :

$$\begin{aligned}\dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ y &= C(u) \mathbf{x} + D(u)\end{aligned}$$

L'originalité du filtre passif consiste à inverser, à chaque instant, la relation algébrique (4.54) pour estimer un des états. Dans le cas du système électrochimique ABD , on obtient alors :

$$x_1 = \frac{1}{C_1} (y - C_2 x_2 - D_1) \quad (4.62)$$

$$x_2 = \frac{1}{C_2} (y - C_1 x_1 - D_1) \quad (4.63)$$

L'un et/ou l'autre des états ainsi défini peut être injecté dans la dynamique originale (4.53). Dans l'étude des observateurs de ce type, seul l'observateur résultant de l'utilisation de (4.62) et de (4.63) est présenté.

La dynamique des observateurs peut alors s'écrire :

$$\dot{\hat{\mathbf{x}}} = A_c \hat{\mathbf{x}} + B_c \quad (4.64)$$

où $A_c = \begin{pmatrix} A_{11} - \frac{A_{12} C_1}{C_2} & 0 \\ 0 & A_{22} - \frac{A_{21} C_2}{C_1} \end{pmatrix}$ et $B_c = \begin{pmatrix} B_1 - \frac{A_{12}}{C_2} (y - D_1) \\ B_2 - \frac{A_{21}}{C_1} (y - D_1) \end{pmatrix}$

La convergence de ce système vers le système original est explicitement donnée par le signe des valeurs propres de $A_c - K_l C$ où A_c est diagonale.

On utilise ensuite cette nouvelle dynamique pour construire un filtre de type Luenberger. L'observateur passif est décrit par le système :

$$\dot{\hat{\mathbf{x}}} = A_c \hat{\mathbf{x}} + B_c \quad (4.65)$$

$$\hat{\mathbf{x}}_k^+ = \hat{\mathbf{x}}_k^- + K_l [y_k - C \hat{\mathbf{x}}_k^-] \quad (4.66)$$

Reconstruction de l'état du système ABD

On considère le problème de maximisation sous contraintes, de la concentration $C_B(t_f)$ dans le schéma réactionnel $A \rightarrow B \rightarrow D$. L'observateur passif est testé en boucle ouverte, dans les mêmes conditions que l'observateur de Luenberger, à savoir, en présence d'une erreur de l'estimation initiale et d'une perturbation en créneau de la mesure. Les réglages des gains sont réalisés de la même manière que pour l'observateur de Luenberger original. La seule différence réside dans le fait que les gains K_{l1} et K_{l2} sont identiques. Cette contrainte supplémentaire est justifiée par la simplification des calculs théoriques

qui permettent de prouver la convergence d'un tel filtre. Des essais utilisant un filtre avec deux gains différents sont présentés dans l'étude suivante.

Le choix de cet observateur est motivé par les faibles performances de reconstruction de l'état x_2 dans le schéma $A \rightarrow B \rightarrow D$. Les performances de ce type d'observateur dans ce domaine sont présentées sous la forme d'une étude de l'influence du gain K_{l2} sur l'estimation \hat{x}_2 dans une opération de "longue" durée $t_f = 36000s$.

Perturbation du système.

L'observateur est initialisé avec l'estimation $\hat{x}^T = (0.9 \quad 0.05)$. Comme précédemment, une perturbation de la mesure est introduite sous la forme d'un créneau de $0.2A$ qui débute à $\tau = 0.25$ et cesse à $\tau = 0.50$.

Les figures 4.37 à 4.40 illustrent les meilleures performances obtenues pour l'observateur passif. Le vecteur de gain utilisé est $K_l = (0.01 \quad 0.01)$. Ces conditions correspondent au cas où la stabilité du filtre n'est déjà plus garantie.

La conséquence de l'utilisation de la relation algébrique (4.54) dans la dynamique de l'observateur est paradoxalement une plus grande insensibilité de l'observation aux erreurs de mesure. La figure 4.37 présente en effet des profils où les variations sont relativement faibles lorsque la sortie est perturbée. Les profils des états estimés fournis sur la figure 4.38 ne présentent pas d'amélioration notable par rapport aux résultats de la sous-section précédente. La convergence de l'observation de x_2 est en effet quasi nulle. Les qualités de convergence ne sont en effet pas améliorées comme l'indique l'évolution de l'erreur entre la sortie mesurée et la sortie reconstruite (fig. 4.39). Les périodes de divergences sont naturellement dues au choix du gain K_l mais les résultats présentés constituent le meilleur compromis entre stabilité et convergence.

Le réglage du gain peut conduire à une meilleure convergence de ce type d'observateur par rapport au filtre de Kalman mais ces performances ne sont effectives que pour une durée qui excède $36000s$. Cette caractéristique rend réhhibitoire l'utilisation de tels schémas d'observation pour la commande du réacteur considéré ($t_f = 3600s$).

Influence du gain K_{l2} sur \hat{x}_2 .

Le but de l'étude est d'améliorer les performances d'observation de l'état x_2 dans le réacteur électrochimique considéré. L'influence du gain correspondant est étudiée en comparant les profils x_2 obtenus par le filtre de Kalman et ceux obtenus par un observateur passif pour des gains K_{l2} variant de 0.5 à 4.0. Les conditions opératoires diffèrent des conditions utilisées jusque là pour étudier l'observation. Le système est en effet testé pour une durée opératoire "longue" ($t_f = 36000s$) et soumis à un profil uniforme du potentiel à $u = -1.5 V$. Ces conditions permettent à l'observateur d'atteindre la convergence des états estimés et de simplifier la trajectoire suivie.

Les profils des états estimés sont ainsi présentés sur la figure 4.41 pour des gains variant de 0.5 à 4.0. La figure indique que les qualités d'observation sont les meilleures pour $K_{l2} = 1.5$. Dans ces conditions, l'observateur passif égale les performances de l'observateur de Kalman. Pour des valeurs inférieures, la convergence n'est pas suffisante pour que l'estimation atteigne la valeur réelle de l'état. Pour des valeurs plus élevées, l'estimation devient très sensible aux bruits de mesure (instabilité) et les conditions initiales sont détériorées. Il en résulte une estimation de très mauvaise qualité.

Observateur passif: Réponse à une erreur sur l'estimation initiale et sur la sortie mesurée.

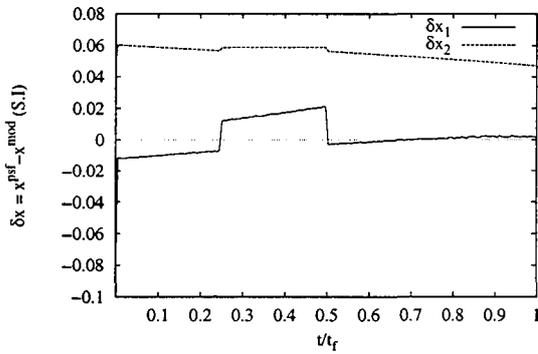


Figure 4.37: Erreur d'estimation de l'état x .

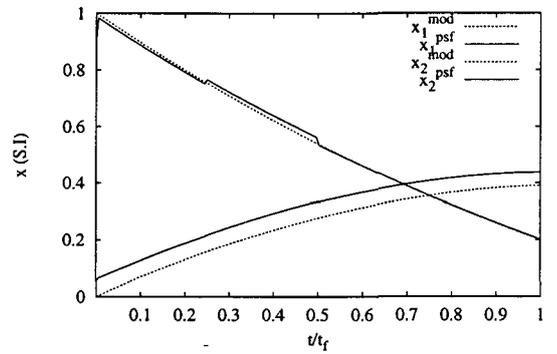


Figure 4.38: États estimé et réel.

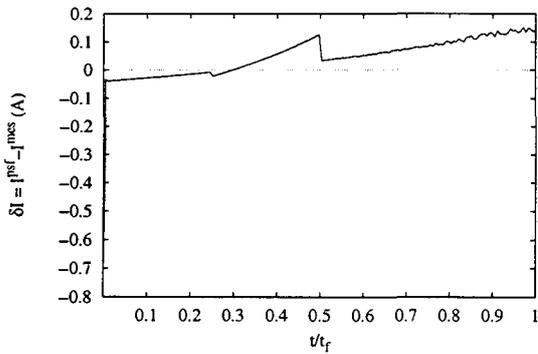


Figure 4.39: Erreur de reconstruction de la sortie y .

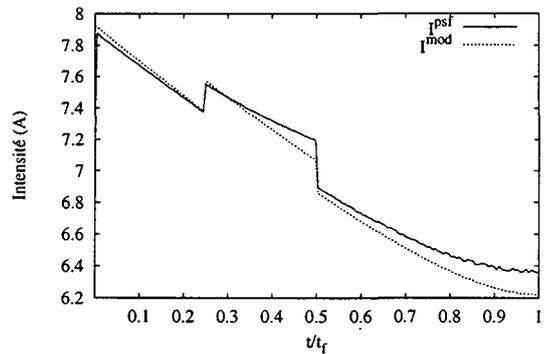


Figure 4.40: Sorties estimée et réelle.

Observateur Passif: Influence des gains K_{l2} .

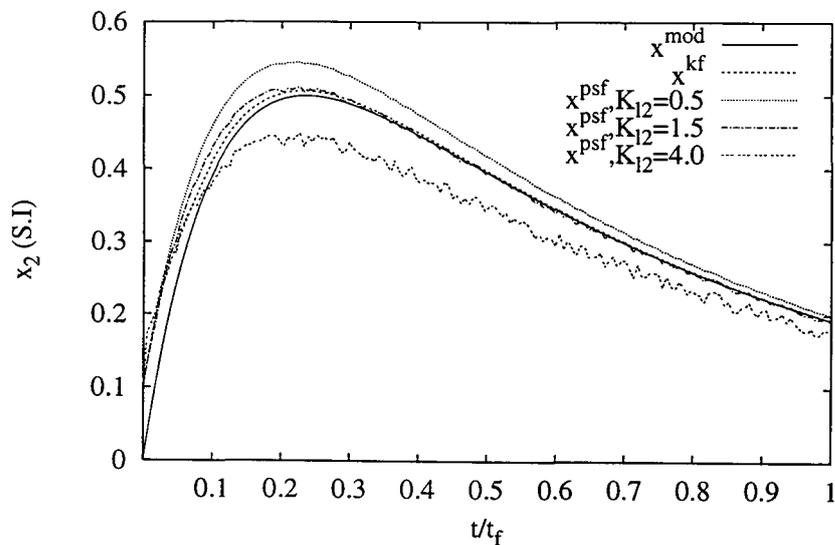


Figure 4.41: Influence de K_{l2} sur \hat{x}_2 .

4.2.5 Conclusions

Trois types d'observateur d'état ont été présentés :

- l'observateur de Luenberger
- le filtre de Kalman
- un observateur passif.

Ils ont été utilisés pour l'estimation des concentrations en A et B dans un réacteur électrochimique siège des réactions $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$. L'étude de la dynamique du système montre que le système est observable mais que sa matrice d'observabilité est très mal conditionnée. Les capacités d'observation de la concentration en A des trois observateurs se sont en effet révélées très bonnes mais les performances d'observation de la concentration $C_B(t)$ sont pour leur part plutôt médiocres. La convergence de cette estimation est en effet asymptotique. Le choix de l'un ou l'autre des observateurs permet d'améliorer les résultats mais l'observation \hat{x}_2 reste globalement peu satisfaisante. La dynamique de l'observateur n'est pas en cause et l'étude de la sortie du système montre que le problème est lié à la consistance de la mesure. Il semble nécessaire d'ajouter au système une information qui permette de caractériser plus spécifiquement les phénomènes associés à la réaction $B \rightarrow D$.

Il apparaît clairement que l'observateur de Kalman est le moins inadapté pour reconstruire l'état dans le réacteur électrochimique considéré. Ce dernier sera donc utilisé dans le schéma en boucle fermée. On peut en effet espérer que, pour la mise en oeuvre de la commande, les conditions initiales de ce procédé (batch) soient précisément connues. Les erreurs d'estimation seraient ainsi limitées.

Pour des raisons de temps, l'observation du système électrochimique $A \rightleftharpoons B$ dans le problème de minimisation de l'énergie n'a pas été étudiée. Cependant, compte tenu des résultats précédents et de la simplicité du système, la mesure de la tension de cellule doit permettre d'estimer correctement l'unique état du système $C_A(t)$ sans qu'on se heurte au problème de consistance de la mesure.

4.3 Commande optimale en boucle fermée

4.3.1 Introduction

La résolution du problème d'optimisation dynamique est réalisée à partir d'un modèle du système supposé idéal. Dans la pratique, cette hypothèse n'est généralement pas concevable et il existe de nombreuses sources d'écart entre le système idéal modélisé et le système réel.

- Les modèles de connaissance (*boîte blanche ou grise*) sont établis à partir de considérations physiques des phénomènes mis en jeu dans un procédé. Ils ne sont donc qu'une approximation du procédé et ne représentent pas la réalité.
- La modélisation du système conduit à négliger certains phénomènes de faible ampleur et à globaliser les phénomènes majeurs en les caractérisant par des paramètres constants ou régis par des lois de variations plus ou moins élémentaires (relation linéaire, exponentielle, ...). Ces paramètres sont souvent déterminés dans des conditions opératoires où les phénomènes mis en jeu dans le procédé ne sont pas tous présents ou n'ont pas tous la même amplitude. Certains des paramètres du modèle sont donc sujets à des écarts, parfois importants, par rapport à la réalité. L'analyse de la sensibilité permet à cet égard d'identifier les paramètres dont les écarts ont la plus forte influence sur la solution optimale.
- Des perturbations externes, sous forme de bruit ou sous forme de brusques variations aléatoires. Ces perturbations écartent le système réel du point de fonctionnement pour lequel la commande optimale a été déterminée.

Compte tenu de ces différentes sources d'erreurs, la mise en oeuvre de la commande en boucle fermée est indispensable pour tenir compte de leurs effets sur les objectifs fixés. Cependant, la décision de conduire le procédé de manière optimale accroît la difficulté de mise en oeuvre. En effet, l'objectif de la loi de commande n'est plus seulement la régulation du système autour d'une valeur de consigne ou la poursuite d'un profil de consigne. Dans le cadre de l'optimisation dynamique, il s'agit en plus de conserver l'*optimalité* de la commande à chaque instant. En d'autres termes, si dans la commande classique, on cherche à rejeter les effets des perturbations, dans la commande optimale, on cherche à les rejeter de manière optimale.

Position du Problème

Supposons que l'on dispose d'une solution du problème d'optimisation dynamique suivant :

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= G[\mathbf{x}(t_f)] + \int_{t_0}^{t_f} F(\mathbf{x}, u) dt \\
 \text{soumis à: } \quad \dot{\mathbf{x}} &= f(\mathbf{x}, u) \\
 \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\
 \Phi(\mathbf{x}_f) &= 0
 \end{aligned} \tag{4.67}$$

où l'état $\mathbf{x} \in \mathbb{R}^n$, la commande $u \in \mathbb{R}$ et la contrainte Φ est un vecteur fonction de \mathbb{R}^q avec $q \leq n$.

En d'autres termes, nous disposons d'une solution du système algébro-différentiel :

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u) \quad (4.68)$$

$$\dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \quad (4.69)$$

$$0 = \frac{\partial H}{\partial u} \quad (4.70)$$

$$\mathbf{x}(0) = \mathbf{x}_0 \quad (4.71)$$

$$\boldsymbol{\lambda}^T(t_f) = \left[\frac{\partial G}{\partial \mathbf{x}} + \nu^T \frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{x}} \right]_{t_f} \quad (4.72)$$

où H est le *Hamiltonien* et $\boldsymbol{\lambda}$ le vecteur adjoint du système relatif au critère augmenté \bar{J}

$$H = F + \boldsymbol{\lambda}^T f \quad (4.73)$$

$$\bar{J} = J + \nu^T \Phi(\mathbf{x}_f) \quad (4.74)$$

Dans les cas étudiés, l'équation d'état $\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u)$ est donnée par :

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{A}(u)\mathbf{x} + \mathbf{B}(u) \quad (4.75)$$

Cette forme simplifie l'application à la commande optimale mais ne nuit en rien à la généralité des méthodes présentées.

Le but de cette section est de proposer une loi de commande permettant de conduire le procédé dans les conditions optimales de fonctionnement définies par le système précédent. Cette régulation du procédé est envisagée dans un contexte physiquement réaliste, à savoir en présence de perturbations externes et aléatoires du système. L'optimalité de la loi de commande au regard du critère d'optimisation doit être, dans la mesure du possible, maintenue.

Commande en boucle fermée

Il existe plusieurs techniques de mise en oeuvre de la commande optimale en boucle fermée. Dans ce contexte, le principe de la loi de retour d'état est souvent retenu.

Dans les cas les plus simples (systèmes affines en la commande), la loi de commande est connue pour être de type *Bang-Bang* et les transitions entre les arêtes d'un polyèdre défini par le domaine de commande, dépendent du signe de fonctions analytiques données par les conditions d'optimalité (de Morant, 1992).

Dans le cas quadratique, les conditions d'optimalité conduisent directement à une expression analytique de la loi de retour d'état optimale $u = f(x)$. Cette expression analytique indique d'ailleurs que la loi de retour d'état est optimale au sens de la minimisation des écarts de commande et de sortie (Bryson et Ho, 1975).

Dans les cas plus complexes, la synthèse d'une loi de commande optimale est plus délicate. Elle peut être déduite de la dérivation de conditions d'optimalité (Modak et Lim, 1987). Ce cas est cependant limité aux systèmes non-linéaires mais simples du point de vue index (Palanki et al., 1993). Une autre source de difficulté dans la mise au point de la commande optimale en boucle fermée provient de la complexité du système non-linéaire considéré.

En effet, les études développées dans ce domaine (Palanki et al., 1993, 1994) concernent des systèmes décrits par une équation d'état du type :

$$\dot{x} = f(x) + g(x)u \quad (4.76)$$

Dans le cas des réacteurs électrochimiques, cette forme n'est pas assez générale pour représenter le système. Les résultats dans ce domaine dans la littérature sont donc peu nombreux.

Dans le cas où l'utilisation des conditions d'optimalité ne permet pas d'établir de loi de commande, on distingue plusieurs autres approches :

- La première approche consiste à recalculer la commande optimale lorsqu'un écart entre l'état (ou la sortie) optimale et l'état (ou la sortie) réel du système est observé. Cette approche bien que naturelle du point de vue intuitif, n'est généralement pas envisageable en pratique, à cause des temps de calcul des solutions optimales rédhibitoires.
- Une seconde approche consiste à calculer (*hors-ligne*) et à stocker un ensemble de trajectoires optimales $(x_v(t), u_v(t))$ pour des conditions au voisinage des conditions nominales pour lesquelles la solution optimale $(x_n(t), u_n(t))$ a été calculée. La commande en boucle fermée consiste alors, en cas d'écart entre la trajectoire nominale optimale et la trajectoire réelle, à rechercher parmi les trajectoires du voisinage, celle qui passe par l'état réel du procédé et à suivre cette trajectoire en appliquant la commande correspondante. Dans cette approche, le temps de calcul n'est plus rédhibitoire puisque ces derniers sont réalisés *hors-ligne* mais elle nécessite en revanche des capacités de stockage d'information qui augmentent très rapidement avec les dimensions du système.
- Une troisième approche consiste à linéariser le système au voisinage de la trajectoire optimale et à poursuivre la trajectoire optimale du système au moyen d'un régulateur classique de type PI ou PID. C'est de nos jours, l'approche la plus couramment envisagée car elle est basée sur les récents développements en commande des systèmes non-linéaires (Isidori, 1995; Corriou, 1996). La correction des écarts n'est toutefois plus optimale au sens propre du critère. En effet, une fois que l'on s'est écarté de la trajectoire optimale, le retour sur cette trajectoire ne constitue plus une politique optimale. Il faudrait en effet déterminer la nouvelle trajectoire qui optimise le critère à partir de l'état perturbé.
- Une quatrième approche, qui permet d'éviter le problème précédemment mentionné, consiste aussi à linéariser le système au voisinage de la trajectoire optimale. Cependant, la correction des écarts est réalisée en optimisant les variations du critère autour de la valeur optimale en appliquant le Principe du Maximum sur le système linéarisé. Une loi de commande optimale "analytique" peut alors être déterminée puisque le critère résultant est quadratique avec des contraintes linéaires (Bryson et Ho, 1975).

Il existe de nombreuses autres approches permettant de mettre en oeuvre une commande quasi-optimale parmi lesquelles on peut citer les plus fréquemment rencontrées :

- La paramétrisation du vecteur de commande sous la forme d'un retour d'état $u = f(x, p)$ où p est un vecteur de paramètres à déterminer *hors ligne* ou *en ligne*.

- La commande prédictive où les solutions optimales sont régulièrement recalculées et partiellement appliquées sur un intervalle prédéfini.

La commande optimale *en ligne* (du type commande prédictive "continue") n'est pas envisagée. Le principe de la commande optimale par calcul *hors-ligne* des faisceaux de trajectoire (état, commande) est brièvement présenté. La synthèse de la loi de commande optimale est réalisée par linéarisation du système autour de la trajectoire optimale et optimisation des variations du critère en présence de perturbations. La poursuite de trajectoire optimale est mise en oeuvre afin de comparer les performances de la commande optimale avec celles d'une commande plus "classique".

4.3.2 Commande par faisceau de trajectoires optimales

Le principe de la commande optimale à partir d'un ensemble de résultats calculés *hors-ligne* ne nécessite aucun développement théorique. Il repose sur le calcul d'un ensemble de trajectoires optimales en boucle ouverte qui permettent d'atteindre le même objectif. Les résultats optimaux dans l'espace (état, commande, temps) sont stockés puis réutilisés lors de la mise en oeuvre en boucle fermée. L'utilisation du faisceau de trajectoires optimales résultant est très simple. À chaque fois que le système est perturbé ou qu'il s'écarte de la trajectoire optimale courante, on détermine parmi les trajectoires optimales stockées, le point (état, temps) le plus "proche" du point perturbé. On utilise alors la commande optimale correspondante à ce point pour suivre la nouvelle trajectoire qui transfère le système vers l'objectif dans des conditions optimales.

Dans le cadre de la minimisation de la consommation énergétique, les figures 4.42 et 4.43 présentent les faisceaux de trajectoires (état, commande) optimales enregistrées dans deux conditions de transfert de matière. Ces faisceaux sont obtenus en résolvant successivement le problème pour des conditions initiales différentes et des conditions terminales identiques. Les autres conditions opératoires restent par ailleurs inchangées.

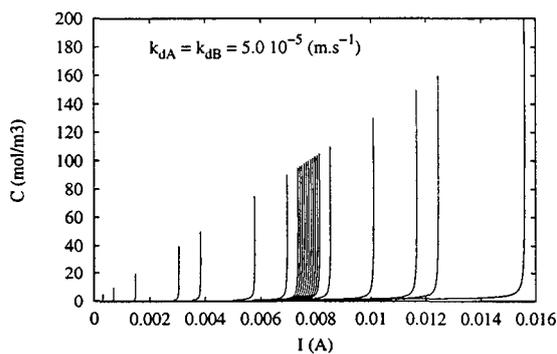


Figure 4.42: *Min* énergie: Faisceau de trajectoires minimisantes en conditions rapides de transfert.

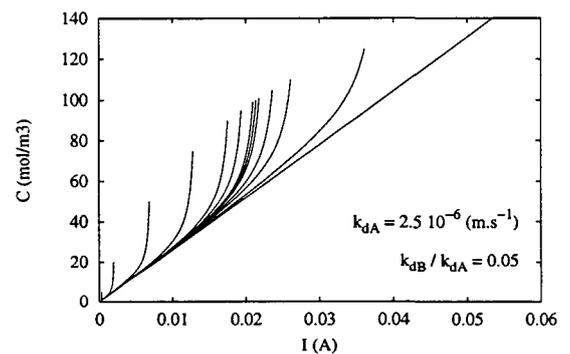


Figure 4.43: *Min* énergie: Faisceau de trajectoires minimisantes en conditions lentes de transfert.

