

Prédiction de courbes cinétiques par VCM

Matthieu CANAUD^(1*), François WAHL⁽¹⁾, Céline HELBERT⁽²⁾, Laurent CARRARO⁽²⁾

(*) corresponding author matthieu.canaud@ifp.fr

(1) IFP-Lyon, BP 3, 69390 Vernaison, France

(2) Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 42023 St-Etienne Cedex 2

Keywords: Analyse fonctionnelle, krigeage, VCM, P-splines, corégionalisation

Ce document présente les travaux effectués dans le cadre de la thèse intitulée, planification d'expériences appliqué aux problèmes de cinétiques, lancée en Décembre 2007, en partenariat avec l'École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne. Le thème de la thèse est d'aider les expérimentateurs à construire un plan d'expériences alors que le modèle à leur disposition pour représenter le phénomène physico-chimique sous-jacent se révèle inadéquat. L'application est un système de post-traitement des fumées en sortie des moteurs Diesel, le piège à NOx et les modèles cinétiques qui le représentent sont hautement non linéaires

Les modèles développés pour représenter les phénomènes physico-chimiques dans les systèmes de dépollution catalytique sont des modèles cinétiques et dépendent de paramètres (facteurs pré exponentiels, énergies d'activation, constantes d'adsorption, et des chaleurs d'adsorption) que, la plupart du temps, on ne peut déduire de considérations théoriques. On procède à des expériences afin de calibrer le modèle, et l'objet de ce travail est de construire le plan d'expériences correspondant.

L'application qui nous préoccupe est un système de dépollution catalytique, en post-traitement des fumées en sortie des moteurs Diesel : le piège à NOx. L'objectif de l'expérimentateur ici est d'obtenir une représentation du comportement de ce système dans son domaine d'application. Un schéma réactionnel a été élaboré et un modèle théorique pour le mettre en œuvre a été construit. Cependant la confrontation aux premiers résultats expérimentaux montre son inadéquation.

L'examen du problème montre deux difficultés : le modèle cinétique est non linéaire et les sorties sont fonctionnelles. La non-linéarité rend l'ajustement des paramètres délicat, d'autant plus que les expériences peuvent présenter de fortes incertitudes. Les sorties sont des courbes cinétiques, qu'on ne sait pas décrire de manière paramétrique et qui figurent dans un espace de dimension infinie.

En l'absence de modèle, on a recours aux régressions non paramétriques, pour représenter le comportement. Pour tenir compte des connaissances a priori des experts, on pose dans un premier temps un modèle de krigeage dont la tendance non-linéaire est représentée par le modèle théorique. Les différents essais menés montrent la limite de cette démarche, même à travers différentes sophistications successives : changement de paramétrisation, ou conditionnement par la dérivée.

La prise en compte de la nature fonctionnelle des sorties se révèle plus prometteuse, à travers l'utilisation de modèles à coefficients variables (VCM, voir [1-4]). Deux méthodes ont été testées et seront présentées, la méthode de Li, Sudjianto et Zhang [6] et celle de Nerini, Monestier et Manté [5]. La méthode de Li, Sudjianto et Zhang [6], a été appliquée avec succès. Il s'agit d'une procédure en deux étapes, partant du modèle suivant :

$$y(t, x) = \beta_0(t) + x^t \beta(t) + \varepsilon(t, x),$$

qui consiste à estimer les coefficients $\beta(t)$ pour chaque t , et ensuite à les représenter par des B-splines pénalisées, appelés P-spline.

Les travaux de Nerini, Monestier et Manté [5] s'appuient sur des modèles de corégionalisation de type géostatistique [7]. Dans cette méthode, on cherche à estimer Y_0 , la courbe en un point x_0 , avec le modèle linéaire suivant :

$$\hat{Y}_0(t) = \sum_{i=1}^n \int \beta_i(s, t) Y_i(s) ds,$$

où les fonctions de régressions $\beta_i(s, t)$ doivent minimiser

$$E \left\| \hat{Y}_0 - Y_0 \right\|^2.$$

Les $\beta_i(s, t)$ sont exprimés une combinaison linéaire de K fonctions de base. La méthode repose donc sur le choix (non trivial) de ces K fonctions de bases, et sur l'estimation du vecteur des coefficients en chaque point x_i , par un système de cokrigage multivarié.

- [1] Ramsay, J.O., Silverman, B.W.: Functional Data Analysis, Springer, New-York (1997)
- [2] Fan, J., Zhang, W.: Statistical Estimation in Varying-Coefficient Models, The Annals of Statistics. v27. 1491-1518
- [3] Lu, Y., Mao, S.: Local Asymptotics for B-Spline Estimators of the Varying-Coefficient Model, Commun. Stat. Theor. Meth. 33:1119-1138 (2004)
- [4] Eilers, P.H.C., Marx, B.D.: Generalized Linear Additive Smooth Structures, Journal of Computational and Graphical Statistics, v11, n°4, 758-783 (2002)
- [5] Nerini, D., Monestiez, P., Manté, C.: Cokriging for Spatial Functional Data, Journal of Multivariate Analysis 101, 409-418 (2010)
- [6] Li, R., Sudjianto, A., Zhang, Z.: Modeling Computer Experiments with Functional Response, SAE 2005 Transactions Journal of Passenger Cars – Mechanical Systems, 1661-1666 (2006)
- [7] Goulard, M., Voltz, M.: Geostatistical interpolation of curves: A case study in soil science, Geostatistics Troia'92, vol.2, Kluwer Academic Publishers, 805-816 (1992)