Ces profils montrent la variété des trajectoires optimales ainsi que l'influence des paramètres tels que les coefficients de transfert de matière.

Les faisceaux de trajectoires optimales précédents sont continus. La complexité de ces faisceaux peut parfois poser des problèmes lors de la mise en oeuvre. Mais, Il est aussi possible de simplifier la forme de ces faisceaux en utilisant les résultats d'optimisation

paramétrée. La forme discontinue de la commande conduit alors à des faisceaux qui découpent l'espace (état, commande) d'une manière plus simple. Un exemple de faisceau d'un tel type est fourni sur la figure 4.44. Ce dernier est obtenu en résolvant, par CVP, le problème de minimisation du temps opératoire t_f permettant d'atteindre une sélectivité donnée à partir de différentes conditions opératoires. En plus des trajectoires optimales, les isochrones ont été calculées pour illustrer l'importance du temps dans la transition d'une trajectoire optimale à l'autre.

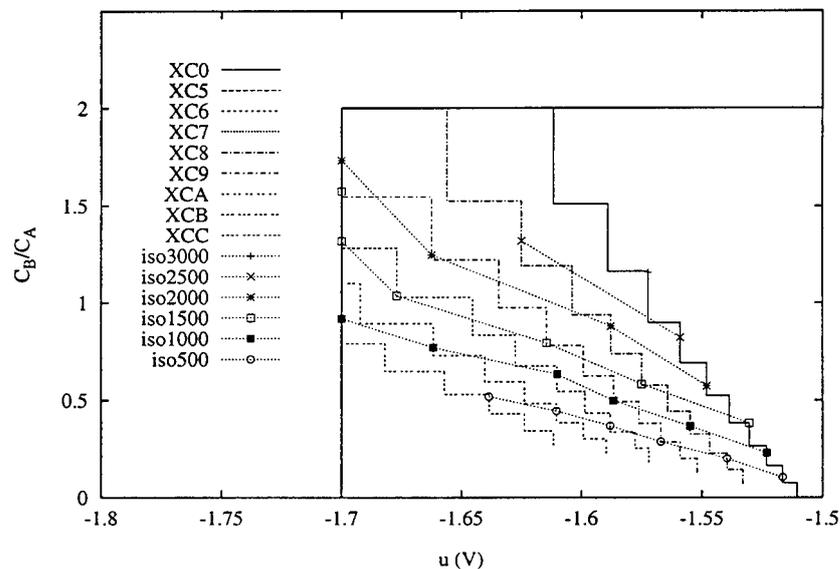


Figure 4.44: $Mint_f$: Faisceau de trajectoires optimales paramétrées.

L'utilisation de ce type de faisceau est alors grandement simplifiée par rapport au cas continu. L'espace de décision du niveau de commande est découpé en secteur.

Cette technique possède un inconvénient majeur. Elle nécessite une capacité de stockage relativement importante qui était, jusqu'à la fin des années 80, un problème technique. Depuis le milieu de notre décennie, les capacités des mémoires de masse ne sont cependant plus une limitation technique et cette méthode, simple, est envisageable même si elle n'a pas été mise en pratique dans notre étude. Cette technique de commande en boucle fermée a été négligée au profit de la commande par linéarisation autour de la trajectoire optimale et minimisation des variations du critère.

Mais, avant d'aller plus loin dans la présentation de cette technique de commande optimale en boucle fermée, il est nécessaire de présenter quelques considérations très utiles concernant l'application du Principe du Maximum sur des problèmes linéaires à critère quadratique et leur résolution.

4.3.3 Optimisation d'un système linéaire à critère quadratique

Considérons le problème d'optimisation dynamique d'un critère quadratique associé à un système linéaire :

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} \mathcal{J} &= \frac{1}{2} \mathbf{x}^T(t_f) G_x \mathbf{x}(t_f) + \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_f} \begin{bmatrix} \mathbf{x}^T & u \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{xx} & F_{xu} \\ F_{ux} & F_{uu} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{x} \\ u \end{bmatrix} dt \\ \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= f_x \mathbf{x} + f_u u \\ \mathbf{x}(0) &= \mathbf{x}_0 \\ \Phi_x \mathbf{x}_f &= \phi_f \end{aligned} \tag{4.77}$$

où l'état $x \in \mathfrak{R}^n$, la commande $u \in \mathfrak{R}$ et la matrice $\Phi_x \in \mathfrak{R}^{q \times n}$ avec $q \leq n$. Les termes G_x , f_x , F_{xx} , F_{xu} , F_{ux} et F_{uu} ne dépendent que du temps. Les indices x et u rappellent volontairement ceux parfois employés pour les dérivées partielles par rapport à x et à u . Nous verrons, en effet, une application de ce cas particulier pour un système résultant d'une linéarisation et qui conduit à cette forme linéaire à critère quadratique.

D'après le Principe du Maximum, la solution de ce problème est solution du système algébro-différentiel :

$$\dot{\mathbf{x}} = f_x \mathbf{x} + f_u u \tag{4.78}$$

$$\dot{\lambda} = - \frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}^T} \tag{4.79}$$

$$0 = \frac{\partial H}{\partial u} \tag{4.80}$$

$$\mathbf{x}(0) = \mathbf{x}_0 \tag{4.81}$$

$$\lambda^T(t_f) = \left[\left(G_x + \nu^T \Phi_x + \frac{\partial (\nu^T \Phi_x)}{\partial \mathbf{x}} \right) \mathbf{x} \right]_{t_f} \tag{4.82}$$

où H est le *Hamiltonien* et λ le vecteur adjoint du système relatif au critère augmenté $\bar{\mathcal{J}}$

$$H = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \mathbf{x}^T & u \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{xx} & F_{xu} \\ F_{ux} & F_{uu} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{x} \\ u \end{bmatrix} + \lambda^T (f_x \mathbf{x} + f_u u) \tag{4.83}$$

$$\bar{\mathcal{J}} = \mathcal{J} + \nu^T (\Phi_x \mathbf{x}_f) \tag{4.84}$$

$$\tag{4.85}$$

Sous réserve que le terme F_{uu} soit non-singulier, la solution u peut être obtenue en fonction de \mathbf{x} et de λ en utilisant la condition d'optimalité (4.80).

$$u = - F_{uu}^{-1} (F_{ux} \mathbf{x} + f_u^T \lambda) \tag{4.86}$$

Cette solution peut alors être introduite dans (4.78) et (4.79) pour conduire à un problème aux conditions limites séparées :

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{A} \mathbf{x} - \mathbf{B} \boldsymbol{\lambda} \quad (4.87)$$

$$\dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\mathbf{C} \mathbf{x} - \mathbf{A}^T \boldsymbol{\lambda} \quad (4.88)$$

avec

$$\mathbf{A} = \mathbf{f}_x - \mathbf{f}_u \mathbf{F}_{uu}^{-1} \mathbf{F}_{ux} \quad (4.89)$$

$$\mathbf{B} = \mathbf{f}_u \mathbf{F}_{uu}^{-1} \mathbf{f}_u^T \quad (4.90)$$

$$\mathbf{C} = \mathbf{F}_{xx} - \mathbf{F}_{xu} \mathbf{F}_{uu}^{-1} \mathbf{F}_{ux} \quad (4.91)$$

La résolution de ce problème consiste donc à déterminer les conditions initiales manquantes $\boldsymbol{\lambda}(0)$ et le vecteur de multiplicateur de Lagrange ν qui satisfont ce système.

Méthode “Sweep”

Le principe du maximum conduit à un système algèbro-différentiel aux conditions limites séparées dont la résolution est souvent délicate. Les méthodes impliquées sont souvent itératives donc coûteuses en temps de calcul.

Dans les cas les plus simples comme celui des systèmes linéaires, il existe des méthodes mieux adaptées comme les matrices de transition ou la méthode de balayage. Ces méthodes permettent, grâce aux propriétés spécifiques des systèmes linéaires, de transformer le *TPBVP* en un problème aux conditions initiales; évitant ainsi les techniques itératives. La méthode sélectionnée pour résoudre les *TPBVP* rencontrés est la méthode de balayage également connue sous l’anglicisme: méthode *Sweep*.

Système sans contrainte

On considère le système linéaire aux conditions limites séparées :

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{A} \mathbf{x} - \mathbf{B} \boldsymbol{\lambda} \quad (4.92)$$

$$\dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\mathbf{C} \mathbf{x} - \mathbf{A}^T \boldsymbol{\lambda} \quad (4.93)$$

$$\mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \quad (4.94)$$

$$\boldsymbol{\lambda}(t_f) = [\mathbf{G}_x]_{t_f} \mathbf{x}(t_f) \quad (4.95)$$

Pour des raisons évidentes d’analogie avec la notation du principe du maximum, les variables dont les conditions initiales sont connues, sont notées \mathbf{x} et les variables dont les conditions terminales sont connues, sont notées $\boldsymbol{\lambda}$. La résolution de ce système consiste à déterminer les conditions limites manquantes soit au temps initial $\boldsymbol{\lambda}(t_0)$ soit au temps final $\mathbf{x}(t_f)$.

L’idée originale de la méthode *Sweep* est de considérer la relation linéaire qui lie \mathbf{x} et $\boldsymbol{\lambda}$ à l’instant final t_f comme étant vrai à chaque instant :

$$\boldsymbol{\lambda}(t) = \mathbf{S}(t) \mathbf{x}(t) \quad (4.96)$$

Pour déterminer la solution $\boldsymbol{\lambda}(t_0)$, on fait *glisser* le coefficient \mathbf{S} de la condition terminale vers le temps initial. La valeur du coefficient $\mathbf{S}(t_0)$ fournit alors celle de $\boldsymbol{\lambda}(t_0)$: $\boldsymbol{\lambda}(t_0) = \mathbf{S}(t_0) \mathbf{x}(t_0)$.

L'évolution de \mathbf{S} est déduite des relations (4.96), (4.92) et (4.93) et est définie par une équation de Riccati :

$$\dot{\mathbf{S}} = -\mathbf{S}\mathbf{A} - \mathbf{A}^T\mathbf{S} + \mathbf{S}\mathbf{B}\mathbf{S} - \mathbf{C} \quad (4.97)$$

Les conditions terminales de \mathbf{S} sont données par la relation qui lie $\mathbf{x}(t_f)$ et $\boldsymbol{\lambda}(t_f)$. Dans le cas du *TPBVP* issu du principe du maximum, cette relation est connue et permet donc d'initialiser l'intégration de $\dot{\mathbf{S}}$:

$$\mathbf{S}(t_f) = [\mathbf{G}_x]_{t_f} \quad (4.98)$$

La résolution du problème consiste alors à intégrer (4.97) à rebours de t_f à t_0 . Le problème aux conditions limites séparées est ainsi transformé en un problème aux conditions terminales (ou initiales).

Système avec contraintes terminales linéaires

En présence de contraintes terminales linéaires $\boldsymbol{\Psi} = \mathbf{x}_f - \boldsymbol{\psi}_f = 0$, la résolution du système est plus complexe mais la démarche reste la même.

Dans le cas qui nous intéresse, un coefficient de pondération (multiplicateur de Lagrange) ν est adjoint à cette contrainte. Le *TPBVP* résultant est de la forme (4.92) (4.93) avec en plus les conditions aux limites :

$$\mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \quad (4.99)$$

$$\boldsymbol{\lambda}(t_f) = \left[\mathbf{G}_x + \frac{\partial (\nu^T \boldsymbol{\Psi})}{\partial \mathbf{x}} \right]_{t_f} \mathbf{x}(t_f) \quad (4.100)$$

$$\boldsymbol{\Psi} = 0 \quad (4.101)$$

$$(4.102)$$

Les conditions liant ces deux nouvelles variables du *TPBVP* conduisent à poser deux relations linéaires du type (4.96) :

$$\boldsymbol{\lambda}(t_f) = \mathbf{S}(t_f) \mathbf{x}(t_f) + \mathbf{R}(t_f) \nu \quad (4.103)$$

$$\boldsymbol{\Psi} = \mathbf{R}^T(t_f) \mathbf{x}(t_f) + \mathbf{Q}(t_f) \nu \quad (4.104)$$

La résolution du problème consiste alors à déterminer les conditions initiales $\boldsymbol{\lambda}(t_0)$ et ν qui satisfont les conditions terminales $\mathbf{x}(t_f)$ et les contraintes terminales $\boldsymbol{\Psi}$.

En utilisant la même démarche que précédemment, les expressions (4.103) (4.104) sont substituées dans (4.92) et (4.93) et conduisent aux équations qui régissent \mathbf{S} , \mathbf{R} et \mathbf{Q} :

$$\dot{\mathbf{S}} = -\mathbf{S}\mathbf{A} - \mathbf{A}^T\mathbf{S} + \mathbf{S}\mathbf{B}\mathbf{S} - \mathbf{C} \quad (4.105)$$

$$\dot{\mathbf{R}} = -(\mathbf{A}^T - \mathbf{S}\mathbf{B})\mathbf{R} \quad (4.106)$$

$$\dot{\mathbf{Q}} = \mathbf{R}^T\mathbf{B}\mathbf{R} \quad (4.107)$$

avec les conditions terminales déterminées à partir des conditions terminales (4.100), (4.101) et des définitions (4.103) et (4.104) :

$$\mathbf{S}(t_f) = \left[G_x + \frac{\partial (\nu^T \Psi_x)}{\partial \mathbf{x}} \right]_{t_f} \quad (4.108)$$

$$\mathbf{R}(t_f) = \Psi_x \quad (4.109)$$

$$\mathbf{Q}(t_f) = 0 \quad (4.110)$$

Lorsque ces équations ont été intégrées de t_f à t_0 , on peut déterminer la solution ν qui satisfait la contrainte Ψ , à l'aide de la relation :

$$\nu = \mathbf{Q}^{-1}(t_0) [\Psi - \mathbf{R}(t_0)\mathbf{x}(t_0)] \quad (4.111)$$

lorsque ν est connu, la solution $\lambda(t_0)$ est donnée par :

$$\lambda(t_0) = [\mathbf{S}(t_0) - \mathbf{R}(t_0)\mathbf{Q}^{-1}(t_0)\mathbf{R}^T(t_0)] \mathbf{x}(t_0) + \mathbf{R}(t_0)\mathbf{Q}^{-1}(t_0)\Psi \quad (4.112)$$

Il suffit alors d'intégrer le système (4.92) - (4.93) pour déterminer $\mathbf{x}(t)$ et $\lambda(t)$.

Cette technique est utilisée pour la synthèse des lois de commande en boucle fermée. On l'utilise dans un premier temps pour une loi *classique* puis pour une loi de commande optimale.

4.3.4 Synthèse d'une loi de commande classique

Description

Afin de pouvoir évaluer les performances de la commande optimale en boucle fermée, il est nécessaire d'avoir une loi de commande de référence. Cette dernière sera appelée, par la suite, loi de commande *classique*.

Naturellement, la gamme des lois de commande qui peuvent servir pour la comparaison est très étendue. Dans cette étude, on choisit de réguler l'état du système autour de sa trajectoire optimale. Le choix s'oriente vers une régulation de type PI ou PID. L'objet régulé considéré est la sortie (intensité du courant mesurés). Cependant, ce type de régulateur est basé sur la théorie de la commande des systèmes linéaires. Dans le cas non-linéaire, la forme linéarisée, autour de la trajectoire optimale, du système (4.68) est utilisée :

$$\delta \dot{\mathbf{x}} = \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} \delta \mathbf{x} + \frac{\partial f}{\partial u} \delta u \quad (4.113)$$

$$(4.114)$$

avec $\delta \mathbf{x} = \mathbf{x} - \mathbf{x}^{opt}$ et $\delta u = u - u^{opt}$ où l'exposant *opt* précise la nature optimale des trajectoires de référence.

Le système linéarisé sera noté :

$$\delta \dot{\mathbf{x}} = \bar{A} \delta \mathbf{x} + \bar{B} \delta u \quad (4.115)$$

$$(4.116)$$

avec, pour le système électrochimique considéré $\dot{\mathbf{x}} = A \mathbf{x} + B$:

$$\bar{A} = \left(\frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} \right)^{opt} = (A)^{opt} \quad (4.117)$$

$$\bar{B} = \left(\frac{\partial f}{\partial u} \right)^{opt} = \left(\frac{\partial A}{\partial u} \right)^{opt} \mathbf{x}^{opt} + \left(\frac{\partial B}{\partial u} \right)^{opt} \quad (4.118)$$

$$(4.119)$$

Si la sortie est non-linéaire, on considère également la sortie linéarisée:

$$\delta y = (\bar{C})^{opt} \delta \mathbf{x} \quad (4.120)$$

D'un point de vue pratique, ce régulateur est utilisé pour calculer la correction de la commande δu qui réduit l'écart entre la sortie réelle y et la sortie optimale y^{opt} du procédé. Une limitation sur l'amplitude de δu est, pour des raisons physiques, souvent nécessaire. En terme d'optimisation, ce type de régulateur correspond au problème de minimisation du critère J :

$$J = +\frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_f} [\delta \mathbf{x}^T \omega_1 \delta \mathbf{x} + \delta u \omega_2 \delta u] dt \quad (4.121)$$

avec ω_1 et ω_2 , deux constantes positives.

Loi de commande classique

Le problème de régulation classique peut donc également se poser sous la forme d'un problème d'optimisation dynamique à critère quadratique sous contraintes linéaires:

$$\begin{aligned} \min_{\delta u(t)} J &= +\frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_f} [\delta \mathbf{x}^T \omega_1 \delta \mathbf{x} + \delta u \omega_2 \delta u] dt \\ \text{soumis à: } \delta \dot{\mathbf{x}} &= \bar{A} \delta \mathbf{x} + \bar{B} \delta u \\ \delta \mathbf{x}(0) &= \delta \mathbf{x}_0 \end{aligned} \quad (4.122)$$

La mise au point d'une loi de commande classique en boucle fermée consiste donc à résoudre un problème d'optimisation linéaire à critère quadratique.

Le *Hamiltonien* H du système est défini:

$$H = \frac{1}{2} [\delta \mathbf{x}^T \omega_1 \delta \mathbf{x} + \delta u \omega_2 \delta u] + \delta \boldsymbol{\lambda}^T (\bar{A} \delta \mathbf{x} + \bar{B} \delta u) \quad (4.123)$$

Sous réserve que ω_2 soit non-nul, la solution δu peut être obtenue en fonction de $\delta \mathbf{x}$ et de $\delta \boldsymbol{\lambda}$ en utilisant la condition d'optimalité $\partial H / \partial (\delta u) = 0$:

$$\delta u = -\rho (\bar{B}^T \delta \boldsymbol{\lambda}) \quad (4.124)$$

avec $\rho = \frac{1}{\omega_2}$.

Le vecteur adjoint $\delta \boldsymbol{\lambda}$ du système est donc défini par:

$$\dot{\delta \boldsymbol{\lambda}} = -\omega_1 \delta \mathbf{x} - \bar{A}^T \delta \boldsymbol{\lambda} \quad (4.125)$$

Ainsi, le problème de mise au point d'un régulateur consiste à résoudre le *TPBVP* de la forme (4.92) - (4.95) où seules les expressions des matrices \mathcal{A} , \mathcal{B} et \mathcal{C} diffèrent :

$$\mathcal{A} = \bar{A} \quad (4.126)$$

$$\mathcal{B} = \rho \bar{B} \bar{B}^T \quad (4.127)$$

$$\mathcal{C} = \omega_1 I \quad (4.128)$$

avec I la matrice identité.

Le *TPBVP* résultant est de la même forme que (4.88) et on utilise le développement de la méthode *Sweep* sans contrainte.

Loi de retour d'état L'expression de la commande en fonction des variables adjointes présente peu d'intérêt. Il est plus intéressant de fournir directement une loi de retour d'état explicite. Dans le cas présent, cette loi est obtenue en injectant l'expression de $\delta\lambda$ dans la condition d'optimalité (4.124) :

$$\delta u(t) = -K_x(t) \delta x(t) \quad (4.129)$$

$$K_x(t) = +\rho \bar{B}^T S(t) \quad (4.130)$$

où S est fourni par l'équation (4.105)

4.3.5 Synthèse de la loi de commande optimale

Les propriétés des systèmes linéaires à critères quadratiques sont également exploitées pour mettre au point une loi de commande optimale en boucle fermée.

Description

Considérons des petites perturbations des trajectoires optimales provoquées par des perturbations de l'état initial δx_0 et des contraintes terminales $\delta\Phi$. Ces perturbations provoquent des perturbations sur le vecteur d'état δx , le vecteur adjoint $\delta\lambda$, la variable de commande δu et le vecteur de multiplicateurs de Lagrange $\delta\nu$. Ces variations sont données en linéarisant le système algèbro-différentiel composé de (4.68), (4.69) et de (4.70) :

$$\delta \dot{x} = \frac{\partial f}{\partial x} \delta x + \frac{\partial f}{\partial u} \delta u \quad (4.131)$$

$$\delta \dot{\lambda} = -\frac{\partial^2 H}{\partial x^2} \delta x - \frac{\partial^2 H}{\partial x^T \partial \lambda} \delta \lambda - \frac{\partial^2 H}{\partial x^T \partial u} \delta u \quad (4.132)$$

$$0 = \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial x^T} \delta x + \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \lambda} \delta \lambda + \frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \delta u \quad (4.133)$$

$$\delta \lambda^T(t_f) = \left[\left(\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} + \frac{\partial \left(\nu^T \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right)}{\partial x} \right) \delta x + \frac{\partial \Phi}{\partial x^T} d\nu \right]_{t_f} \quad (4.134)$$

avec $\delta \mathbf{x} = \mathbf{x} - \mathbf{x}^{opt}$, $\delta u = u - u^{opt}$ et $\delta \lambda = \lambda - \lambda^{opt}$ où l'exposant opt précise la nature optimale des trajectoires de référence.

D'après la définition de la fonction hamiltonienne (4.73), il est possible d'écrire les variations du critère augmenté (4.74), résultant des variations $\delta \mathbf{x}$ de l'état et δu de la commande :

$$\begin{aligned} \bar{J}(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}, u + \delta u) &= G(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}) + \nu^T \Phi(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}) \\ &+ \int_{t_0}^{t_f} \left[H(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}, u + \delta u) - \lambda^T f(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}, u + \delta u) \right] dt \end{aligned} \quad (4.135)$$

Considérons, par ailleurs, le développement en série de Taylor à l'ordre 2 de l'expression d'une fonction ζ de \mathbf{x} et de u telles que H , f :

$$\zeta(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}, u + \delta u) = \zeta(\mathbf{x}, u) + \delta \zeta(\mathbf{x}, u) \quad (4.136)$$

$$(4.137)$$

$$= \zeta(\mathbf{x}, u) + \begin{bmatrix} \frac{\partial \zeta}{\partial \mathbf{x}^T} & \frac{\partial \zeta}{\partial \delta u} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x} & \delta u \end{bmatrix} \quad (4.138)$$

$$+ \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x}^T & \delta u \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\partial^2 \zeta}{\partial \mathbf{x}^2} & \frac{\partial^2 \zeta}{\partial \mathbf{x}^T \partial u} \\ \frac{\partial^2 \zeta}{\partial u \partial \mathbf{x}} & \frac{\partial^2 \zeta}{\partial u^2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x} \\ \delta u \end{bmatrix} \quad (4.139)$$

Le développement des fonctions ζ du vecteur \mathbf{x} telles que $G(\mathbf{x})$ et $\nu^T \Phi(\mathbf{x})$ conduisent quant à elles :

$$\zeta(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}) = \zeta(\mathbf{x}) + \delta \zeta(\mathbf{x}) \quad (4.140)$$

$$= \zeta(\mathbf{x}) + \begin{bmatrix} \frac{\partial \zeta}{\partial \mathbf{x}^T} \end{bmatrix} \delta \mathbf{x} + \frac{1}{2} \delta \mathbf{x}^T \begin{bmatrix} \frac{\partial^2 \zeta}{\partial \mathbf{x}^2} \end{bmatrix} \delta \mathbf{x}$$

En appliquant la définition des trajectoires adjointes (4.69), la condition d'optimalité (4.70) et les conditions limites (4.72), tous les termes du premier ordre s'annulent autour de la trajectoire optimale :

$$\begin{aligned} \delta^2 \bar{J} &= \bar{J}(\mathbf{x} + \delta \mathbf{x}, u + \delta u) - \bar{J}(\mathbf{x}, u) \\ &= \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x}^T \left(\frac{\partial^2 G}{\partial \mathbf{x}^2} + \frac{\partial \left(\nu^T \frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{x}} \right)}{\partial \mathbf{x}} \right) \delta \mathbf{x} \end{bmatrix}_{t_f} \\ &+ \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_f} \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x}^T & \delta u \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\partial^2 H}{\partial \mathbf{x}^2} & \frac{\partial^2 H}{\partial \mathbf{x}^T \partial u} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \mathbf{x}} & \frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \delta \mathbf{x} \\ \delta u \end{bmatrix} dt \end{aligned} \quad (4.141)$$

avec la contrainte (4.131) et les conditions connues :

$$\delta \mathbf{x}(t_0) = 0 \quad (4.142)$$

$$\delta \Psi = \begin{bmatrix} \frac{\partial \Psi}{\partial \mathbf{x}} \delta \mathbf{x} \end{bmatrix}_{t_f} \quad \delta \Psi \text{ spécifié} \quad (4.143)$$

La commande optimale doit alors minimiser, autour de la trajectoire optimale de référence, les variations du critère $\delta^2 \bar{J}$ (4.141) en satisfaisant les contraintes (4.131)(4.142) et (4.143). En appliquant le Principe du Maximum, le problème aux conditions limites séparées à résoudre correspond justement au système (4.68) - (4.72) linéarisé défini par (4.131) - (4.134).

A la différence du système original, la forme du critère est alors quadratique et les contraintes sont linéaires. Il est alors possible d'avoir recours aux méthodes consacrées à ce cas particulier comme la méthode *Sweep*.

Sous réserve que la dérivée seconde de H par rapport à u soit non-singulière, la solution δu peut être obtenue en fonction de $\delta \mathbf{x}$ et de $\delta \boldsymbol{\lambda}$ en utilisant la condition d'optimalité linéarisée (4.133).

$$\delta u = - \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \left(\frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \mathbf{x}} \delta \mathbf{x} + \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \boldsymbol{\lambda}} \delta \boldsymbol{\lambda} \right) \quad (4.144)$$

Cette solution peut alors être introduite dans (4.131) et (4.132) pour conduire à un problème aux conditions limites séparées :

$$\delta \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{A} \delta \mathbf{x} - \mathbf{B} \delta \boldsymbol{\lambda} \quad (4.145)$$

$$\delta \dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\mathbf{C} \delta \mathbf{x} - \mathbf{A}^T \delta \boldsymbol{\lambda} \quad (4.146)$$

avec

$$\mathbf{A} = \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} - \frac{\partial f}{\partial u} \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \mathbf{x}^T} \quad (4.147)$$

$$\mathbf{B} = \frac{\partial f}{\partial u} \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \frac{\partial f^T}{\partial u} \quad (4.148)$$

$$\mathbf{C} = \frac{\partial^2 H}{\partial \mathbf{x}^2} - \frac{\partial^2 H}{\partial \mathbf{x} \partial u} \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \mathbf{x}^T} \quad (4.149)$$

où chaque terme est considéré le long de la trajectoire optimale u^{opt} .

La solution de ce problème peut être déterminée par la méthode *Sweep* avec contrainte décrite en détails dans la sous-section 4.3.3.

Loi de retour d'état optimal

Dans le cadre de la commande optimale en boucle fermée, on est plus intéressé par la solution $\delta u(t)$ du problème que par les conditions initiales ν ou $\boldsymbol{\lambda}(t_0)$ déterminées par la méthode *Sweep*. Les résultats fournis par cette dernière ne sont d'ailleurs pas limités au temps initial t_0 . En effet, en considérant n'importe quel temps initial $t_0^* \in [t_0, t_f]$, les relations établies restent valables. Il est plus pratique de conserver en mémoire les fonctions $\mathbf{S}(t)$ et $\mathbf{R}(t)$ pendant le *balayage* à rebours. Il est alors possible d'établir une loi de retour d'état optimale explicite en développant les expressions de ν et $\delta \boldsymbol{\lambda}(t)$ dans (4.144) :

$$\delta u(t) = -K_x(t) \delta \mathbf{x}(t) - K_\psi(t) \delta \Psi \quad (4.150)$$

$$K_x(t) = - \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \mathbf{x}} + \frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \boldsymbol{\lambda}} \left(\mathbf{S}(t) - \mathbf{R}(t) \mathbf{Q}^{-1}(t) \mathbf{R}^T(t) \right) \right] \quad (4.151)$$

$$K_\psi(t) = - \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u^2} \right]^{-1} \left[\frac{\partial^2 H}{\partial u \partial \lambda^T} R(t) Q^{-1}(t) \right] \quad (4.152)$$

$$(4.153)$$

Les grandeurs K_x et K_ψ représentent donc des gains optimaux, au sens du critère J , d'une loi de retour d'état continue. Il est important de rappeler que cette loi est *optimale-optimale* dans le sens où la trajectoire de référence et la régulation autour de cette trajectoire sont optimales à chaque instant.

4.3.6 Application au réacteur électrochimique

Les deux applications sont réalisées sur le problème de la maximisation de la concentration finale en B dans un schéma $A \rightarrow B \rightarrow D$ où le temps final et la conversion en A sont fixés. La variable de commande u correspond au potentiel d'électrode E et la sortie y du système correspond à l'intensité I du courant.

Les régulateurs proposés sont basés sur une loi de retour d'état dynamique $u(t) = K(t) x(t)$. Les performances de la régulation sont donc très largement conditionnées par les performances de l'observateur d'état. Compte tenu des difficultés d'observation de notre système électrochimique, les résultats sont présentés en deux temps. la première partie est consacrée à la régulation d'un système où les états sont supposés connus à chaque instants (sans observateur). Cette partie souligne ainsi les performances spécifiques du régulateur. La seconde partie présente les résultats de la commande en boucle fermée avec un filtre de Kalman pour la reconstruction de l'état.

Le fonctionnement réel du réacteur est simulé à l'aide du modèle utilisé pour l'optimisation, auquel on ajoute un bruit blanc (moyenne nulle) à distribution gaussienne. Le système est alors décrit par les relations (4.38) (4.39) rappelées ci-dessous :

$$\dot{x} = A(u) x + B(u) + w(t) \quad (4.154)$$

$$y = C(u) x + D(u) + v(t) \quad (4.155)$$

où $w(t)$ est le vecteur d'erreurs du modèle et v_k le bruit de mesure. Ce sont des bruits blancs gaussiens centrés de covariance respective $Q_f(t)$ et $R_f(t)$ qui vérifient :

$$\begin{aligned} E[w(t)] &= 0 \\ E[w(t) w^T(t')] &= Q_f(t) \delta(t, t') \\ E[v(t)] &= 0 \\ E[v(t) v^T(t)] &= R_f(t) \end{aligned} \quad (4.156)$$

Les écart-types Q_f et R_f sont proposés dans le tableau 4.5.

Les conditions opératoires considérées pour ce système sont résumées dans le tableau 4.6 et les réactions sont considérées irréversibles ($\alpha_i = k_{bi} = 0$).

Les conditions optimales de ce systèmes sont déterminées par une des méthodes continues (BCI, CVI) précédemment décrites.

4.3.7 Performance de la commande classique en boucle fermée

La qualité des résultats de la commande optimale en boucle fermée est difficile à évaluer intrinsèquement. Une série de résultats concernant la commande *classique* en boucle fermée est donc présentée afin d'estimer ses performances et d'illustrer ses éventuelles lacunes.

Paramètre	Correspondance ou Valeur
$R_f(t)$	$= (\sigma_y)^2$
$Q_f(t)$	$= \text{diag} [(\sigma_{\dot{x}_1})^2 (\sigma_{\dot{x}_2})^2]$
σ_y	$= 4 \cdot 10^{-2}$
$\sigma_{\dot{x}_1}$	$= 10^{-2}$
$\sigma_{\dot{x}_2}$	$= 10^{-2}$

Tableau 4.5: Initialisation des bruits blancs gaussien sur le modèle et la sortie.

paramètre	valeur	unité
C_{A0}	680.0	$(mol.m^{-3})$
C_{B0}	0.0	$(mol.m^{-3})$
C_{D0}	0.0	$(mol.m^{-3})$
k_{dA}	10^{-4}	$(m.s^{-1})$
$r_k = k_{dB}/k_{dA}$	0.1	(-)
k_{f10}	10^{-13}	$(m.s^{-1})$
k_{f20}	$3.33 \cdot 10^{-14}$	$(m.s^{-1})$
β_1	0.162	(-)
β_2	0.157	(-)
t_f	3600	(s)

Tableau 4.6: Conditions opératoires ABD .

Sans observateur d'état

On suppose que tous les états sont instantanément mesurés. Les performances du régulateur dans ce schéma sans observateur d'état sont alors évaluées en considérant le système soumis à deux types de perturbations :

- (i) une seule perturbation sur l'état x à l'instant initial
- (ii) une série de perturbations sur l'état x à différents instants de l'opération.

Perturbation initiale Dans le cas d'une seule perturbation du système en début d'opération, on peut observer le comportement asymptotique du régulateur. Cette étude permet notamment de mettre au point le réglage des paramètres ω_1 et ω_2 qui interviennent dans le critère quadratique du régulateur.

Le fonctionnement du procédé en boucle fermée est présenté en présence d'un écart à l'optimalité des états initiaux $(\delta x_1 \ \delta x_2) = (-0.1 \ 0.05)$. Ces écarts correspondent, dans les conditions opératoires données, à une déviation de la sortie (courant) $\delta y = 0.7 \text{ A}$.

Régulation classique : Réglage des paramètres du régulateur

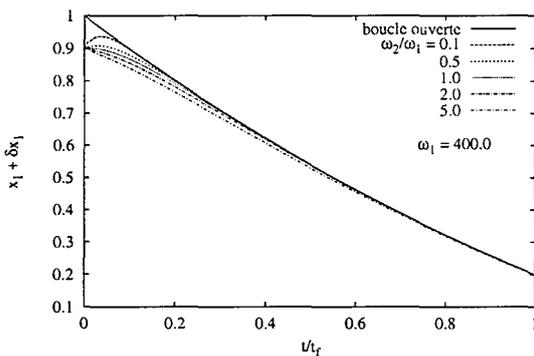


Figure 4.45: Trajectoire régulée de l'état x_1 .

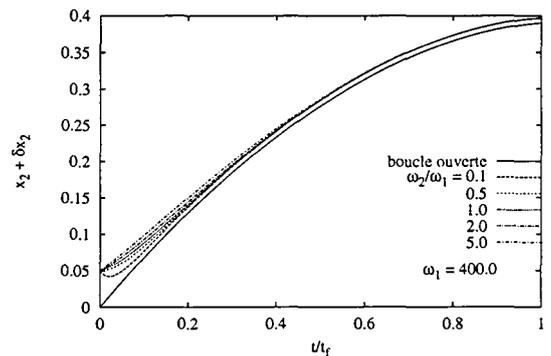


Figure 4.46: Trajectoire régulée de l'état x_2 .

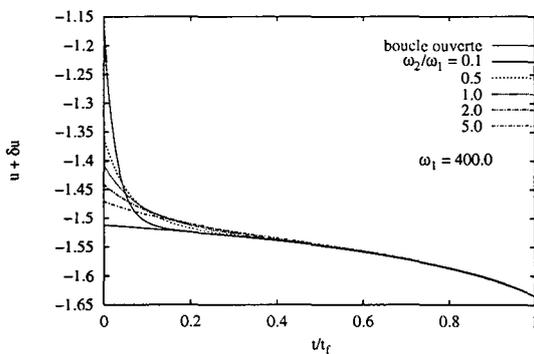


Figure 4.47: Trajectoire régulée de la commande u .

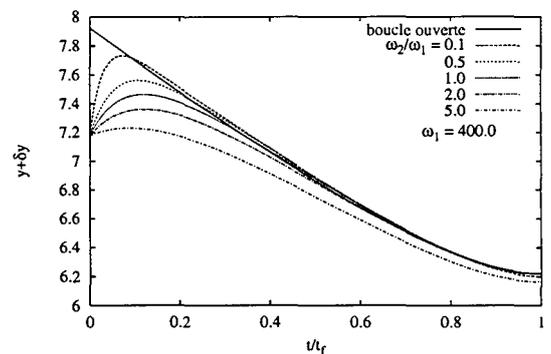


Figure 4.48: Trajectoire régulée de la sortie y .

Le réglage des paramètres du régulateur peut être basé sur diverses considérations. La première considération provient de la nécessité d'évoluer au voisinage de la trajectoire de

consigne. En effet, la linéarisation ne peut être valable que dans un intervalle restreint. La seconde considération à prendre en compte est l'écart à l'optimalité des résultats, notamment l'écart terminal sur le critère $C_B(t_f)$ et celui sur la contrainte X_A . Ces écarts traduisent la qualité du régulateur.

Les figures 4.45, 4.46, 4.47 présentent les profils régulés des états x_1 et x_2 , de la commande u en boucle fermée pour $\omega_1 = 400$ et pour 4 valeurs du rapport ω_2/ω_1 . Les profils sont comparés à la trajectoire optimale de référence (consigne). En absence d'observateur d'état, l'information sur la sortie n'est pas exploitée mais cette dernière est tout de même illustrée sur la figure 4.48.

La validité de l'approximation linéaire est illustrée sur les figures 4.45, 4.46, 4.47. On montre ainsi que l'état du système reste au voisinage de sa trajectoire optimale mais que la commande peut s'écarter de sa référence dans une amplitude qui met en doute la validité de la linéarisation.

L'influence du rapport ω_2/ω_1 sur les profils régulés est prévisible. Lorsque le rapport est élevé, la pondération sur δu est importante et les variations correspondantes sont limitées au détriment des variations sur l'état. Réciproquement, lorsque le rapport est faible, le critère traduit une volonté de limiter les écarts de consigne sur les trajectoires d'état au dépend des écarts sur le profil de commande. La résolution du TPBVP par la méthode *Sweep* est donc cohérente avec les objectifs de régulation imposés.

Les écarts à l'optimalité présentés par les valeurs du critère $C_B(t_f)$ et du taux de conversion X_A sont proposés dans le tableau 4.7.

Régulation	Contrainte	Critère
ω_2/ω_1	$x_1(1)$	$x_2(1)$
0.1	0.1987	0.397
0.5	0.1993	0.397
1.0	0.1995	0.397
2.0	0.1993	0.397
5.0	0.1974	0.396
b. ouverte	0.2000	0.3901

Tableau 4.7: Optimalité des trajectoires régulées.

À partir de l'étude du comportement asymptotique du régulateur *classique*, le choix des coefficients qui satisfont les considérations mentionnées, est pris comme $(\omega_1 \ \omega_2) = (400 \ 200)$, c'est-à-dire $(\omega_2/\omega_1) = 0.5$.

Série de perturbations Lorsque les paramètres du régulateur sont réglés, les performances de ce dernier sont évaluées en soumettant le système régulé à une série de perturbations de l'état d'amplitude $(\delta x_1 \ \delta x_2) = (+0.02 \ -0.05)$. Le choix de ces amplitudes correspond ainsi à des perturbations de la sortie réalistes. Les conditions initiales ne sont volontairement pas perturbées pour montrer l'inactivité du régulateur en absence d'écart.

La fréquence de ces perturbations est choisie pour que le système subisse 4 perturbations à intervalles réguliers. Compte tenu de cette description, il est évident que l'intérêt de cette étude est strictement numérique.

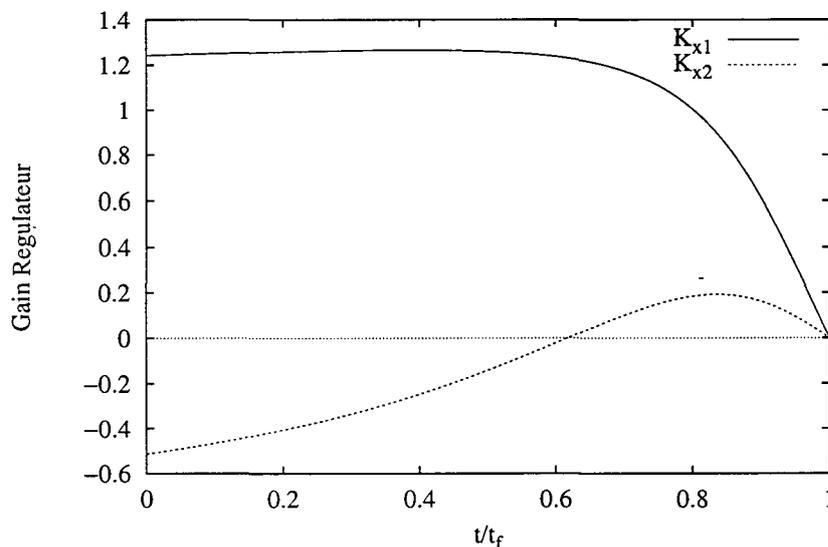


Figure 4.49: Gain du régulateur.

Les gains du régulateur sont présentés à titre indicatif sur la figure 4.49. Les performances du régulateur sont présentées sous la forme d'écart par rapport aux trajectoires optimales et sous la forme de trajectoires régulées. Les variables présentées sont les états (figures 4.50 et 4.51), la commande (figures 4.52 et 4.53) et la sortie (figures 4.54 et 4.55).

Les profils des états régulés montrent que, même si la tendance asymptotique de la régulation est satisfaisante, en pratique, la commande *classique* en boucle fermée ne conduit pas aux résultats souhaités. L'amplitude et le nombre de perturbations illustrent toutefois un cas pratique parfaitement défavorable à la mise en oeuvre d'une commande en boucle fermée. Ces résultats ne sont pas commentés plus en détails mais ils seront utilisés dans une prochaine section, comme point de comparaison pour la commande optimale en boucle fermée.

4.3.8 Performance de la commande optimale en boucle fermée

Dans le cas de la commande optimale en boucle fermée, le critère d'optimisation défini pour la régulation prend en compte deux éléments. Il tient compte d'une part, de la minimisation du critère (concentration en B) et d'autre part de la satisfaction d'une contrainte terminale (taux de conversion). La contrainte sur la conversion est un indicateur très important dans l'estimation des performances de la régulation optimale car elle permet de vérifier immédiatement si le régulateur répond correctement aux exigences imposées.

Sans observateur d'état

On considère dans cette sous-section que tous les états sont instantanément mesurés. Les performances du régulateur dans ce schéma sans observateur d'état sont alors évaluées en considérant le système soumis à deux types de perturbations :

Régulation classique: Réponse à une série de perturbations sur l'état.

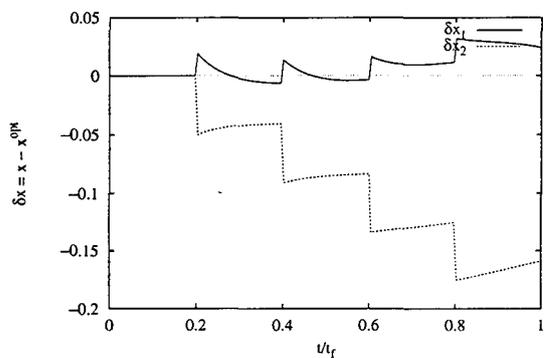


Figure 4.50: Déviation de l'état.

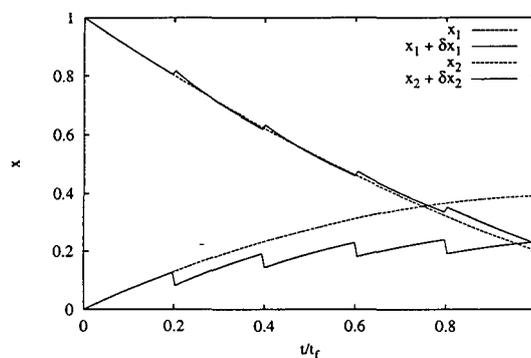


Figure 4.51: État de référence et état régulé.

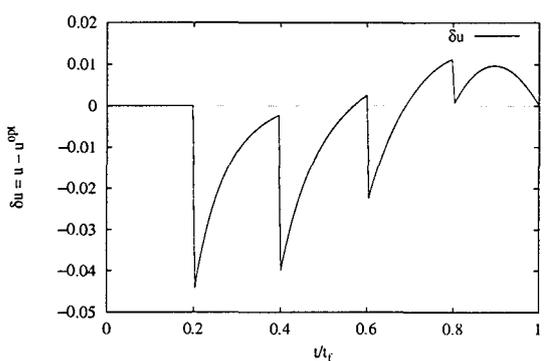


Figure 4.52: Déviation de la commande.

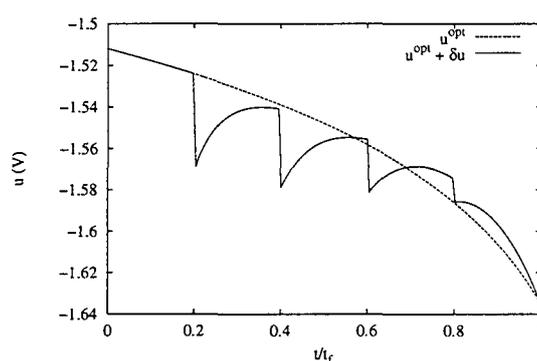


Figure 4.53: Commande de référence et commande optimale.

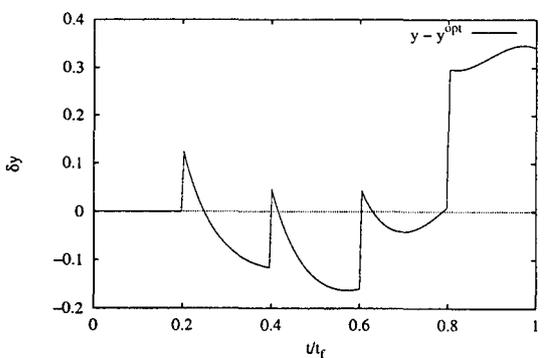


Figure 4.54: Déviation de la sortie.

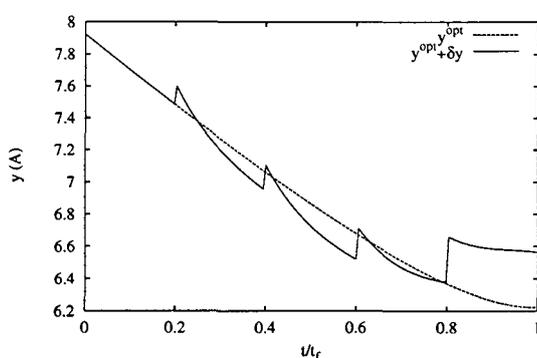


Figure 4.55: Sortie de référence et sortie optimale.

- (i) une seule perturbation sur l'état \mathbf{x} à l'instant initial
- (ii) une série de perturbations sur l'état \mathbf{x} à différents instants de l'opération.

Dans cette partie, les perturbations sont réalisées sur l'état \mathbf{x} et non pas sur la sortie y du système. En effet, l'absence d'observateur d'état ne permet pas d'exploiter l'information (les perturbations) sur la sortie.

Le régulateur optimal est construit à partir de la relation (4.150). Les gains du régulateur issus de (4.151) dépendent de la solution des équations de *Riccati* associées au *TPBVP* (4.146) mais pas des conditions de fonctionnement en boucle fermée. Les profils des gains optimaux sont donc communs aux deux cas étudiés et illustrés sur la figure 4.56. Le gain donné par (4.152) n'est pas présenté car les objectifs de la régulation sont de satisfaire la contrainte ($\delta\Psi = 0$). La correction de la commande δu ne dépend donc pas de ce terme.

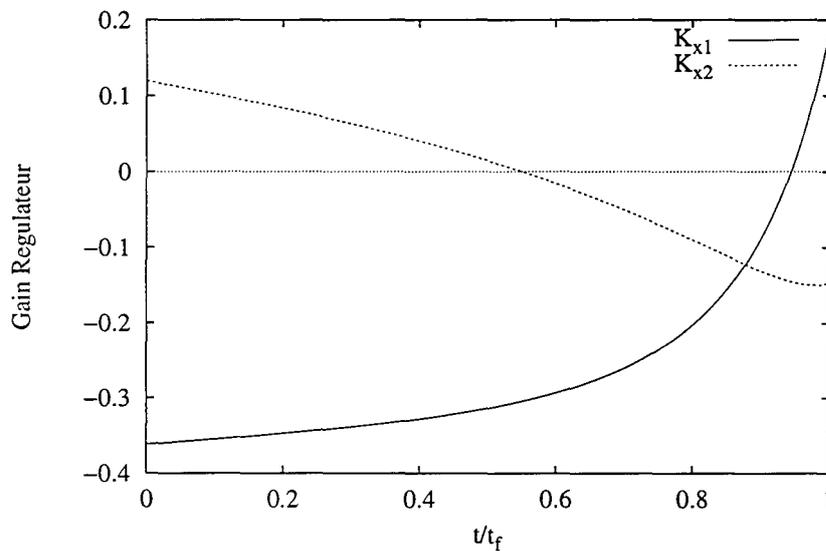


Figure 4.56: Gain K_x du régulateur optimal

La comparaison des profils des gains avec ceux issus de la commande *classique* est délicate. Elle indique simplement qu'ils sont fondamentalement différents, au même titre que les critères qui les définissent.

Perturbation de l'état initial Dans un premier temps, les performances asymptotiques du régulateur sont étudiées. Les figures 4.57 à 4.62 illustrent la réponse du système de régulation optimale lorsque l'état est supposé mesurable et pour une estimation des conditions initiales de $\mathbf{x}^T = (0.9 \ 0.05)$, soit une déviation initiale $\delta\mathbf{x}^T = (-0.1 \ 0.05)$. Ces conditions sont identiques à celles utilisées pour le régulateur *classique*.

Les figures 4.57, 4.59 et 4.61 présentent les résultats sous forme d'écart et les figures 4.58, 4.60 et 4.62 présentent les profils régulés des variables correspondantes.

La figure 4.57 présente les déviations à l'optimalité des grandeurs d'état. Le profil de δx_1 converge vers 0 à l'instant final et indique que le régulateur satisfait la contrainte terminale imposée sur x_1 malgré la perturbation initiale. Cette remarque permet de vérifier le fonctionnement correct de ce régulateur. C'est d'ailleurs le seul indicateur disponible car le régulateur minimise les variations du critère mais l'optimalité du résultat est difficile à évaluer. Il s'agit également de la principale différence, en termes de performances, entre les

Régulation optimale : Réponse à une perturbation des conditions initiales

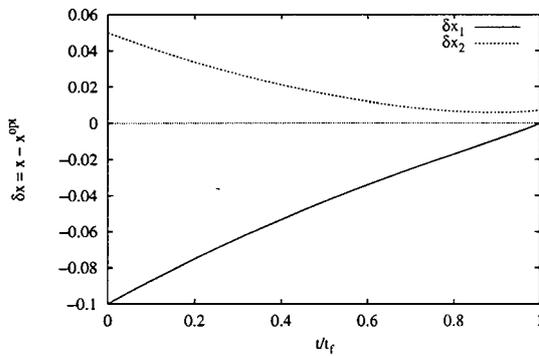


Figure 4.57: Écarts des états.

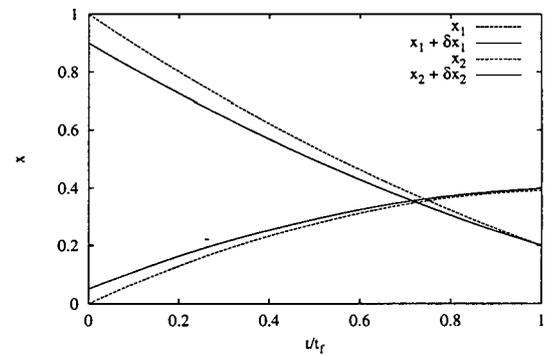


Figure 4.58: État de référence et état régulé.

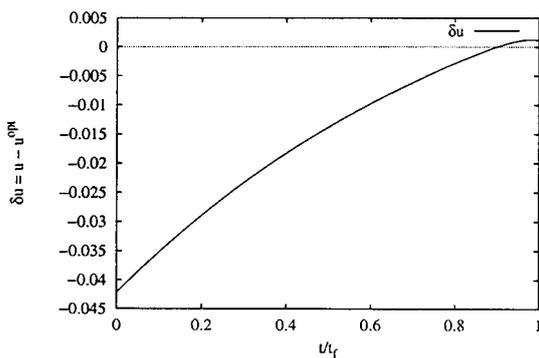


Figure 4.59: Écarts de commande.

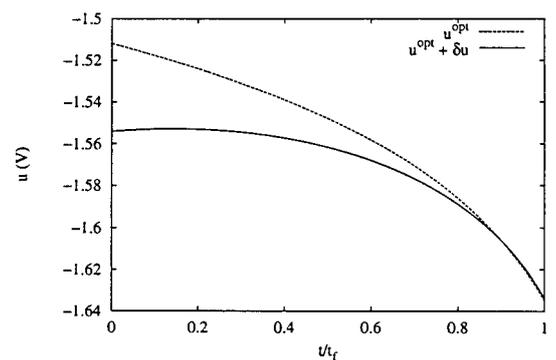


Figure 4.60: Commande de référence et commande optimale.

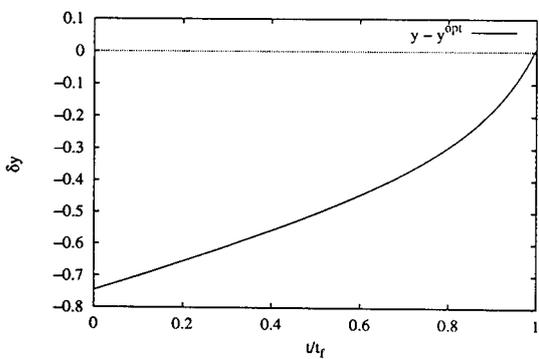


Figure 4.61: Écarts de sortie.

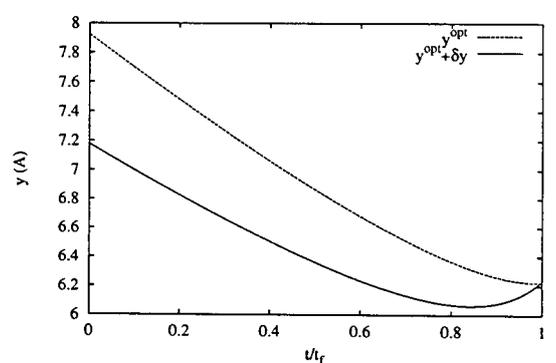


Figure 4.62: Sortie de référence et sortie optimale.

deux types de régulateurs. La régulation classique ne considère, en effet, aucune contrainte. Les profils de l'état x_2 des figures 4.51 et 4.58 sont d'ailleurs assez similaires.

La figure 4.59 décrit les corrections de la commande calculées par le régulateur. L'ordre de grandeur des corrections calculées par le régulateur semble raisonnable. La figure 4.60 indique d'ailleurs que la contrainte $u \in \mathcal{U}$ est *a posteriori* satisfaite. Paradoxalement, la comparaison des corrections de la commande des figures 4.53 et 4.60, montre que les corrections les plus fortes de $u(t)$ sont obtenues pour la régulation *classique* qui, par définition, minimise ces corrections.

Dans un cas pratique les perturbations traduisent des écarts de mesure, la figure 4.61 montre les écarts de la sortie provoqués par les perturbations sur l'état. Les perturbations de l'état initial correspondent à une perturbation de la sortie (l'intensité) de l'ordre de 1 A. Les conditions d'utilisation du régulateur sont donc physiquement réalistes. La figure 4.62 confirme d'autre part que le comportement optimal du système régulé après une déviation ne consiste pas à retourner sur le profil de référence en boucle ouverte comme c'est le cas pour une régulation *classique* (figure 4.48). L'écart ainsi observé entre la sortie de référence et la sortie régulée illustre la non-optimalité du régulateur en poursuite classique qui tend à ramener le système sur la consigne au plus vite.

L'optimalité exprimée sous une forme plus quantitative est illustrée par les valeurs du critère et de la contrainte obtenue en boucle fermée. Ces valeurs sont comparées à celles en boucle ouverte dans le tableau 4.8. Elles peuvent également être comparées à celles du tableau 4.7, obtenues dans le cas de la régulation *classique*.

Régulation	Contrainte	Critère
	$x_1(1)$	$x_2(1)$
optimale	0.2000	0.3974
b. ouverte	0.2000	0.3901

Tableau 4.8: Optimalité des trajectoires régulées.

Ces valeurs montrent l'optimalité de la commande optimale en boucle fermée par rapport à la commande classique de type PID. Cette optimalité n'est ici que numérique (théorique) et ne traduit en aucun cas une réalité expérimentale mais elle mérite d'être soulignée.

Série de perturbations de l'état Les figures 4.63 à 4.68 illustrent la réponse du système de régulation optimale lorsque l'état est supposé mesurable et subit des perturbations aux instants $\tau = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$, d'amplitude $\delta \mathbf{x}^T = (0.02 \quad -0.05)$. Les figures 4.63, 4.65 et 4.67 présentent les résultats sous forme d'écarts et les figures 4.64, 4.66 et 4.68 présentent les profils des variables correspondantes.

La présence de plusieurs perturbations sur l'état n'altère pas la capacité du régulateur à satisfaire la contrainte terminale sur x_1 comme le montrent les figures 4.63 et 4.64. Les déviations générées engendrent des erreurs sur la sortie de l'ordre de 0.5 Ampère et les corrections du régulateur présentées sur la figure 4.65 restent assez proches de la trajectoire optimale de référence. La validité de la linéarisation ne peut cependant pas être garantie.

Régulation optimale: Réponse à une série de perturbations sur l'état.

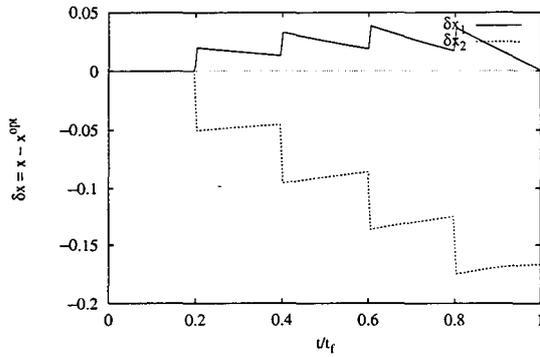


Figure 4.63: Écarts des états.

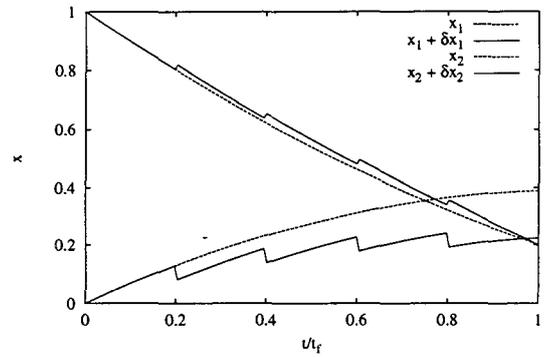


Figure 4.64: État de référence et état régulé.

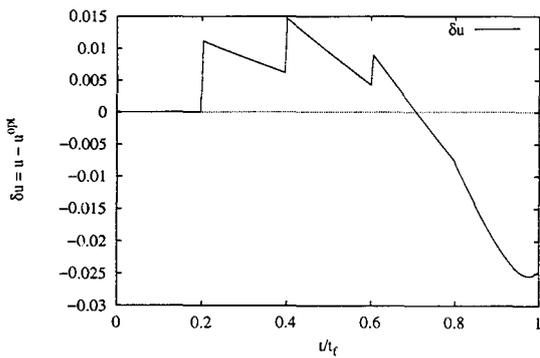


Figure 4.65: Écart de commande.

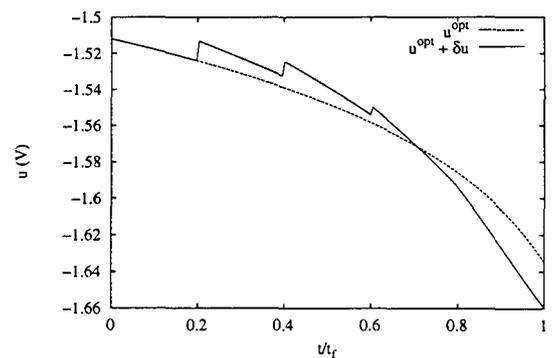


Figure 4.66: Commande de référence et commande optimale.

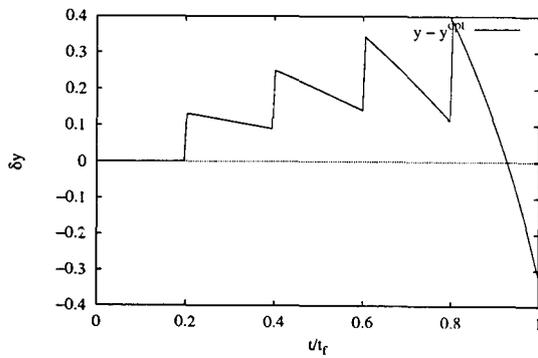


Figure 4.67: Écart de sortie.

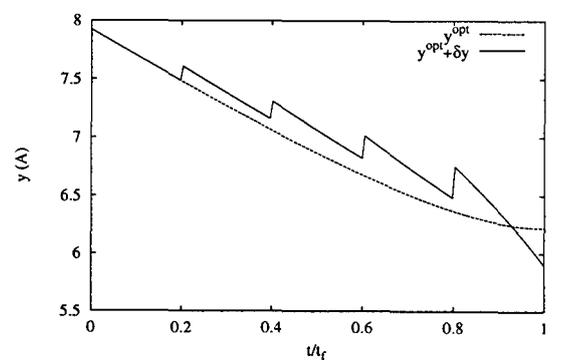


Figure 4.68: Sortie de référence et sortie optimale.

La comparaison de ces profils avec ceux présentés sur les figures 4.50 à 4.55 conduit aux remarques suivantes :

- Critère :

Les critères obtenus dans les deux cas sont identiques. Cela conduit à mettre les deux régulateurs dans une même gamme de performance. La construction du régulateur classique est conceptuellement proche du régulateur de type PI ou PID. On peut donc penser que du point de vue du critère, ces trois types de régulation sont équivalents.

Dans les conditions de perturbations choisies, on constate d'autre part que le critère réglé perd 30% de sa valeur en boucle ouverte. Ce résultat peut être inquiétant s'il est mis en parallèle avec les améliorations (maximales) de 25% entre le fonctionnement potentiostatique et dynamique du système. Les conditions de perturbations sont cependant des conditions *de principe* et elles ne sont choisies que pour mettre en évidence les différences entre les deux types de régulation. Il faut donc donner aux résultats une interprétation plus qualitative que quantitative.

- Contrainte :

La satisfaction de la contrainte est la plus grande différence entre les deux régulations. Cette contrainte peut toutefois être déterminante dans les objectifs de production et peut donc être un atout majeur de la commande optimale. De plus, notre étude montre que l'amélioration entre fonctionnement statique et dynamique est très sensible à cette contrainte.

La non satisfaction de cette contrainte dans le cas du régulateur classique traduit ainsi une forte "non-optimalité" du fonctionnement par rapport aux objectifs fixés.

- Commande :

En plus du paradoxe sur les amplitudes des corrections entre les deux modes de régulation, les profils de commande montrent des comportements antagonistes à la suite de perturbations pourtant identiques du système. Cet antagonisme traduit également la non-optimalité de la régulation classique qui consiste à revenir sur la trajectoire optimale.

L'étude des deux modes de régulation dans ce fonctionnement permet de souligner les principaux points communs et les principales différences entre ces deux dernières. Elle met aussi en évidence leurs limites.

D'une part, elles sont basées sur une linéarisation autour de la trajectoire optimale. Cette linéarisation est en soi une limite car dans la pratique, l'accumulation des perturbations écarte forcément le système de sa référence. Ceci est d'autant plus vrai pour la régulation optimale qui n'est pas définie pour rester dans ce voisinage. La notion de commande prédictive apparaît à ce niveau comme indispensable pour que le fonctionnement linéaire reste représentatif.

D'autre part, les performances dépendent de la précision avec laquelle on connaît les états. On constate ainsi que même lorsque l'état est "mesurable", les performances des deux types de régulateur peuvent être altérées par le mode de fonctionnement. La section suivante présente les résultats de la régulation optimale lorsque l'état est reconstruit à partir des mesures de la sortie et illustre ainsi un mode de régulation réaliste.

Commande optimale avec observateur d'état

Les performances de l'observateur d'état ont été décrites dans la partie 4.2 et celles du régulateur dans la section précédente. La dernière opération avant la mise en oeuvre expérimentale consiste à étudier le comportement du système constitué du réacteur électrochimique, de l'observateur d'état et du régulateur optimal.

Les perturbations externes sont représentées par des perturbations sur la sortie en forme de créneau caractérisé par un instant d'activation, un instant de désactivation et une amplitude donnés dans le tableau 4.9.

Instant d'Activation	Instant de Désactivation	Amplitude (A)
0.25	0.50	0.2

Tableau 4.9: Paramètres de perturbation de la sortie.

L'analyse des résultats de ce schéma de commande est délicate car ces derniers traduisent l'influence de la régulation et de l'observation. Il est donc nécessaire de distinguer les deux modules en différenciant les grandeurs et déviations spécifiques à chacun des modules.

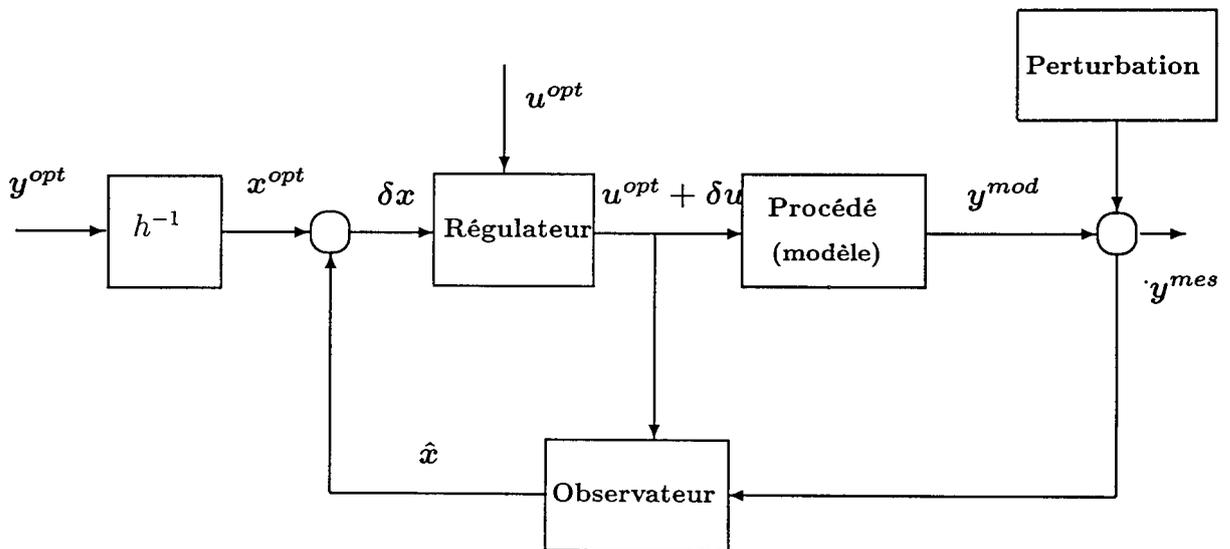


Figure 4.69: Schéma de régulation optimale avec observateur d'état

La figure 4.69 présente le schéma du procédé associé à la régulation et à l'observation. Les exposants des différentes variables ont la signification suivante :

mod grandeurs du modèle représentant le procédé sans perturbation

mes grandeurs perturbées du modèle représentant le procédé

opt grandeurs optimales en boucle ouverte

kf (ou $\hat{}$) grandeurs associées au filtre de Kalman

Ainsi, dans le cas de l'observateur, la variable d'écart correspond à la déviation entre la grandeur reconstruite et la grandeur modélisée. La variable d'écart pour le système de régulation correspond à la déviation entre la grandeur observée et la grandeur optimale en boucle ouverte.

Deux cas sont présentés. Dans un premier temps, on considère la réponse du système de commande, en absence d'erreur d'estimation sur l'état initial. Dans un second temps, on considère le même système où l'estimation de l'état initial observé est inexacte dans des conditions indiquées dans le tableau 4.10

État	réel	observateur
x_1	1.0	0.90
x_2	0.0	0.05

Tableau 4.10: Initialisation de l'observateur.

Estimation exacte de l'état initial La faible convergence de l'observateur d'état est une limitation à la mise en oeuvre de la commande en boucle fermée. Le système de régulation est donc testé dans des conditions où l'erreur due à l'observation est la plus faible possible. Ces conditions correspondent au cas où l'estimation de l'état à l'instant initial est exacte. Ces conditions idéales ne sont cependant pas totalement irréalistes car les concentrations initiales peuvent être mesurées hors-ligne avec précision.

Les figures 4.70 à 4.75 présentent les résultats concernant les grandeurs qui caractérisent les qualités de l'observation. Les qualités de la régulation sont illustrées sur les figures 4.76 à 4.81.

On vérifie sur toutes ces figures, qu'en absence d'erreur sur l'estimation et en absence de perturbation (dans le premier quart de l'opération), l'observateur et le régulateur ne font aucune correction de l'estimation ou de la commande.

Les faibles performances de l'observateur sont mises en évidence sur les figures 4.70 et 4.72. L'erreur de mesure de la sortie est en effet très rapidement exploitée par le filtre de Kalman comme l'indique la convergence vers 0 de l'écart entre la sortie reconstruite sur la base des états estimés et la sortie réelle du système. En terme de reconstruction des états x_1 et x_2 , on constate en revanche que cette rapide convergence sur y ne se traduit pas par la même convergence pour l'estimation de x_1 et qu'elle se traduit au contraire par une convergence très lente de l'estimation de x_2 . Lorsque la perturbation cesse, on constate que la convergence du filtre en terme de sortie y est toujours très rapide et que l'observation des deux états présente une faible convergence.

Les figures 4.70, 4.72 relativisent cependant ce résultat en montrant l'ampleur des erreurs d'estimation par rapport aux valeurs estimées.

Les qualités de la commande sont plus délicates à commenter. Les perturbations écartent le système de la trajectoire optimale en boucle ouverte. Le régulateur est conçu pour optimiser le critère à partir du nouvel état estimé à partir de l'état optimal et des écarts. Cependant, l'observation fournit au régulateur des informations approximatives concernant les écarts. Les résultats de la section précédente, permettent cependant d'affirmer que le fonctionnement de la régulation est *a priori* correct même si l'analyse des résultats

Commande optimale en boucle fermée: Grandeurs de l'observation

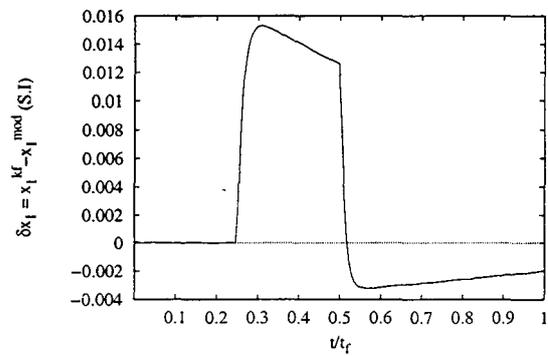


Figure 4.70: Observation: Déviation de l'état x_1 .

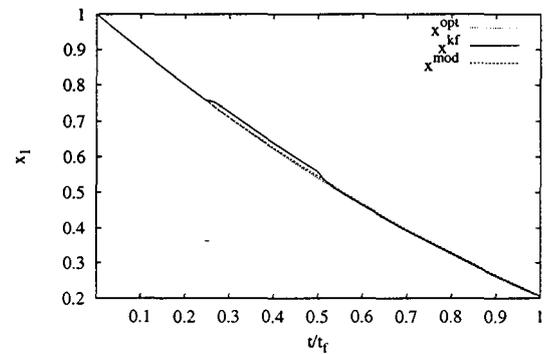


Figure 4.71: État x_1 optimal, modélisé et reconstruit.

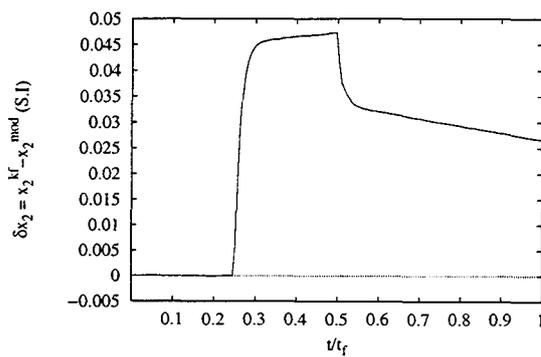


Figure 4.72: Observation: Déviation de l'état x_2 .

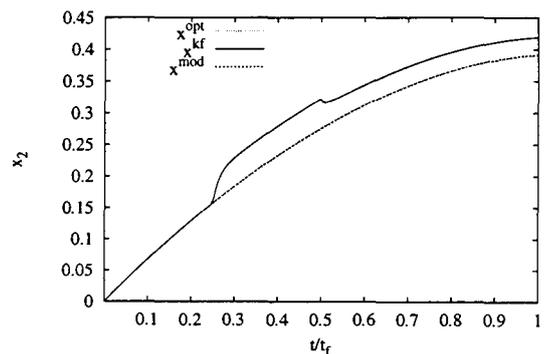


Figure 4.73: État x_2 optimal, modélisé et reconstruit.

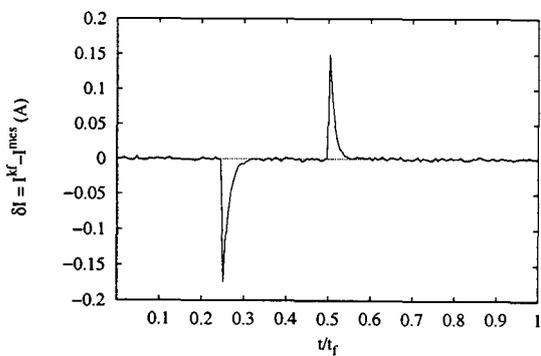


Figure 4.74: Observation: Déviation de la sortie y .

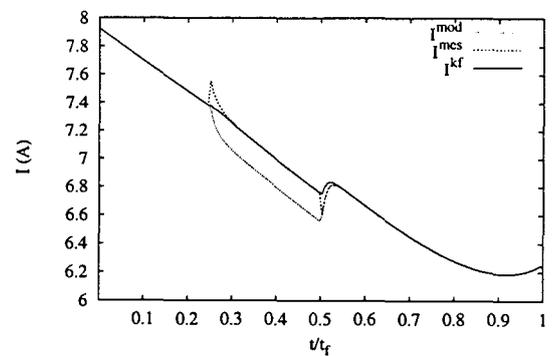


Figure 4.75: Sortie y optimale, modélisée et reconstruite.

Commande optimale en boucle fermée: Grandeurs de régulation

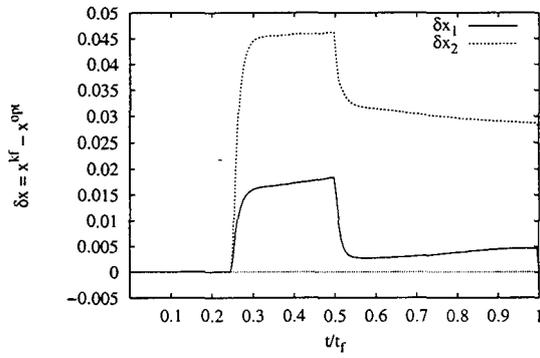


Figure 4.76: Régulation: Déviation de l'état x .

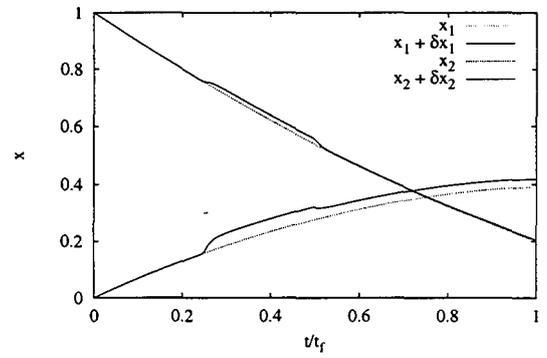


Figure 4.77: États x optimaux et régulés.

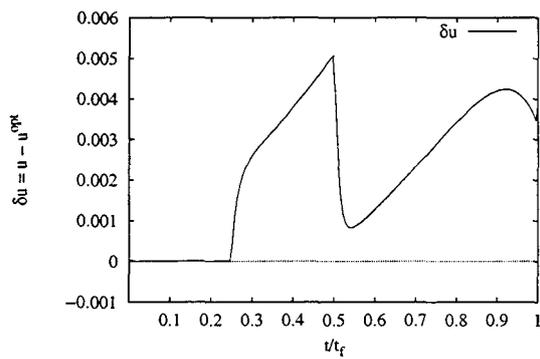


Figure 4.78: Régulation: Correction de la commande y .

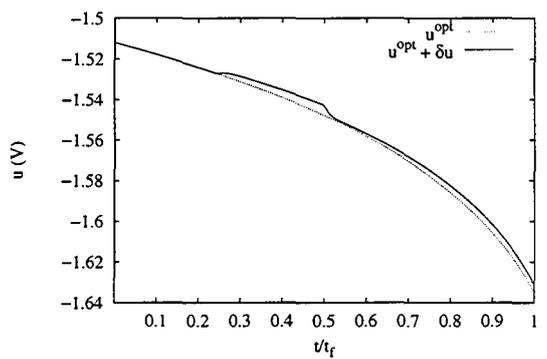


Figure 4.79: Commande optimale et régulée.

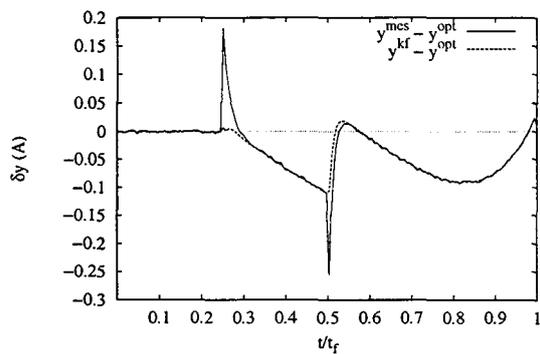


Figure 4.80: Régulation: Déviation de la sortie y .

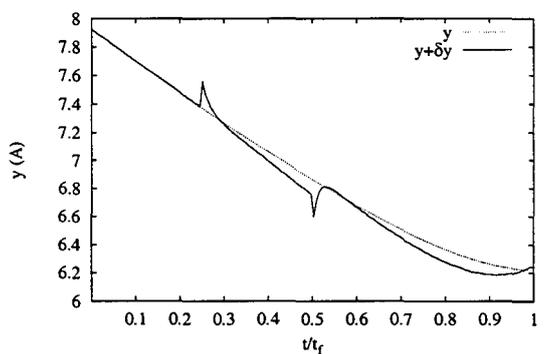


Figure 4.81: Sortie y optimale et régulée.

de la régulation n'est pas, dans le cas présent, aussi explicite. Les profils des variables d'état régulées décrits sur la figure 4.77, indiquent toutefois que les écarts à l'optimalité sont relativement faibles malgré les pauvres performances de l'observateur.

Estimation inexacte de l'état initial La simulation du système de commande optimale en présence d'erreur d'estimation de l'état initial conduit aux figures 4.82 à 4.93. Le système peut être décomposé en trois phases.

- (i) $\tau \in [0 \quad 0.25]$: le système n'est soumis à aucune perturbation extérieure mais ou le filtre de Kalman corrige l'erreur d'estimation de l'état initial.
- (ii) $\tau \in [0.25 \quad 0.5]$: le système est soumis à une perturbation sur la sortie y d'amplitude 0.2 A qui se superpose à l'erreur observée.
- (iii) $\tau \in [0.5 \quad 1.0]$: la perturbation sur la sortie y cesse.

La faible convergence de l'observateur d'état est soulignée sur les figures 4.82 et 4.84. Pendant les trois phases de l'opération, la dynamique du filtre de Kalman n'est pas assez rapide pour que celui-ci fournisse une estimation correcte des états. Le régulateur corrige ainsi le potentiel (fig. 4.90) sur la base d'informations inexactes. Le profil 4.88 illustre le comportement complexe du système régulé, mais son exploitation est délicate. Il est en effet le résultat de l'accumulation d'erreur de l'observateur et d'une commande optimale erronée.

La dépendance du régulateur et de l'observateur est plus facilement interprétable sur la figure 4.87 qui représente le profil de la sortie (intensité) modélisée (mod), mesurée (mes) et estimée (kf) à partir des états estimés \hat{x} . Le profil de l'intensité en boucle ouverte n'est pas présenté sur cette figure même s'il constitue une quatrième trajectoire distincte. Phase (i): pendant les premières secondes, la sortie présente une brusque variation. Cette courte période correspond à la correction de l'erreur d'estimation apportée par le filtre de Kalman. Le régulateur agit ensuite pour corriger les écarts entre les états reconstruits par le filtre et les états optimaux (en boucle ouverte). Phase (ii): la sortie du système est ensuite perturbée, le profil du courant mesuré présente une brusque variation positive. L'observateur tend à réduire l'écart entre l'état réel et l'état estimé sur la base de l'information mesurée (sortie). Il est donc cohérent que la sortie estimée converge vers la sortie mesurée. Simultanément, le régulateur tend à maintenir le système dans des conditions optimales au regard de l'écart qui existe entre l'état estimé et l'état optimal en boucle ouverte. La conséquence de la régulation est clairement décrite par le profil de la sortie modélisée qui présente un changement qui s'oppose à la perturbation. Phase (iii): la transition basse de la perturbation de la sortie met en évidence le même type de phénomène pour l'observation et la régulation.

Les écarts relatifs relevés entre les états réels du procédé et les états estimés sont cependant nettement plus importants que dans le cas où l'observateur est correctement initialisé. Ces écarts, présents dès le début de l'opération, engendrent une correction de la commande qui éloigne d'une manière significative le système de son fonctionnement optimal en boucle ouverte. Les performances de la régulation optimale sont donc fortement compromises dans un tel cas. La régulation optimale n'est pas en cause mais il convient d'apporter une attention particulière à l'observation pour exploiter au mieux les qualités de ce type de régulation.

Commande optimale en boucle fermée : Grandeurs de l'observation

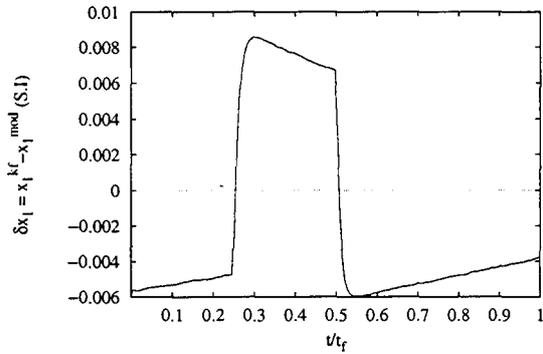


Figure 4.82: Observation: Déviation de l'état x_1 .

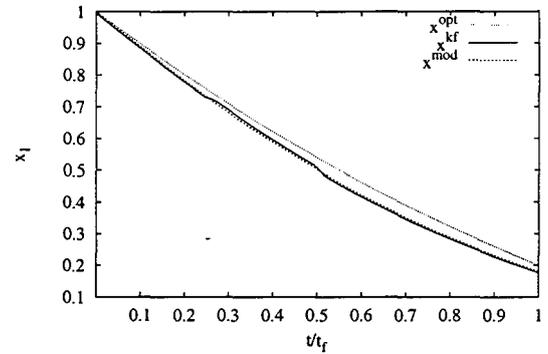


Figure 4.83: État x_1 optimal, modélisé et reconstruit.

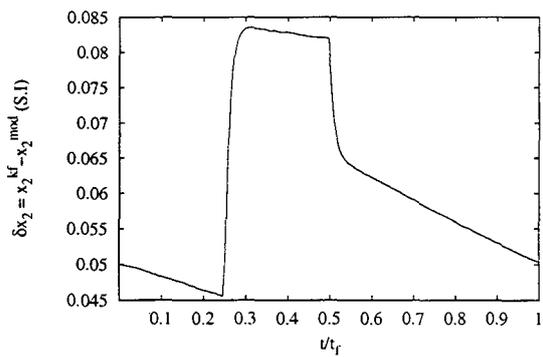


Figure 4.84: Observation: Déviation de l'état x_2 .

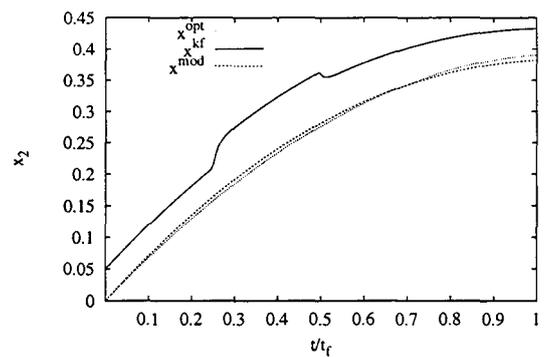


Figure 4.85: État x_2 optimal, modélisé et reconstruit.

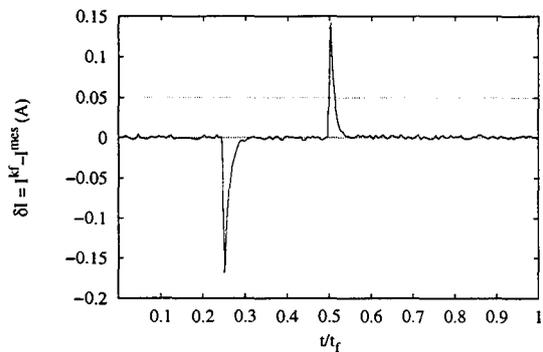


Figure 4.86: Observation: Déviation de la sortie y .

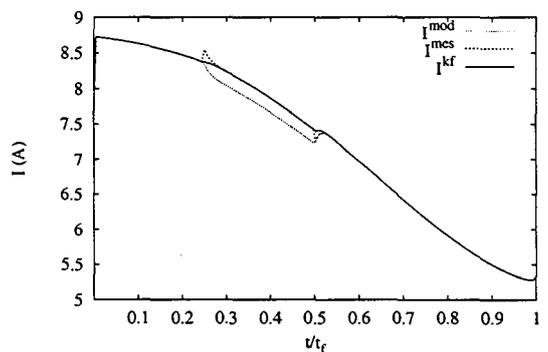


Figure 4.87: Sortie y optimale, modélisée et reconstruite.

Commande optimale en boucle fermée : Grandeurs de régulation

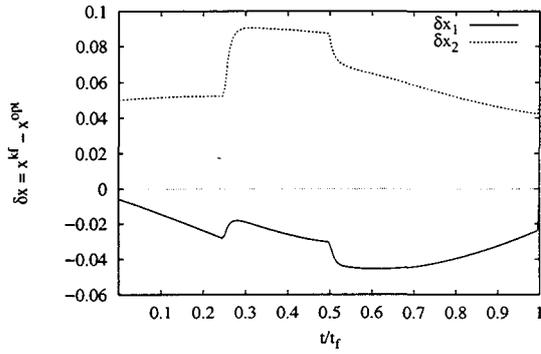


Figure 4.88: Régulation : Déviation de l'état x .

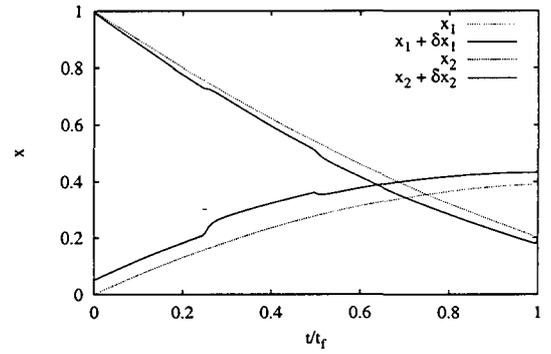


Figure 4.89: États x optimaux et régulés.

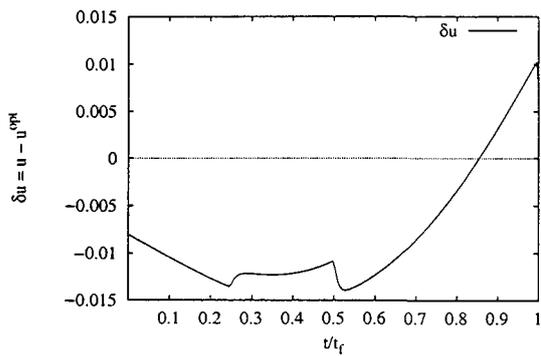


Figure 4.90: Régulation : Correction de la commande y .

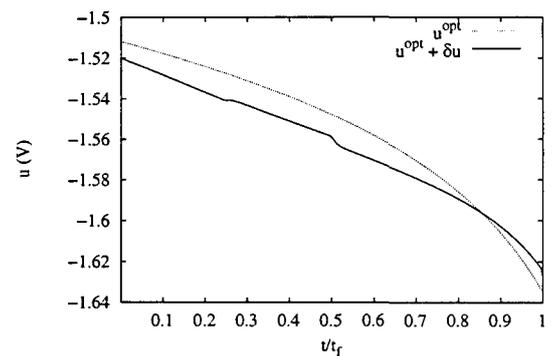


Figure 4.91: Commande optimale et régulée.

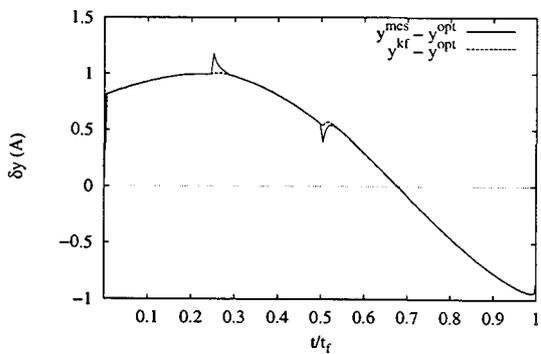


Figure 4.92: Régulation : Déviation de la sortie y .

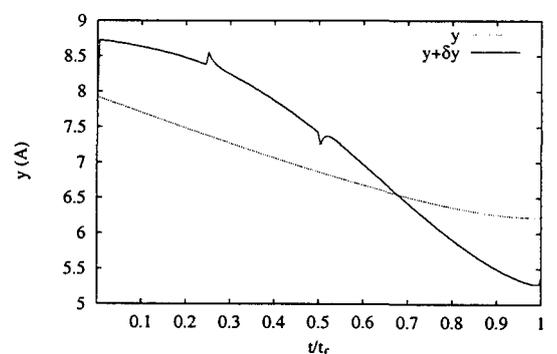


Figure 4.93: Sortie y optimale et régulée.

4.3.9 Conclusions

Dans cette étude, deux types de loi de commande en boucle fermée ont été définies.

- La première est une loi relativement classique. Elle consiste à minimiser les écarts entre la trajectoire optimale de référence et la trajectoire opératoire. Elle propose ainsi, en cas de perturbations, de revenir au plus vite sur la trajectoire optimale de référence et ne peut donc être optimale au sens propre du critère.
- La seconde correspond à la commande optimale en boucle fermée. Elle consiste, en cas de perturbations, à déterminer la nouvelle trajectoire qui optimise le critère. Cette résolution est basée sur la forme linéarisée du système pour simplifier la résolution du problème.

L'étude de la commande optimale en boucle fermée montre ainsi qu'en théorie, cette dernière se distingue très nettement de la commande classique. Dans la pratique, l'utilisation de ce type de régulateur simple permet d'atteindre un objectif (critère) équivalent à celui atteint avec la commande optimale. La présence de contraintes interdit cependant l'utilisation de ces régulateurs simples. D'autre part, les qualités de la commande optimale sont dégénérées par les faibles performances de l'observateur d'état. Dans le cas présent, il est indispensable d'ajouter une mesure sur le système afin d'estimer plus correctement ces états avant d'envisager la mise en oeuvre de la commande en boucle fermée.

Chapitre 5

Conclusions

Cette étude a présenté une méthodologie de l'optimisation dynamique et de la commande optimale des procédés électrochimiques. Cette méthodologie a été appliquée à plusieurs problèmes mais l'étude du problème de la maximisation de la concentration de B dans un schéma réactionnel $A \rightleftharpoons B \rightleftharpoons D$ a été plus approfondie.

L'étude des méthodes d'optimisation dynamique et des différentes techniques de résolution a permis de montrer les caractéristiques spécifiques de celles-ci.

Le Principe du Maximum et les techniques basées sur ce principe se sont révélées des méthodes parfaitement adaptées à l'optimisation du fonctionnement dynamique des procédés électrochimiques. Les techniques de résolution ont en effet conduit à des solutions dont l'optimalité a été vérifiée. Parmi les propriétés importantes, on retiendra les suivantes. La simplicité de mise en oeuvre des techniques est souvent compensée par des temps de calculs rédhitoires pour leur résolution (BCI, IDP). Certains temps de calcul (CVI, CVP, Collocation) permettent toutefois d'envisager une détermination *en ligne* des conditions optimales de fonctionnement. L'adaptabilité de la méthode à la prise en compte d'un nouveau modèle ou d'un nouveau critère est un atout de la méthode de programmation dynamique mais une lacune des méthodes fondées sur le Principe du Maximum. La prise en compte des contraintes est un paramètre essentiel dans le choix de la technique de résolution. D'une manière générale, les contraintes ne sont facilement prises en compte que par des méthodes où la solution du problème est partiellement ou complètement paramétrée. On exploite alors les performances des techniques de programmation non-linéaire dans ce domaine.

En intégrant au problème des contraintes d'origine physique, les méthodes d'optimisation dynamique fournissent des conditions optimales de fonctionnement réalistes. Les performances des procédés dans ces conditions optimisées ont été comparées à celles issues des meilleurs modes de fonctionnement industriel. L'influence des principaux paramètres du modèle sur les conditions optimales de fonctionnement a été étudiée. Elle montre que sous certaines conditions opératoires, il n'est pas toujours nécessaire de recourir à l'optimisation dynamique, le meilleur fonctionnement statique permettant d'atteindre des performances optimales. Cependant, dans certaines conditions opératoires industriellement réalistes, les améliorations relatives de critères tels que la production ou le temps opératoire se sont révélées très prometteuses en dépassant plusieurs dizaines de pourcent.

L'analyse de la sensibilité des critères étudiés et de la variable de commande a montré la validité des améliorations précédemment décrites en cas d'erreur sur les paramètres du modèle. Elle a confirmé l'extrême sensibilité de ces grandeurs aux coefficients énergétiques qui interviennent dans les relations cinétiques du modèle et, dans une moindre mesure, la

sensibilité aux facteurs de fréquence des relations cinétiques, aux coefficients de transfert de matière. L'analyse de la sensibilité de la commande optimale montre pour sa part que ces mêmes paramètres sont les plus influents en fin d'opération. L'analyse de la sensibilité des trajectoires optimales de l'état du système a également permis de déterminer, pour chaque variable d'état, les périodes où leur "mesure" est la plus influente.

La mise au point d'un schéma de commande optimale en boucle fermée nécessite, dans les cas étudiés, l'estimation des états du système à partir des mesures de ses sorties. Trois types d'observateurs ont été proposés mais aucun d'entre eux n'est assez performant pour reconstruire rapidement la totalité des états. Cette défaillance est due à une mauvaise "observabilité" et impose de reconsidérer les sorties du système afin d'obtenir une information suffisamment consistante.

Une loi de commande optimale en boucle fermée est présentée. Elle consiste, en cas de déviation du système, à recalculer une loi de commande optimale en utilisant une forme linéarisée. Cette loi est optimale dans le sens où les corrections calculées minimisent le critère et satisfont les contraintes du problème. Son principe et ses performances sont comparées à celles d'une loi de commande plus classique basée sur la minimisation des déviations de la sortie par rapport à la sortie de référence (sortie optimale calculée en boucle ouverte). Les performances de la commande optimale sont indéniables. Elles sont cependant altérées par l'imprécision, liée aux observateurs, des états estimés.

Perspectives

La première perspective de ces travaux consiste naturellement à mettre en oeuvre expérimentalement tous ces résultats. Cette validation expérimentale n'a en effet pas pu être réalisée en raison de la vaste étendue des problèmes que soulève l'optimisation dynamique. La longueur de ce mémoire est peut-être une illustration de cette étendue. Les précautions prises en ce qui concerne la validité des résultats optimaux, leur validité en cas d'erreur et les précisions des techniques d'observation et de commande envisagées montrent le souci permanent de maintenir ces résultats numériques dans un contexte pratique.

Les conclusions quant à l'observabilité du système étudié montrent que cette validation ne sera possible qu'après reconsidération des sorties mesurées du systèmes. Il semble en effet qu'une mesure complémentaire (pH, tension de cellule, température, ...) soit nécessaire pour construire un observateur d'état fiable.

Du point de vue de l'optimisation dynamique, le champ de recherche de techniques de résolution de ces problèmes est encore aujourd'hui assez large.

D'une manière générale, les problèmes de l'optimisation de variables dont la signification est temporelle restent une voie à prospecter. Plusieurs points de cette étude sur ce sujet sont encore incomplets. La paramétrisation abordée dans notre étude est basée sur une équi-répartition des plateaux de commande. Des essais d'optimisation du niveau de ces plateaux et simultanément de leurs longueurs (durée) ont été réalisés. Ils n'ont pas été présentés en raison du manque de garantie concernant la validité, l'optimalité des résultats obtenus. Ce type d'approximation permettrait cependant d'atteindre avec un nombre de paramètres très réduit des solutions dont l'optimalité serait proche de celle des solutions exactes (continues) du problème.

Cette étude a également permis de montrer ce que l'optimisation dynamique peut apporter dans l'amélioration du fonctionnement des procédés électrochimiques. Les schémas réactionnels considérés sont volontairement restés simples mais il convient naturellement

d'appliquer cette méthodologie à des systèmes réactionnels plus importants comme les systèmes mixtes chimiques/électrochimiques.

Il est également nécessaire d'élargir cette méthodologie à des procédés électrochimiques plus complexes mettant, par exemple, en jeu des phénomènes à paramètres distribués (électrodes volumiques).

Enfin, si cette méthodologie s'est limité aux procédés électrochimiques, l'expérience acquise dans le domaine de l'optimisation dynamique peut être partagée pour l'amélioration du fonctionnement dynamique d'autres procédés industriels.

Bibliographie

- M.T. Asrar et A. S. Moharir. Optimal temperature-time policy for a packed-bed adiabatic reactor using desactivating catalyst. *Comp. & Chem. Eng*, 15(7): 533–537, 1991.
- M.M. Baizer. Prospects for further industrial applications of organic electrosynthesis. *J. Appl. Electrochem.*, 10: 285–290, 1980.
- J. Bakshi et P.S. Fedkiw. Optimal time-varying potential control. *J. Appl. Electrochem.*, 23: 715–721, 1993.
- J. Bakshi et P.S. Fedkiw. Optimal time-varying cell-voltage control of a parallel-plate reactor. *J. Appl. Electrochem.*, 24: 1116–1123, 1994.
- R. Bellman. *Dynamic Programming*. Princeton University Press, 1957.
- L.T. Biegler. Solution of dynamic optimization problems by successive quadratic programming and orthogonal collocation. *Comp. & Chem. Eng*, 8(3/4): 243–248, 1984.
- B. Bojkov, R. Hansel, et R. Luus. Application of direct search optimization to optimal control problems. *Hung. J. Ind. Chem.*, 21: 177–185, 1993.
- B. Bojkov et R. Luus. Application of iterative dynamic programming to time optimal control. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 72: 72–80, 1994a.
- B. Bojkov et R. Luus. Application of iterative dynamic programming to time optimal control. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 72: 72–79, 1994b.
- Bojan Bojkov et Rein Luus. Optimal control of nonlinear systems with unspecified final times. *Chem. Eng. Sci.*, 51(6): 905–919, 1996.
- R. Boudarel, J. Delmas, et P. Guichet. *Commande Optimale des Processus: Méthodes Variationnelles et leurs Applications.*, volume 4. Dunod, Paris, 1969.
- A. E. Bryson et Y. C. Ho. *Applied optimal control*. Hemisphere Publish. Corp., Washington, 1975.
- M. Caracotsios et W.E. Stewart. Sensitivity analysis of initial value problems with mixed ODEs and algebraic equations. *Comp. & Chem. Eng*, 9(4): 359–365, 1985.
- C.T. Chen et C. Hwang. Optimal control computation for differential-algebraic process systems with general constraints. *Chem. Eng. Sci.*, 97: 9–26, 1990.
- J. P. Corriou. *Commande des Procédés*. TEC & DOC. Lavoisier, Paris, 1996.

- J.E. Cuthrell et L.T. Biegler. On the optimization of differential-algebraic process systems. *AIChE J.*, 33(8): 1257–1270, 1987.
- J.E. Cuthrell et L.T. Biegler. Simultaneous optimization and solution methods for batch reactor control profiles. *Comp. & Chem. Eng.*, 13(1/2): 49–62, 1989.
- J. de Morant. *Contrôle en temps minimal des réacteurs chimiques discontinus*. PhD thesis, Université de Rouen, 1992.
- U.M. Diwekar. Unified approach to solving optimal design-control problems in batch distillation. *AIChE J.*, 38(10): 1551–1563, 1992.
- J. W. Eaton et J. B. Rawlings. Feedback control of chemical processes using on-line optimization techniques. *Comp. & Chem. Eng.*, 14(4/5): 469–479, 1990.
- A.H. Evers. Sensitivity analysis in dynamic optimization. *J. Opt. Th. & Appl.*, 32(1): 17–37, 1980.
- M. Fikar, M. A. Latifi, F. Fournier, et Y. Creff. Application of Iterative Dynamic Programming to optimal control of a distillation column. *Can. J. Chem. Eng.*, 1997a. submitted.
- M. Fikar, M. A. Latifi, F. Fournier, et Y. Creff. Optimal control of a distillation column using Iterative Dynamic Programming. Dans *Proceedings 11th Conference Process Control97*, pages 236–240, Tatranske Matliare, 1997b.
- M. Fikar, M. A. Latifi, F. Fournier, et Y. Creff. Control Vector Parametrisation versus Iterative Dynamic Programming in dynamic optimisation of a distillation column. Dans *ESCAPE 8*, Brugges, Belgium, 1998.
- B.A. Finlayson. *The Method of Weighted Residuals and variational principles*. Academic Press, New York, 1972.
- V.M. Fishman et V.V. Biryukov. Kinetic model of secondary metabolite production and its use in computation optimal conditions. *Biotechnol. Bioengng. Symp.*, 4: 647, 1974.
- F. Fournier et M.A. Latifi. Sensitivity analysis of the performance index in optimal control of a batch electrochemical reactor. Dans *Proceedings of the ECCE1*, volume 4, pages 2849–2852, Florence, Italy, 1997.
- F. Fournier et M.A. Latifi. Dynamic optimisation of the selectivity in a batch electrochemical reactor. *Chem. Eng. Comm.*, 1998a.
- F. Fournier et M.A. Latifi. Optimal potential-time programming in batch electrochemical reactors. *J. Appl. Electrochem.*, 1998b.
- P.C. Fu et J.P. Barford. Non-singular optimal control for fed-batch fermentation processes with a differential-algebraic system model. *J. Proc. Cont.*, 29: 211–218, 1974.
- J.P. Gauthier, H. Hammouri, et S. Othman. A simple observer for nonlinear systems. application to bioreactors. *IEEE Trans. AC*, 37: 875–880, 1992.
- A.M. Gibon-Fargeot, H. Hammouri, et F. Celle. Nonlinear observers for chemical reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 49(14): 2287–2300, 1994.

- C. J. Goh et K. L. Teo. Control parameterization : a unified approach to optimal control problems with general constraints. *Automatica*, 24(1): 3–18, 1988.
- F. Gordillo, M. Toro, S. Valero, J. Aracil, et J. Riquelme. Optimal control and sensitivity analysis of an energy demand model. *SAMS*, 23: 177–196, 1996.
- D. Guillaume et P. Rouchon. Observation d'un réacteur électrochimique. CAS, Ecole des Mines de Paris, 1997.
- S. P. Han. Superlinearly convergent variable metric algorithms for general nonlinear programming problems. *Math. Prog.*, 11: 263, 1976.
- S. P. Han. A globally convergent method for general nonlinear programming. *J. Opt. Th. & Appl.*, 22: 297, 1977.
- F. Hartig et F. Keil. Global optimization of quench reactors by iterative dynamic programming. *Hung. J. Ind. Chem.*, 22: 223–238, 1994.
- F. Hartig, F.J. Keil, et R. Luus. Comparison of optimization methods for fed-batch reactors. *Hung. J. Ind. Chem.*, 23: 141–148, 1995.
- G. A. Hicks et W. H. Ray. Approximation methods for optimal control design. *Can. J. Chem. Eng.*, 49: 522–528, 1971.
- J.M. House, J.S. Arora, et T.F. Smith. Comparison of methods for design sensitivity analysis for optimal control of thermal systems. *Opt. Contr. Appl. & Meth.*, 14: 17–37, 1993.
- A. Isidori. *Nonlinear control systems*. Springer Verlag, New York, 3rd edition, 1995.
- D.I. Jones et J.W. Finch. Comparison of optimization algorithms. *Int. J. Contr.*, 40(4): 747–761, 1984.
- R. E. Kalman. New approach to linear filtering and prediction problems. *Trans. ASME, Ser. D. J. Basic Engng*, 82: 35–45, 1960.
- R. E. Kalman et R. S. Bucy. New results in linear filtering and prediction theory. *Trans. ASME, Ser. D. J. Basic Engng*, 83: 95–108, 1961.
- E. Kreindler. On performance sensitivity of optimal control systems. *Int. J. Contr.*, 15 (3): 481–486, 1972.
- M.A. Latifi et F. Fournier. Optimal control of batch electrochemical reactors using iterative dynamic programming. Dans *Proceedings of the ECCE1*, volume 1, pages 704–712, Florence, Italy, 1997.
- M.A. Latifi, S. Risson, et A. Storck. Optimisation énergétique d'un réacteur électrochimique discontinue : Application à l'électrodéposition du cuivre. *Entropie*, 163: 37, 1991.
- M.A. Latifi et A. Storck. Profil temporel optimal du potentiel d'électrode dans un réacteur électrochimique discontinu. *Entropie*, 177: 3–8, 1993.
- E. B. Lee et L. Markus. *Foundations of Optimal Control*. Wiley, 1967.

- E. S. Lee. Optimization by pontryagin's maximum principle on the analog computer. *AIChE J.*, 10(3): 309–315, 1964.
- E. S. Lee. *Quasilinearisation and invariant imbedding*. Academic Press, 1968.
- J. Lee et W.F. Ramirez. Optimal fed-batch control of induced foreign protein production by recombinant bacteria. *AIChE J.*, 40(5): 899–907, 1994.
- J. S. Logsdon. Decomposition strategies for large-scale dynamic optimization problems. *Chem. Eng. Sci.*, 47(4): 851–864, 1992.
- D. G. Luenberger. Observers for multivariable systems. *IEEE Trans. AC*, 11(2): 190–197, 1966.
- D. G. Luenberger. An introduction to observers. *IEEE Trans. AC*, 16(6): 596–602, 1971.
- R. Luus. Application of dynamic programming to high-dimensional nonlinear optimal control problems. *Int. J. Contr.*, 52(1): 239–250, 1990.
- R. Luus. Effect of the choice of final time in optimal control of nonlinear systems. *Can. J. Chem. Eng.*, 69: 144–151, 1991.
- R. Luus. Application of dynamic programming to differential-algebraic process systems. *Comp. & Chem. Eng.*, 17(4): 373–377, 1993a.
- R. Luus. Application of iterative dynamic programming to very high-dimensional systems. *Hung. J. Ind. Chem.*, 21: 243–250, 1993b.
- R. Luus et B. Bojkov. Application of iterative dynamic to time optimal control. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 72(A): 72–80, 1994.
- R. Luus et M. De Tremblay. Optimization of non-steady-state operation of reactors. *Can. J. Chem. Eng.*, 67: 494–502, 1989.
- R. Luus, X. Zhang, F. Hartig, et F.J. Keil. Use of piecewise linear continuous optimal control for time-delay systems. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34: 4136–4139, 1995.
- L.L. Lynn, E.S. Parkin, et R.L. Zahradnik. Near-optimal control by trajectory approximation. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 9(1): 58–63, 1970.
- L.L. Lynn et R.L. Zahradnik. The use of orthogonal polynomials in the near-optimal control of distributed systems by trajectory approximation. *Int. J. Contr.*, 12(6): 1079–1087, 1970.
- E.A. Misawa et J.K. Hedrick. Nonlinear observers. a state-of-the-art survey. *Trans. ASME.*, 111: 334–352, 1989.
- J.M. Modak et H.C. Lim. Feedback optimization of fed-batch fermentation. *Biotechnol. Bioengng*, 30: 528, 1987.
- C.P. Neuman et A. Sen. A suboptimal control algorithm for constrained problems using cubic splines. *Automatica*, 9: 601–613, 1973.
- J. Newman. *Electrochemical systems*. Prentice Hall, New Jersey, 1973.

- M. Nikolaou et V. Manousiouthakis. Sensitivity analysis of optimal control policies for batch processes. *Chem. Eng. Comm.*, 97: 27–45, 1990.
- S.H. Oh et R. Luus. Use of orthogonal collocation method in optimal control problems. *Int. J. Contr.*, 26(5): 657–673, 1977.
- S. Palanki, C. Kravaris, et H. Y. Wang. Synthesis of state feedback laws for end-point optimization in batch processes. *Chem. Eng. Sci.*, 48(1): 135–152, 1993.
- S. Palanki, C. Kravaris, et H. Y. Wang. Optimal feedback control of batch reactors with a state inequality constraint and free terminal time. *Chem. Eng. Sci.*, 49(1): 85–97, 1994.
- D.W. Peterson. On sensitivity in optimal control problems. *J. Opt. Th. & Appl.*, 13(1): 56–73, 1974.
- D. J. Pickett et K. S. Yap. The study of the production of glyoxylic acid by the electrochemical reduction of oxalic acid solutions. *J. Appl. Electrochem.*, 4: 17–23, 1974.
- L.S. Pontryagin. *The Mathematical Theory of Optimal Processes*. Pergamon Press, New York, 1964.
- M. J. D. Powell. *Nonlinear programming 3*, chapter The convergence of variable metric methods for nonlinearly constrained optimization calculations. ed. O.L. Mangasarian, R.R. Meyer and S.M. Robinson, New York, San Francisco, London, academ edition, 1978a.
- M. J. D. Powell. *Numerical Analysis*, volume 630, chapter A fast algorithm for nonlinearly constrained optimization calculations. ed. G.A. Watson, Berlin, 1978b.
- W. H. Ray et J. Szekeley. *Process Optimization*. Wiley & Sons, New York, 1973.
- J.G. Renfro, A.M. Morshedi, et O.A. Asbjornsen. Simultaneous optimization and solution of systems described by differential-algebraic equations. *Comp. & Chem. Eng.*, 11(5): 503–517, 1987.
- D. W. T. Rippin. Simulation of single- and multiproduct batch chemical plants for optimal design and operation. *Comp. & Chem. Eng.*, 7(3): 137–156, 1983.
- K. Schittkowski. On the convergence of a sequential quadratic programming method with an augmented lagrangian line search function. *Math. Operationsforsch. und Statist. Ser. Optimization*, 14(2): 197–216, 1983.
- K. Schittkowski. NLPQL: A FORTRAN subroutine solving constrained nonlinear programming problems. *Annals of Operations Research*, 5: 485–500, 1985.
- K. Scott. Reactor engineering models of complex electrochemical reaction schemes-i: Potentiostatic operation of parallel and series reactions in ideal reactors. *Electrochem. Acta*, 30(2): 235–244, 1985.
- P Seferlis et A.N. Hrymak. Sensitivity analysis for chemical process optimization. *Comp. & Chem. Eng.*, 20(10): 1177–1200, 1996.

- F. Shiraishi, T. Hasegawa, et H. Nagasue. Accuracy of the numerical solution of a Two-Point Boundary Value Problem by the orthogonal collocation method. *J. Chem. Eng. Japan*, 28(3): 316–323, 1995.
- P.K. Shukla et S. Pushpavanam. Parametric sensitivity, runaway and safety in batch reactors: experiments and models. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 33: 3202–3208, 1994.
- D. R. Smith. *Variational Methods in Optimization*. Prentice Hall, 1974.
- A. Storck. LSGC-ENSIC, Nancy, 1989.
- A. Storck et F. Coeuret. *Éléments de génie électrochimique*. TEC. & DOC. Lavoisier, Paris, 1984.
- K. L. Teo, C. J. Goh, et K. H. Wong. *A unified computational approach to optimal control problems*. Wiley & Sons, 1991.
- D. Tieu, W. R. Cluett, et A. Penlidis. Optimization of polymerization reactor operation: Review and case studies with the end-point collocation method. *Polym. Reaction Engng.*, 2(3): 275–313, 1994.
- D. Tieu, W. R. Cluett, et A. Penlidis. A comparison of collocation methods for solving dynamic optimization problems. *Comp. & Chem. Eng*, 19(4): 375–381, 1995.
- I. B. Tjoa et L.T. Biegler. Simultaneous solution and optimization strategies for parameter estimation of differential-algebraic equation systems. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30: 376–385, 1991.
- D. Tondeur et E. Kvaalen. Equipartition of entropy production. an optimality criterion for transfer and separation processes. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 26: 50–56, 1987.
- T.H. Tsang, D.M. Himmelblau, et T.F. Edgar. Optimal control via collocation and non-linear programming. *Int. J. Contr.*, 21(5): 763–768, 1975.
- J. Villadsen et M.L. Michelson. *Solution of differential equation models by polynomial approximation*. Prentice Hall, New Jersey, 1978.
- R.B. Wilson. *A simplicial algorithm for concave programming*. PhD thesis, Graduate School of Business Administration, Harvard University, Boston, 1963.
- K.T. Wong et R. Luus. Time suboptimal feedback control of systems described by linear parabolic partial differential equations. *Opt. Contr. Appl. & Meth.*, 3: 177–185, 1982.

Annexe A

Application du PMP aux différents problèmes d'optimisation

A.1 Problème ABD-CB

L'application des conditions d'optimalité au problème ABD-CB sans contrainte de conversion, présenté à la page 48

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} J &= -x_2(t_f) \\ \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ \mathbf{x}(0) &= (1 \ 0)^T \end{aligned} \tag{A.1}$$

conduit à définir le Hamiltonien :

$$H = \lambda [A(u) \mathbf{x} + B(u)] \tag{A.2}$$

et à résoudre le TPBVP suivant :

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ \dot{\lambda} &= -A^T(u) \lambda \\ 0 &= \lambda \left(\frac{\partial A}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial u} \right) \\ x(t_0) &= (1 \ 0)^T \\ \lambda(t_f) &= (0 \ -1)^T \\ \mathbf{u} &\in [-1.7, -1.0] \end{aligned} \tag{A.3}$$

A.2 Problème AB-ENERG sous contrainte terminale

L'application de ces conditions d'optimalité au problème AB-ENERG de la page 47

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= \int_0^1 [(Z_0 + Z_a + Z_c) u(1-x) + r^* u^2(1-x)^2] dt \\
 \text{soumis à : } \dot{x} &= kt^* u(1-x) \\
 g_c(x, u, Z_c, Z_a) &= 0 \\
 g_a(x, u, Z_a) &= 0 \\
 x(0) &= 1 \\
 x(1) &= 1 \\
 \phi_1(x, u) &= x(1) - x_{1f}
 \end{aligned} \tag{A.4}$$

conduit à résoudre le TPBVP global suivant :

$$\begin{aligned}
 \dot{x} &= kt^* u(1-x) \\
 0 &= g_c(x, u, Z_c, Z_a) \\
 0 &= g_a(x, u, Z_a) \\
 \dot{\lambda} &= -u(Z_0 + Z_a + Z_c) + u(1-x) \frac{\partial [Z_a + Z_c]}{\partial x} - 2r^* u^2(1-x) + \lambda kt^* u \\
 0 &= [Z_0 + Z_a + Z_c] + u \frac{\partial [Z_a + Z_c]}{\partial u} + 2r^* u(1-x) - \lambda kt^* \\
 x(0) &= 1 \\
 0 &= x(1) - x_{1f} \\
 \lambda(1) &= \text{non spécifié} \\
 u &\in [0.0, 1.0]
 \end{aligned} \tag{A.5}$$

Remarque : Les deux contraintes algébriques $g_c = 0$ et $g_a = 0$ ne sont pas considérées comme telles dans la formulation du problème. Elles sont en effet résolues de manière interne lors de l'intégration et de l'optimisation du système.

A.3 Problème ABD-CB sous contrainte terminale

L'application de ces conditions d'optimalité au problème ABD-CB sous contrainte terminale de la page 48

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= -x_2(t_f) \\
 \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= (1 \ 0)^T \\
 \phi_1(\mathbf{x}, u) &= X_{Af} - \frac{(x_{10} - x_1(1))}{x_{10}}
 \end{aligned} \tag{A.6}$$

conduit à définir les Hamiltoniens :

$$H = H_0 + \nu_1 H_1$$

$$\begin{aligned} H_0 &= \lambda_0 [A(u) \mathbf{x} + B(u)] \\ H_1 &= \lambda_1 [A(u) \mathbf{x} + B(u)] \end{aligned}$$

et conduit à résoudre le TPBVP suivant :

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ \dot{\lambda}_0 &= -A^T(u) \lambda_0 \\ \dot{\lambda}_1 &= -A^T(u) \lambda_1 \\ 0 &= \left[\frac{\partial H_0}{\partial u} + \nu_1 \frac{\partial H_1}{\partial u} \right] \\ 0 &= [\lambda_0 + \nu_1 \lambda_1] \left(\frac{\partial A}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial u} \right) \\ \mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \\ x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\ \lambda_0(t_f) &= (0 \ -1)^T \\ \lambda_1(t_f) &= (1 \ 0)^T \end{aligned} \tag{A.7}$$

Il est toutefois possible d'utiliser les variables adjointes λ et H globaux et de résoudre ainsi la superposition des deux systèmes.

Le système précédent s'écrit alors plus classiquement :

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ \dot{\lambda} &= -A^T(u) \lambda \\ 0 &= \frac{\partial H}{\partial u} \\ 0 &= \lambda \left(\frac{\partial A}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial u} \right) \\ \mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \\ x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\ \lambda(t_f) &= (\nu_1 \ -1)^T \end{aligned} \tag{A.8}$$

La présence de la contrainte sur $x_1(t_f)$ se traduit ainsi par la suppression d'une spécification de la condition terminale adjointe correspondante $\lambda(t_f) = (\cdot \ -1)$.

A.4 Problème ABD-CB sous contrainte d'inégalité

On considère le problème ABD-CB complet décrit page 48. Le système est alors soumis à la contrainte d'égalité terminale

$$\phi_1(\mathbf{x}, u) = X_{Af} - \frac{(x_{10} - x_1(t_f))}{x_{10}} = 0 \tag{A.9}$$

et à la contrainte d'inégalité de dimension infinie :

$$\phi_2(\mathbf{x}, u) = u(t) - u_{min} \geq 0 \tag{A.10}$$

La présence de la contrainte complémentaire $\phi_3(\mathbf{x}, u) = u_{max} - u(t) \geq 0$ n'est pas considérée d'une part pour ne pas alourdir l'écriture du système et d'autre part parce qu'elle s'est toujours révélée *a posteriori* inactive sur la solution optimale.

La contrainte terminale n'est pas indispensable ici pour illustrer l'implication de la contrainte d'inégalité dans le PMP mais l'étude du système *ABD* a montré que cette contrainte conduit fréquemment à des solutions optimales où la commande optimale ne satisfait pas ϕ_2 .

La formulation du problème est donc :

$$\begin{aligned} \min_{u(t)} J &= -x_2(t_f) \\ \text{soumis à : } \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\ \mathbf{x}(0) &= (1 \ 0)^T \\ \phi_1(\mathbf{x}, u) &= X_{Af} - \frac{(x_{10} - x_1(t_f))}{x_{10}} \\ \phi_2(\mathbf{x}, u) &= u(t) - u_{min} \geq 0 \end{aligned} \tag{A.11}$$

Dans un premier temps, la contrainte ϕ_2 est écrite sous la forme canonique (2.9).

$$J_2 = \int_{t_0}^{t_f} \min [0, \phi_2]^N dt \tag{A.12}$$

Dans un second temps, le critère intégral est alors transformé en critère terminal :

$$J_2 = x_3(t_f) = 0 \tag{A.13}$$

en définissant l'état x_3 tel que :

$$\dot{x}_3 = \min [0, \phi_2]^N \quad x_3(t_0) = 0 \tag{A.14}$$

Les Hamiltoniens du système sous cette forme s'écrivent ainsi :

$$H_i = \lambda_i [A(u) \mathbf{x} + B(u)] + \lambda_{i,3} \min [0, \phi_2]^N \tag{A.15}$$

Cela conduit à résoudre le TPBVP suivant :

$$\begin{aligned}
\dot{x}_1 &= A_{11}(u) x_1 + A_{12}(u) x_2 + B_1(u) \\
\dot{x}_2 &= A_{21}(u) x_1 + A_{22}(u) x_2 + B_2(u) \\
\dot{x}_3 &= \min [0, \phi_2]^N \\
\dot{\lambda}_{i,1} &= -A_{11}(u)\lambda_{i,1} - A_{21}(u)\lambda_{i,2} \\
\dot{\lambda}_{i,2} &= -A_{12}(u)\lambda_{i,1} - A_{22}(u)\lambda_{i,2} \quad i = 0, 1, 2 \\
\dot{\lambda}_{i,3} &= 0 \\
0 &= \left((\lambda_{0,1} \ \lambda_{0,1})^T + \nu_1(\lambda_{1,1} + \lambda_{1,2})^T + \nu_2(\lambda_{2,1} + \lambda_{2,2})^T \right) \left(\frac{\partial A}{\partial u} (x_1 \ x_2)^T + \frac{\partial B}{\partial u} \right) \\
&\quad + (\lambda_{0,3} + \nu_1 \lambda_{1,3} + \nu_2 \lambda_{2,3}) \frac{\partial}{\partial u} [\min [0, \phi_2]^N] \\
\mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \quad x_3(t_0) = 0 \\
x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\
\lambda_0(t_f) &= (0 \ -1 \ 0)^T \\
\lambda_1(t_f) &= (1 \ 0 \ 0)^T \\
\lambda_2(t_f) &= (0 \ 0 \ 1)^T
\end{aligned} \tag{A.16}$$

Il est toutefois possible d'utiliser les variables adjointes λ et H globaux et de résoudre ainsi la superposition des trois critères.

Le système précédent s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
\dot{x}_1 &= A_{11}(u) x_1 + A_{12}(u) x_2 + B_1(u) \\
\dot{x}_2 &= A_{21}(u) x_1 + A_{22}(u) x_2 + B_2(u) \\
\dot{x}_3 &= \min [0, \phi_2]^N \\
\dot{\lambda}_1 &= -A_{11}(u)\lambda_{i,1} - A_{21}(u)\lambda_{i,2} \\
\dot{\lambda}_2 &= -A_{12}(u)\lambda_{i,1} - A_{22}(u)\lambda_{i,2} \quad i = 0, 1, 2 \\
\dot{\lambda}_3 &= 0 \\
0 &= \lambda_1 \left(\frac{\partial A_{11}}{\partial u} x_1 + \frac{\partial A_{12}}{\partial u} x_2 + \frac{\partial B_1}{\partial u} \right) \\
&\quad + \lambda_2 \left(\frac{\partial A_{12}}{\partial u} x_1 + \frac{\partial A_{22}}{\partial u} x_2 + \frac{\partial B_2}{\partial u} \right) \\
&\quad + \lambda_3 \left(\frac{\partial}{\partial u} [\min [0, \phi_2]^N] \right) \\
\mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \quad x_3(t_0) = 0 \\
x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\
\lambda(t_f) &= (\nu_1 \ -1 \ \nu_2)^T
\end{aligned} \tag{A.17}$$

A.5 Problème ABD-TF

L'application de ces conditions d'optimalité au problème ABD-TF formulé en page 49

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= t_f \\
 \text{soumis à: } \quad \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= (1 \ 0)^T \\
 \phi_1(\mathbf{x}, u) &= X_{Af} - \frac{(x_{10} - x_1(t_f))}{x_{10}} \\
 \phi_2(\mathbf{x}, u) &= x_2(t_f) - x_{2f}
 \end{aligned} \tag{A.18}$$

conduit à définir le Hamiltonien :

$$H = \lambda [A(u) \mathbf{x} + B(u)] \tag{A.19}$$

et à résoudre le TPBVP suivant :

$$\begin{aligned}
 \dot{\mathbf{x}} &= A(u) \mathbf{x} + B(u) \\
 \dot{\boldsymbol{\lambda}} &= -A^T(u) \boldsymbol{\lambda} \\
 0 &= \boldsymbol{\lambda} \left(\frac{\partial A}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial B}{\partial u} \right) \\
 0 &= 1 + \boldsymbol{\lambda} (A(u) \mathbf{x} + B(u)) \\
 \mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \\
 x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\
 0 &= x_2(t_f) - x_{2f} \\
 \boldsymbol{\lambda}(t_f) &= \text{non spécifié}
 \end{aligned} \tag{A.20}$$

A.6 Problème ABD-RDTE

L'application de ces conditions d'optimalité au problème ABD-RDTE de la page 49

$$\begin{aligned}
 \min_{u(t)} J &= - \left[\frac{y_1}{y_1 + y_2} \right]_{t_f} \\
 \text{soumis à: } \quad \dot{\mathbf{x}} &= \bar{A} \mathbf{y} \\
 0 &= \mathbf{y} - \bar{C}(u) \mathbf{x} - \bar{D}(u) \\
 \mathbf{x}(0) &= (1 \ 0)^T \\
 \phi_1(\mathbf{x}, u) &= X_{Af} - \frac{(x_{10} - x_1(t_f))}{x_{10}}
 \end{aligned} \tag{A.21}$$

conduit à définir le Hamiltonien :

$$H = \lambda [\bar{A} \mathbf{y}] + \psi [\mathbf{y} - \bar{C} \mathbf{x} - \bar{D}] \tag{A.22}$$

et à résoudre le TPBVP suivant :

$$\begin{aligned}
 \dot{\mathbf{x}} &= \bar{A} \mathbf{y} \\
 0 &= \mathbf{y} - \bar{C}(u) \mathbf{x} - \bar{D}(u) \\
 \dot{\boldsymbol{\lambda}} &= \bar{C}^T(u) \boldsymbol{\psi} \\
 0 &= \boldsymbol{\psi}^T + \bar{A}^T(u) \boldsymbol{\lambda} \\
 0 &= \boldsymbol{\lambda} \left(\frac{\partial \bar{A}}{\partial u} \mathbf{y} \right) - \boldsymbol{\psi} \left(\frac{\partial \bar{C}}{\partial u} \mathbf{x} + \frac{\partial \bar{D}}{\partial u} \right) \\
 \mathbf{x}(t_0) &= (1 \ 0)^T \\
 x_1(t_f) &= 1 - X_{Af} \\
 \boldsymbol{\lambda}(t_f) &= - \left(\frac{y_2}{(y_1 + y_2)^2} \quad \frac{-y_1}{(y_1 + y_2)^2} \right) C(u)
 \end{aligned} \tag{A.23}$$

La forme algèbro-différentielle est introduite ici dans le but de présenter un exemple d'application des conditions d'optimalité sur ce type de système. Il est cependant évident que ce dernier peut également s'écrire sous sa forme purement différentielle. Les relations algébriques étant explicites, il est d'ailleurs très simple de transformer ce TPBVP algèbro-différentiel en TPBVP différentiel correspondant.

Annexe B

Programmation quadratique successive (SQP)

La technique de programmation quadratique successive est une méthode mise au point dans les années 70 par Han (1976, 1977) et Powell (1978b,a) sur la base des travaux de Wilson (1963). Elle consiste à approximer le problème d'optimisation non-linéaire sous contraintes par un problème d'optimisation quadratique sous contraintes linéaires. Il ne sera fait qu'une brève description de cette méthode qui est utilisée dans notre étude comme un outil.

On considère le problème d'optimisation (statique) non-linéaire sous contraintes :

$$\begin{aligned} \min_{\mathbf{x}} J &= f(\mathbf{x}) \\ \text{soumis à : } g_i(\mathbf{x}) &= 0 & i = 1, m_e \\ g_i(\mathbf{x}) &\geq 0 & i = m_e + 1, m, \dots, 2n \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

et le Lagrangien associé :

$$L(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) = f(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\lambda} g(\mathbf{x}) \quad (\text{B.2})$$

avec $\boldsymbol{\lambda} \in \mathfrak{R}^{m+2n}$.

On pose \mathbf{x}_k le point courant, $\boldsymbol{\lambda}_k$ une estimation du multiplicateur de Lagrange associé à \mathbf{x}_k dans le problème (B.1) et B_k une approximation définie semi-positive (garantissant l'existence d'une solution) du Hessien de L au point \mathbf{x}_k . En linéarisant les contraintes et en minimisant l'approximation quadratique du Lagrangien L , on obtient un sous-problème de la forme :

$$\begin{aligned} \min_{\boldsymbol{\delta x}} \frac{1}{2} \boldsymbol{\delta x}^T B_k \boldsymbol{\delta x} + \nabla f^T(\mathbf{x}_k) \boldsymbol{\delta x} \\ \text{soumis à : } \nabla g_i(\mathbf{x}_k) \boldsymbol{\delta x} + g_i(\mathbf{x}_k) &= 0 & i = 1, m_e \\ \nabla g_i(\mathbf{x}_k) \boldsymbol{\delta x} + g_i(\mathbf{x}_k) &\geq 0 & i = m_e + 1, m \\ \boldsymbol{\delta x} - (\mathbf{x}_k - \mathbf{x}_{min}) &\geq 0 \\ -\boldsymbol{\delta x} - (\mathbf{x}_{max} - \mathbf{x}_k) &\geq 0 \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

La condition d'optimalité de ce sous-problème est donnée par l'annulation du Jacobien de cette approximation quadratique. Cette condition fournit une solution explicite $\boldsymbol{\delta x}_k$.

Elle fournit ainsi une direction de recherche pour atteindre le point \mathbf{x}_{k+1} de l'itération suivante :

$$\mathbf{x}_{k+1} = \mathbf{x}_k + \alpha_k \delta \mathbf{x}_k \quad (\text{B.4})$$

Le rôle du multiplicateur de Lagrange est souvent trop important pour être supposé constant le long de cette direction. Il est donc mis à jour selon :

$$\lambda_{k+1} = \lambda_k + \alpha_k \delta \lambda_k \quad (\text{B.5})$$

$\delta \lambda$ est le vecteur adjoint à $\delta \mathbf{x}$ dans le sous-problème (B.3). α_k est la longueur du pas dans la direction de recherche. Il est choisi pour réduire "suffisamment" une fonction de mérite $\mu(\alpha)$:

$$\mu(\alpha) = \xi(\mathbf{x} + \alpha \delta \mathbf{x}_k, \lambda_k + \alpha_k \delta \lambda_k) \quad (\text{B.6})$$

Le choix de la fonction de mérite ξ est très vaste. Il conduit à un très grand nombre de variantes de la méthode SQP. On peut citer, à titre d'exemple, la fonction de pénalisation exacte :

$$\xi(\mathbf{x}, \lambda) = f(\mathbf{x}) + \sum_{i=1}^{m_e} r_i |g_i(\mathbf{x})| + \sum_{i=m_e+1}^m r_i |\min[0, g_i(\mathbf{x})]| \quad (\text{B.7})$$

ou le Lagrangien augmenté, proposé par Schittkowski (1985) et implanté dans le programme NLPQL (Schittkowski, 1983) :

$$\begin{aligned} \xi(\mathbf{x}, \lambda) = & f(\mathbf{x}) - \sum_{i=1}^{m_e} \left(\lambda_i g_i(\mathbf{x}) - \frac{1}{2} r_i g_i^2(\mathbf{x}) \right) \\ & - \sum_{i=m_e+1}^m \begin{cases} \left(\lambda_i g_i(\mathbf{x}) - \frac{1}{2} r_i g_i^2(\mathbf{x}) \right) & \text{si } g_i(\mathbf{x}) \leq \frac{\lambda_j}{r_j} \\ \frac{\lambda_i^2}{2r_i} & \text{sinon} \end{cases} \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

Annexe C

Dérivées du système électrochimique AB

C.1 Définition du système AB et de ses dérivées

L'équation d'état du système AB est donnée par :

$$\begin{cases} \dot{x} = kt^*u(1-x) & x(t_0) = x_0 & x(t_f) = x_f \\ 0 = g_a(x, u, Z_a) \\ 0 = g_c(x, u, Z_c) \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

où x est l'état (taux de conversion), u la variable de commande (intensité). Z_a et Z_c sont les surtensions anodiques et cathodiques normalisées et k , t^* des constantes.

Les dérivées suivantes sont nécessaires à la résolution des problèmes traités :

$$\frac{\partial Z_a}{\partial x} = -\frac{\left(\frac{\partial g_a}{\partial x}\right)}{\left(\frac{\partial g_a}{\partial Z_a}\right)}; \quad \frac{\partial Z_a}{\partial u} = -\frac{\left(\frac{\partial g_a}{\partial u}\right)}{\left(\frac{\partial g_a}{\partial Z_a}\right)}; \quad \frac{\partial Z_c}{\partial x} = -\frac{\left(\frac{\partial g_c}{\partial x}\right)}{\left(\frac{\partial g_c}{\partial Z_c}\right)}; \quad \frac{\partial Z_c}{\partial u} = -\frac{\left(\frac{\partial g_c}{\partial u}\right)}{\left(\frac{\partial g_c}{\partial Z_c}\right)} \quad (\text{C.2})$$

-À l'anode :

$$g_a(x, u, Z_a) = Z_a - a - b \ln[u(1-x)] \quad (\text{C.3})$$

a et b sont des constantes.

$$\begin{aligned} \frac{\partial Z_a}{\partial x} &= -\frac{b}{(1-x)} \\ \frac{\partial Z_a}{\partial u} &= \frac{b}{u} \\ \frac{\partial^2 Z_a}{\partial x^2} u &= 0 \\ \frac{\partial^2 Z_a}{\partial u^2} &= -\frac{b}{u^2} \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

- À la cathode :

$$g_c(x, u, Z_c) = u(1-x) - \frac{K_A [\exp(\beta Z_c)(1-x) - \exp(-\alpha Z_c)x]}{[1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)]} \quad (\text{C.5})$$

K_A et K_B sont des constantes.

$$\begin{aligned} \frac{\partial Z_c}{\partial x} &= \frac{n_{c11}(x, u, Z_c)}{d_{c1}(x, u, Z_c)} \\ \frac{\partial Z_c}{\partial u} &= \frac{n_{c12}(x, u, Z_c)}{d_{c1}(x, u, Z_c)} \\ \frac{\partial^2 Z_c}{\partial x^2} u &= \frac{n_{c21}(x, u, Z_c)}{d_{c2}(x, u, Z_c)} \\ \frac{\partial^2 Z_c}{\partial u^2} &= \frac{n_{c22}(x, u, Z_c)}{d_{c2}(x, u, Z_c)} \end{aligned} \quad (\text{C.6})$$

Avec les fonctions auxiliaires $n_{c_{ij}}(x, u, Z_c)$ et $d_{c_i}(x, u, Z_c)$:

$$\begin{aligned} n_{c11}(x, u, Z_c) &= u [1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad - K_A [\exp(\beta Z_c) + \exp(-\alpha Z_c)] \\ n_{c12}(x, u, Z_c) &= -(1-x) [1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ d_{c1}(x, u, Z_c) &= u(1-x) [\beta K_A \exp(\beta Z_c) - \alpha K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad - K_A [\beta(1-x) \exp(\beta Z_c) + \alpha x \exp(-\alpha Z_c)] \\ n_{c21}(x, u, Z_c) &= -K_A [1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad [\beta(1-x) \exp(\beta Z_c) + \alpha x \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad + K_A(1-x) [\exp(\beta Z_c) + \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad [\beta K_A \exp(\beta Z_c) - \alpha K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ n_{c22}(x, u, Z_c) &= (1-x)^2 [1 + K_A \exp(\beta Z_c) + K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ &\quad [\beta K_A \exp(\beta Z_c) - \alpha K_B \exp(-\alpha Z_c)] \\ d_{c2}(x, u, Z_c) &= d_{c1}^2(x, u, Z_c) \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

Annexe D

Dérivées du système électrochimique ABD

D.1 Définition du système ABD

L'équation d'état du système ABD est donnée par :

$$\dot{\mathbf{x}} = f(\mathbf{x}, u, \mathbf{p}) = A(u, \mathbf{p}) \mathbf{x} + B(u, \mathbf{p}) \quad (\text{D.1})$$

où $\mathbf{x}^T = (x_1 \ x_2)$ est le vecteur d'état (titre), u la variable de commande (potentiel) et \mathbf{p} un vecteur de paramètres du modèle.

L'intensité du courant est exprimée sous la forme :

$$I = C(u) \mathbf{x} + D(u) \quad (\text{D.2})$$

La matrice $A(u, \mathbf{p})$ et le vecteur $B(u, \mathbf{p})$ sont définis par :

$$\begin{aligned} A &= \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} \\ A_{21} & A_{22} \end{pmatrix} = k^* \begin{pmatrix} a_3 - a_1 & a_3 - a_2 \\ a_1 - b_1 + b_3 - a_3 & a_2 - b_2 + b_3 - a_3 \end{pmatrix} \\ B &= \begin{pmatrix} B_1 \\ B_2 \end{pmatrix} = k^* \begin{pmatrix} -a_3 \\ a_3 - b_3 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

où $k^* = \frac{A_e t f}{V}$.

Le vecteur C et le scalaire D sont définis par :

$$\begin{aligned} C &= \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \end{pmatrix} = A_e C_{T0} F \begin{pmatrix} \nu_1(a_1 - a_3) + \nu_2(b_1 - b_3) \\ \nu_1(a_2 - a_3) + \nu_2(b_2 - b_3) \end{pmatrix} \\ D &= A_e C_{T0} F (\nu_1 a_3 + \nu_2 b_3) \end{aligned} \quad (\text{D.4})$$

Les coefficients $a_i(u, \mathbf{p})$ et $b_i(u, \mathbf{p})$ sont des fonctions non-linéaires de la commande et des paramètres \mathbf{p} intervenant dans les expressions des coefficients cinétiques k_{fi} et k_{bi} et des coefficients de transfert de matière k_{di} :

$$\begin{aligned}
a_1 &= \frac{k_{f1} Y_1 k_{dB}^2}{Z_1} \\
a_2 &= \frac{k_{b1} Y_1 k_{dB}^2 \left(\frac{k_{f2}}{k_{dB} Y_1} - 1 \right)}{Z_1} \\
a_3 &= -\frac{k_{b1} k_{b2} k_{dB}}{Z_1} \\
b_1 &= \frac{k_{f2} a_1}{k_{dB} Y_1} \\
b_2 &= \frac{k_{f2}}{Y_1} \left(\frac{a_2}{k_{dB}} + 1 \right) \\
b_3 &= \frac{k_{f2} a_3 - k_{dB} k_{b2}}{k_{dB} Y_1} \\
X_1 &= 1 + \frac{k_{f1}}{k_{dA}} + \frac{k_{b1}}{k_{dB}} \\
Y_1 &= 1 + \frac{k_{f2}}{k_{dB}} + \frac{k_{b2}}{k_{dD}} \\
Z_1 &= X_1 Y_1 k_{dB}^2 - k_{f2} k_{b1}
\end{aligned} \tag{D.5}$$

Les constantes cinétiques sont données par les expressions :

$$\begin{aligned}
k_{fi} &= k_{fi}^0 \exp \left(-\beta_i \frac{\nu_i F}{RT} u \right) \\
k_{bi} &= k_{bi}^0 \exp \left(\alpha_i \frac{\nu_i F}{RT} u \right)
\end{aligned} \tag{D.6}$$

D.2 Dérivées par rapport à la commande

D.2.1 Dérivées premières

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_1}{\partial u} &= \left(-\frac{\nu_1 F}{RT} \beta_1 \right) \frac{k_{f1}}{k_{dA}} + \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 \right) \frac{k_{b1}}{k_{dB}} \\
\frac{\partial Y_1}{\partial u} &= \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right) \frac{k_{f2}}{k_{dB}} + \left(\frac{\nu_2 F}{RT} \alpha_2 \right) \frac{k_{b2}}{k_{dD}} \\
\frac{\partial Z_1}{\partial u} &= k_{dB}^2 \left[\frac{\partial X_1}{\partial u} Y_1 + \frac{\partial Y_1}{\partial u} X_1 \right] - \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 + \frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 \right) k_{f2} k_{b1}
\end{aligned} \tag{D.7}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial a_1}{\partial u} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[\left(-\frac{\nu_1 F}{RT} \beta_1\right) k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 Z_1 + k_{dB}^2 k_{f1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} Z_1 - k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial a_2}{\partial u} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[\left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 - \frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2\right) k_{dB} k_{b1} k_{f2} Y_1 Z_1 + k_{dB} k_{b1} k_{f2} Z_1 \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} \left[-\left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1\right) k_{dB}^2 k_{b1} Y_1 Z_1 - k_{dB}^2 k_{b1} Z_1 \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} \left[-k_{dB} k_{f2} k_{b1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial u} + k_{dB}^2 k_{b1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial a_3}{\partial u} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[-\left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 + \frac{\nu_2 F}{RT} \alpha_2\right) k_{dB} k_{b1} k_{b2} Z_1 + k_{dB} k_{b1} k_{b2} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right]
\end{aligned} \tag{D.8}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial b_1}{\partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[\left(-\beta_2 \frac{\nu_2 F}{RT}\right) k_{f2} a_1 Y_1 - k_{f2} a_1 \frac{\partial Y_1}{\partial u} + k_{f2} Y_1 \frac{\partial a_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial b_2}{\partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[k_{f2} Y_1 \frac{\partial a_2}{\partial u} - \left(\beta_2 \frac{\nu_2 F}{RT}\right) k_{f2} a_2 Y_1 - \left(\beta_2 \frac{\nu_2 F}{RT}\right) k_{f2} k_{dB} Y_1 \right] \dots \\
&\quad + \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[-k_{f2} a_2 \frac{\partial Y_1}{\partial u} - k_{f2} k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial b_3}{\partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[-\left(\beta_2 \frac{\nu_2 F}{RT}\right) k_{f2} a_3 Y_1 - k_{f2} a_3 \frac{\partial Y_1}{\partial u} + k_{f2} Y_1 \frac{\partial a_3}{\partial u} \right] \dots \\
&\quad + \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[-\left(\alpha_2 \frac{\nu_2 F}{RT}\right) k_{dB} k_{b2} Y_1 + k_{dB} k_{b2} \frac{\partial y_1}{\partial u} \right]
\end{aligned} \tag{D.9}$$

D.2.2 Dérivées secondes

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 X_1}{\partial u^2} &= \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \beta_1\right)^2 \frac{k_{f1}}{k_{dA}} + \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1\right)^2 \frac{k_{b1}}{k_{dB}} \\
\frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} &= \left(\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2\right)^2 \frac{k_{f2}}{k_{dB}} + \left(\frac{\nu_2 F}{RT} \alpha_2\right)^2 \frac{k_{b2}}{k_{dD}} \\
\frac{\partial^2 Z_1}{\partial u^2} &= k_{dB}^2 \left[\frac{\partial^2 X_1}{\partial u^2} Y_1 + 2 \frac{\partial X_1}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} X_1 \right] - \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 + \frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1\right)^2 k_{f2} k_{b1}
\end{aligned} \tag{D.10}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 a_1}{\partial u^2} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[\left(\frac{\nu_1 F}{RT} \beta_1 \right)^2 k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 Z_1 + 2 \left(-\frac{\nu_1 F}{RT} \beta_1 \right) k_{dB}^2 k_{f1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} Z_1 \right. \\
&\quad \left. + k_{dB}^2 k_{f1} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} Z_1 - k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial u^2} - 2 \frac{1}{Z_1} \frac{\partial a_1}{\partial u} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial^2 a_2}{\partial u^2} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[k_{dB} \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 - \frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right)^2 k_{f2} k_{b1} Y_1 Z_1 k_{f2} k_{b1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} Z_1 \right. \\
&\quad + 2 k_{dB} \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 - \frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right) \\
&\quad + k_{dB} k_{f2} k_{b1} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} Z_1 - k_{dB} k_{f2} k_{b1} Y_1 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial u^2} - k_{dB}^2 \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 \right)^2 k_{b1} Y_1 Z_1 \\
&\quad - 2 k_{dB}^2 \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 \right) k_{b1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} Z_1 - k_{dB}^2 k_{b1} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} Z_1 + k_{dB}^2 k_{b1} Y_1 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial u^2} \\
&\quad \left. - 2 \frac{1}{Z_1} \frac{\partial a_2}{\partial u} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right] \quad (D.11) \\
\frac{\partial^2 a_3}{\partial u^2} &= \frac{1}{Z_1^2} \left[-k_{dB} \left(\frac{\nu_1 F}{RT} \alpha_1 + \frac{\nu_2 F}{RT} \alpha_2 \right)^2 k_{b1} k_{b2} Z_1 + k_{dB} k_{b1} k_{b2} \frac{\partial^2 Z_1}{\partial u^2} \right. \\
&\quad \left. - 2 \frac{1}{Z_1} \frac{\partial a_3}{\partial u} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 b_1}{\partial u^2} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[\left(\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right)^2 k_{f2} a_1 Y_1 + 2 \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right) k_{f2} \frac{\partial a_1}{\partial u} Y_1 - k_{f2} a_1 \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} \right. \\
&\quad \left. + k_{f2} \frac{\partial^2 a_1}{\partial u^2} Y_1 - 2 \frac{1}{Y_1} \frac{\partial b_1}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \\
\frac{\partial^2 b_2}{\partial u^2} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[\left(\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right)^2 k_{f2} a_2 Y_1 + 2 \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right) k_{f2} \frac{\partial a_2}{\partial u} Y_1 + k_{f2} \frac{\partial^2 a_2}{\partial u^2} Y_1 \right. \\
&\quad \left. - k_{f2} a_2 \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} + \left(\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right)^2 k_{dB} k_{f2} Y_1 - k_{dB} k_{f2} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} - 2 \frac{1}{Y_1} \frac{\partial b_2}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \quad (D.12) \\
\frac{\partial^2 b_3}{\partial u^2} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1^2} \left[\left(\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right)^2 k_{f2} a_3 Y_1 + 2 \left(-\frac{\nu_2 F}{RT} \beta_2 \right) k_{f2} \frac{\partial a_3}{\partial u} Y_1 + k_{f2} \frac{\partial^2 a_3}{\partial u^2} Y_1 \right. \\
&\quad \left. - k_{f2} a_3 \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} - \left(\frac{\nu_2 F}{RT} \alpha_2 \right)^2 k_{dB} k_{b2} Y_1 + k_{dB} k_{b2} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial u^2} - 2 \frac{1}{Y_1} \frac{\partial b_3}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right]
\end{aligned}$$

D.3 Dérivées par rapport aux paramètres

D.3.1 Calcul des dérivées partielles $\frac{\partial}{\partial p}$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial k_{sens,i}}{\partial p} &= \frac{\partial k_{sens,i}^0}{\partial p} \exp \left(\text{sign} \gamma_i \frac{\nu_i F}{RT} u \right) + \left[\text{sign} \frac{\partial \gamma_i}{\partial p} \frac{\nu_i F}{RT} u \right] k_{sens,i} \\
\text{avec } sens = f &: \gamma_i = \beta_i, \text{ sign} = -1 \\
\text{et } sens = b &: \gamma_i = \alpha_i, \text{ sign} = +1
\end{aligned} \quad (D.13)$$

p	$\frac{\partial X_1}{\partial p}$	$\frac{\partial Y_1}{\partial p}$
k_{dA}	$-\frac{1}{k_{dA}^2} k_{f1}$	0
k_{dB}	$-\frac{1}{k_{dB}^2} k_{b1}$	$-\frac{1}{k_{dB}^2} k_{f2}$
k_{dD}	0	$-\frac{1}{k_{dD}^2} k_{b2}$

(D.14)

p	$\frac{\partial X_1}{\partial p}$	$\frac{\partial Y_1}{\partial p}$
k_{f1}^0	$\frac{1}{k_{dA}} \frac{\partial k_{f1}}{\partial k_{f1}^0}$	0
k_{f2}^0	0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial k_{f2}}{\partial k_{f2}^0}$
k_{b1}^0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial k_{b1}}{\partial k_{b1}^0}$	0
k_{b2}^0	0	$\frac{1}{k_{dD}} \frac{\partial k_{b2}}{\partial k_{b2}^0}$

(D.15)

p	$\frac{\partial X_1}{\partial p}$	$\frac{\partial Y_1}{\partial p}$
β_1	$\frac{1}{k_{dA}} \frac{\partial k_{f1}}{\partial \beta_1}$	0
β_2	0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial k_{f2}}{\partial \beta_2}$
α_1	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial k_{b1}}{\partial \alpha_1}$	0
α_2	0	$\frac{1}{k_{dD}} \frac{\partial k_{b2}}{\partial \alpha_2}$

(D.16)

$$\frac{\partial Z_1}{\partial p} = \frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} [X_1 Y_1] + k_{dB}^2 \left[\frac{\partial X_1}{\partial p} Y_1 + X_1 \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right] - \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} k_{b1} - k_{f2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} \quad (D.17)$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial a_1}{\partial p} &= \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} k_{f1} Y_1 + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial k_{f1}}{\partial p} Y_1 + k_{f1} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right] - \frac{1}{Z_1^2} \left[k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right] \\
\frac{\partial a_2}{\partial p} &= \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} k_{f2} k_{b1} + k_{dB} \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} k_{b1} + \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} k_{f2} \right) \right] - \frac{1}{Z_1^2} \left[k_{dB} k_{f2} k_{b1} \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} Y_1 k_{b1} + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{b1} + \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} Y_1 \right) \right] + \frac{1}{Z_1^2} \left[k_{dB}^2 Y_1 k_{b1} \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right] \\
\frac{\partial a_3}{\partial p} &= -\frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} k_{b1} k_{b2} + k_{dB} \left(\frac{\partial k_{b1}}{\partial p} k_{b2} + \frac{\partial k_{b2}}{\partial p} k_{b1} \right) \right] + \frac{1}{Z_1^2} \left[k_{dB} k_{b1} k_{b2} \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right]
\end{aligned} \tag{D.18}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial b_1}{\partial p} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_1 + \frac{\partial a_1}{\partial p} k_{f2} \right] - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_1 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + \frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{dB} \right) \right] \\
\frac{\partial b_2}{\partial p} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_2 + \frac{\partial a_2}{\partial p} k_{f2} \right] - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_2 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + \frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{dB} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{(Y_1)^2} \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} Y_1 - \frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{f2} \right] \\
\frac{\partial b_3}{\partial p} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_3 + \frac{\partial a_3}{\partial p} k_{f2} \right] - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_3 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + \frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{dB} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{(Y_1)^2} \left[\frac{\partial k_{b2}}{\partial p} Y_1 - \frac{\partial Y_1}{\partial p} k_{b2} \right]
\end{aligned} \tag{D.19}$$

D.3.2 Calcul des dérivées partielles $\frac{\partial^2}{\partial p \partial u}$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 k_{sens,i}}{\partial p \partial u} &= \left[\frac{\partial k_{sens,i}^0}{\partial p} \text{sign } \gamma_i \frac{\nu_i F}{RT} \exp \left(\text{sign } \gamma_i \frac{\nu_i F}{RT} u \right) \right] \\
&\quad + \left[\text{sign } \frac{\partial \gamma_i}{\partial p} \frac{\nu_i F}{RT} \right] k_{sens,i} \\
&\quad + \left[\text{sign } \frac{\partial \gamma_i}{\partial p} \frac{\nu_i F}{RT} u \right] \frac{\partial k_{sens,i}}{\partial u}
\end{aligned} \tag{D.20}$$

avec $sens = f : \gamma_i = \beta_i$, $sign = -1$

et $sens = b : \gamma_i = \alpha_i$, $sign = +1$

p	$\frac{\partial^2 X_1}{\partial p \partial u}$	$\frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u}$
k_{dA}	$-\frac{1}{k_{dA}^2} \frac{\partial k_{f1}}{\partial u}$	0
k_{dB}	$-\frac{1}{k_{dB}^2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u}$	$-\frac{1}{k_{dB}^2} \frac{\partial k_{f2}}{\partial u}$
k_{dD}	0	$-\frac{1}{k_{dD}^2} \frac{\partial k_{b2}}{\partial u}$

(D.21)

p	$\frac{\partial^2 X_1}{\partial p \partial u}$	$\frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u}$
k_{f1}^0	$\frac{1}{k_{dA}} \frac{\partial^2 k_{f1}}{\partial k_{f1}^0 \partial u}$	0
k_{f2}^0	0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial k_{f2}^0 \partial u}$
k_{b1}^0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial k_{b1}^0 \partial u}$	0
k_{b2}^0	0	$\frac{1}{k_{dD}} \frac{\partial^2 k_{b2}}{\partial k_{b2}^0 \partial u}$

(D.22)

p	$\frac{\partial^2 X_1}{\partial p \partial u}$	$\frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u}$
β_1	$\frac{1}{k_{dA}} \frac{\partial^2 k_{f1}}{\partial \beta_1 \partial u}$	0
β_2	0	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial \beta_2 \partial u}$
α_1	$\frac{1}{k_{dB}} \frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial \alpha_1 \partial u}$	0
α_2	0	$\frac{1}{k_{dD}} \frac{\partial^2 k_{b2}}{\partial \alpha_2 \partial u}$

(D.23)

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial p \partial u} &= \frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} \left[\frac{\partial X_1}{\partial u} Y_1 + X_1 \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right] \\
 &+ k_{dB}^2 \left[\frac{\partial^2 X_1}{\partial p \partial u} Y_1 + \frac{\partial X_1}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + \frac{\partial X_1}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial p} + X_1 \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right] \\
 &- \frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} k_{b1} - \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} - \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} - k_{f2} \frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial p \partial u}
 \end{aligned}
 \tag{D.24}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial^2 a_1}{\partial p \partial u} &= \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{f1}}{\partial u} Y_1 + k_{f1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \right. \\
 &\quad \left. + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial^2 k_{f1}}{\partial p \partial u} Y_1 + \frac{\partial k_{f1}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + \frac{\partial k_{f1}}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial p} + k_{f1} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
 &- \frac{1}{Z_1^2} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} k_{f1} Y_1 + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial k_{f1}}{\partial p} Y_1 + k_{f1} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right] \\
 &- \frac{1}{Z_1^2} k_{dB}^2 \left[\frac{\partial k_{f1}}{\partial u} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial p} + k_{f1} \left(\frac{\partial Y_1}{\partial u} \frac{\partial Z_1}{\partial p} + Y_1 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
 &+ \frac{1}{Z_1^3} \left(2 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right) \left[k_{dB}^2 k_{f1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right]
 \end{aligned}
 \tag{D.25}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 a_2}{\partial p \partial u} &= \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial u} k_{b1} + k_{f2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} \right) \right. \\
&\quad \left. + k_{dB} \left(\frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} k_{b1} + \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} + \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} + k_{f2} \frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1^2} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} k_{f2} k_{b1} + k_{dB} \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} k_{b1} + k_{f2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1^2} k_{dB} \left[\frac{\partial^2 Z_1}{\partial p \partial u} k_{f2} k_{b1} + \frac{\partial Z_1}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial u} k_{b1} + k_{f2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^3} \left(2 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right) \left[k_{dB} \frac{\partial Z_1}{\partial p} k_{f2} k_{b1} \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{b1}}{\partial u} Y_1 + k_{b1} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \right. \\
&\quad \left. + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial p \partial u} Y_1 + \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial p} + k_{b1} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \left[\frac{\partial k_{dB}^2}{\partial p} k_{b1} Y_1 + k_{dB}^2 \left(\frac{\partial k_{b1}}{\partial p} Y_1 + k_{b1} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} k_{dB}^2 \left[\frac{\partial k_{b1}}{\partial u} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial p} + k_{b1} \left(\frac{\partial Y_1}{\partial u} \frac{\partial Z_1}{\partial p} + Y_1 \frac{\partial^2 Z_1}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1^3} \left(2 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right) \left[k_{dB}^2 k_{b1} Y_1 \frac{\partial Z_1}{\partial p} \right]
\end{aligned} \tag{D.26}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 a_3}{\partial p \partial u} &= -\frac{1}{Z_1} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{b2}}{\partial u} k_{b1} + k_{b2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} \right) \right. \\
&\quad \left. + k_{dB} \left(\frac{\partial^2 k_{b2}}{\partial p \partial u} k_{b1} + \frac{\partial k_{b2}}{\partial p} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} + \frac{\partial k_{b2}}{\partial u} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} + k_{b2} \frac{\partial^2 k_{b1}}{\partial p \partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} \frac{\partial Z_1}{\partial u} \left[\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} k_{b2} k_{b1} + k_{dB} \left(\frac{\partial k_{b2}}{\partial p} k_{b1} + k_{b2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial p} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Z_1^2} k_{dB} \left[\frac{\partial^2 Z_1}{\partial p \partial u} k_{b2} k_{b1} + \frac{\partial Z_1}{\partial p} \left(\frac{\partial k_{b2}}{\partial u} k_{b1} + k_{b2} \frac{\partial k_{b1}}{\partial u} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{Z_1^3} \left(2 \frac{\partial Z_1}{\partial u} \right) \left[k_{dB} \frac{\partial Z_1}{\partial p} k_{b2} k_{b1} \right]
\end{aligned} \tag{D.27}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 b_1}{\partial p \partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} a_1 + \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial a_1}{\partial u} + \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial a_1}{\partial p} + k_{f2} \frac{\partial^2 a_1}{\partial p \partial u} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left(k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_1 + k_{f2} \frac{\partial a_1}{\partial p} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_1 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + k_{dB} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right) \right. \\
&\quad \left. + \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial u} a_1 + k_{f2} \frac{\partial a_1}{\partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^3} \left(2 k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[k_{f2} a_1 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right]
\end{aligned} \tag{D.28}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 b_2}{\partial p \partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} a_2 + \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial a_2}{\partial u} + \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial a_2}{\partial p} + k_{f2} \frac{\partial^2 a_2}{\partial p \partial u} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left(k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_2 + k_{f2} \frac{\partial a_2}{\partial p} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_2 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + k_{dB} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right) \right. \\
&\quad \quad \left. + \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial u} a_2 + k_{f2} \frac{\partial a_2}{\partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^3} \left(2k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[k_{f2} a_2 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{Y_1^2} \left[\frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} Y_1 + \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} - \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial p} - k_{f2} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right] \\
&\quad - \frac{1}{Y_1^3} \left(2 \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} Y_1 - k_{f2} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right]
\end{aligned} \tag{D.29}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 b_3}{\partial p \partial u} &= \frac{1}{k_{dB} Y_1} \left[\frac{\partial^2 k_{f2}}{\partial p \partial u} a_3 + \frac{\partial k_{f2}}{\partial p} \frac{\partial a_3}{\partial u} + \frac{\partial k_{f2}}{\partial u} \frac{\partial a_3}{\partial p} + k_{f2} \frac{\partial^2 a_3}{\partial p \partial u} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left(k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[\frac{\partial k_{f2}}{\partial p} a_3 + k_{f2} \frac{\partial a_3}{\partial p} \right] \\
&\quad - \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^2} \left[k_{f2} a_3 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} + k_{dB} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right) \right. \\
&\quad \quad \left. + \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \left(\frac{\partial k_{f2}}{\partial u} a_3 + k_{f2} \frac{\partial a_3}{\partial u} \right) \right] \\
&\quad + \frac{1}{(k_{dB} Y_1)^3} \left(2k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[k_{f2} a_3 \left(\frac{\partial k_{dB}}{\partial p} Y_1 + k_{dB} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right) \right] \\
&\quad - \frac{1}{Y_1^2} \left[\frac{\partial^2 k_{b2}}{\partial p \partial u} Y_1 + \frac{\partial k_{b2}}{\partial p} \frac{\partial Y_1}{\partial u} - \frac{\partial k_{b2}}{\partial u} \frac{\partial Y_1}{\partial p} - k_{b2} \frac{\partial^2 Y_1}{\partial p \partial u} \right] \\
&\quad + \frac{1}{Y_1^3} \left(2 \frac{\partial Y_1}{\partial u} \right) \left[\frac{\partial k_{b2}}{\partial p} Y_1 - k_{b2} \frac{\partial Y_1}{\partial p} \right]
\end{aligned} \tag{D.30}$$

**AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur HAMMOURI Hassan, Professeur, LAGEP-UCB ENSCPE Lyon,
Monsieur ROUCHON Pierre, Docteur ès Sciences, CAS-ENSMP Paris.**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur FOURNIER Frantz

à soutenir devant l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

**"Méthodologie d'optimisation dynamique et de commande optimale
des réacteurs électrochimiques discontinus".**

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

Spécialité : **"GÉNIE DES PROCÉDÉS"**

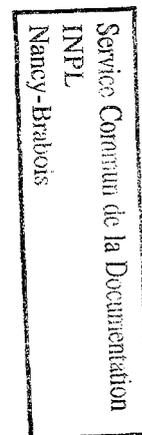
Fait à Vandoeuvre le. **5 Janvier 1998**

Le Président de l'IN.P.L..


J. HARDY



NANCY BRABOIS
2. AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 5 4 5 0 1
VANDOEUVRE CEDEX



Résumé

Les procédés électrochimiques occupent une part non négligeable dans l'industrie chimique. Des études préliminaires montrent cependant que le mode de fonctionnement traditionnel de ces procédés (à potentiel ou à courant constant) n'est pas toujours le meilleur. Elles encouragent à envisager l'amélioration du fonctionnement des procédés électrochimiques par l'utilisation des méthodes d'optimisation dynamique.

L'étude présentée dans cette thèse propose une méthodologie de l'optimisation dynamique et de la commande optimale dans le cas des procédés électrochimiques discontinus. On cherche ainsi à formuler et résoudre les problèmes d'optimisation du fonctionnement dynamique des réacteurs électrochimiques, à analyser les différentes sensibilités des paramètres du modèle et à appliquer les profils optimaux de commande en boucle fermée dans des conditions expérimentales aussi réalistes que possibles. La méthodologie est appliquée à différents problèmes électrochimiques tels que la minimisation de la consommation d'énergie électrique, la maximisation du rendement, de la sélectivité ou encore la minimisation du temps opératoire.

Toutes les méthodes d'optimisation utilisées sont fondées sur le Principe du Maximum. Un inventaire non exhaustif des techniques de résolution de problèmes d'optimisation dynamique et leurs principales caractéristiques sont ainsi présentés. En intégrant au problème des contraintes physiques, ces méthodes fournissent des conditions optimales de fonctionnement réalistes. Les performances de l'optimisation dynamique sont comparées à celles résultant des meilleures conditions de fonctionnement statiques. Les améliorations entre le mode de fonctionnement optimisé et le meilleur mode usuel peuvent s'élever à plusieurs dizaines de pourcent. Différentes formes de l'analyse de la sensibilité des paramètres du modèle soulignent la validité des résultats optimaux dans des conditions opératoires qui diffèrent de celles idéalement représentées dans le modèle des réacteurs considérés. Pour la mise en oeuvre de la commande optimale, des techniques de reconstruction de l'état et une loi de commande optimale en boucle fermée ont été mises au point.

Abstract

Electrochemical processes are significantly used in chemical industry. Previous studies have however shown that the traditional operating mode, *i.e.* at constant potential or constant current, is not always the best. An interesting method to improve the operating mode of electrochemical processes is to determine the best time-varying control variables by means of dynamic optimisation methods.

In this study, a methodology of dynamic optimisation and optimal control for batch electrochemical processes is presented. The objective is to formulate and solve dynamic optimisation problems of electrochemical reactors, to analyse the sensitivity of the optimisation criteria and control variables to the parameters of the model and to apply the optimal control profiles in the most realistic conditions. To illustrate this methodology, some electrochemical problems such as energy consumption minimisation, yields or selectivity maximisation or time optimal control are presented.

All the methods used are based on the Maximum Principle. A non-exhaustive review of the computational techniques to solve dynamic optimisation problems and their specific features is described. The resulting optimal profiles are realistic since the most important physical constraints are considered. The performances of the optimised operating modes are compared to those of the best static modes. The resulting improvements rise upto several tens of percent. Several kinds of sensitivity analysis point out the validity of the optimal conditions even when operating conditions deviate from their ideal values used in the model. In order to implement the optimal control profiles in a closed-loop control, various state observers and a optimal state feedback law are designed.