REVUE DE STATISTIQUE APPLIQUÉE

J. ULMO
B. PFLUGFELDER

# Méthode d'exploration de la « surface de réponse » pour l'optimisation d'une variable dépendante dans le cas de facteurs contrôlés quantitatifs

*Revue de statistique appliquée*, tome 27, n° 4 (1979), p. 23-36
<http://www.numdam.org/item?id=RSA_1979__27_4_23_0>

© Société française de statistique, 1979, tous droits réservés.

L'accès aux archives de la revue « Revue de statistique appliquée » (http://www.sfds.asso.fr/publicat/rsa.htm) implique l'accord avec les conditions générales d'utilisation (http://www.numdam.org/conditions). Toute utilisation commerciale ou impression systématique est constitutive d'une infraction pénale. Toute copie ou impression de ce fichier doit contenir la présente mention de copyright.

NUMDAM
*Article numérisé dans le cadre du programme*
*Numérisation de documents anciens mathématiques*
http://www.numdam.org/

# MÉTHODE D'EXPLORATION DE LA "SURFACE DE RÉPONSE" POUR L'OPTIMISATION D'UNE VARIABLE DÉPENDANTE DANS LE CAS DE FACTEURS CONTROLÉS QUANTITATIFS

J. ULMO* et B. PFLUGFELDER**

## 1. – INTRODUCTION

Il s'agit de trouver par approximations successives les meilleures conditions opératoires pour maximiser une caractéristique Y telle que le rendement ou la pureté d'un produit, ou minimiser un coût.

On suppose que les variables $x_1, x_2, \ldots, x_k$ définissant ces conditions opératoires sont quantitatives et que la fonction de régression $\Phi$ de Y sur les $x_i$ qui est inconnue est continue, c'est-à-dire qu'on a :

$$E(Y/x) = \eta = \Phi(x_1, x_2, \ldots, x_k).$$

$\Phi$ est la "fonction de réponse" de Y aux $x_i$.

On suppose également que la région de l'espace $\mathbf{R}^k$ engendré par les $x_i$ qui représente de l'intérêt est relativement étendue par rapport aux variations qu'on peut leur donner.

Une première étape de l'expérimentation a donc pour but de localiser la région où $\eta$ est maximum. Elle consiste à réaliser une première série d'expériences autour du point de $\mathbf{R}^k$ qu'on suppose devoir donner les meilleurs résultats.

Cette expérience doit permettre de représenter localement la fonction de réponse par une fonction linéaire ou quadratique des $x_i$, et d'en déduire une région dans laquelle on peut espérer une meilleure réponse. Après avoir précisé cette région par deux ou trois expériences, on y réalise une nouvelle série d'expériences qui aura cette fois pour but l'exploration locale de la région afin de définir de façon précise les conditions optimales ou suboptimales.

Nous pensons que le meilleur moyen de faire comprendre l'essentiel de la méthode est de l'exposer sur un exemple qui a été réalisé par l'un de nous (B.P.).

L'exposé de cet exemple est suivi d'un paragraphe de commentaires consacré surtout à des indications sur les plans d'expérience bien adaptés à la méthode.

(*) Maître-Assistante à l'Université Paris IX Dauphine.

(**) Ingénieur à la S.N.E.A. (P) – Centre de Recherches de Lacq.



*Mots-clés :* **Surface de réponse, optimisation. Plans d'expérience. Régression linéaire et quadratique. Analyse de la variance.**

## 2. – EXPOSE DE LA METHODE SUR UN EXEMPLE

Il s'agit de déterminer les pourcentages respectifs $z_1$, $z_2$, $z_3$ de trois oxydes métalliques (molybdène, tellure et fer) constituant la phase active d'un catalyseur, qui maximisent le rendement moyen $\eta$ du produit de synthèse qu'on veut former, (Métha crylonitrile formé par ammonoxydation de l'isobutène) toutes les autres conditions opératoires étant fixées. En particulier la phase active représente toujours 50 % du poids du catalyseur, le reste étant constitué par de la silice qui sert de support.

### Choix des variables indépendantes à faire figurer dans la fonction de réponse

Les 3 variables $z_1$, $z_2$, $z_3$ étant liées par la relation fonctionnelle

$$z_1 + z_2 + z_3 = 100,$$

on se ramène à deux variables indépendantes $x_1$ et $x_2$ en posant :

$$x_1 = \frac{1}{2}(-z_1 + z_2)$$

$$x_2 = \frac{\sqrt{3}}{6}(-z_1 - z_2 + 2z_3)$$

$$\text{soit} \begin{cases} z_1 = \frac{1}{3}(-3x_1 - x_2\sqrt{3} + 100) \\ z_2 = \frac{1}{3}(3x_1 - x_2\sqrt{3} + 100) \\ z_3 = \frac{1}{3}(2x_2\sqrt{3} + 100) \end{cases}$$

Si on représente $z_1$, $z_2$, $z_3$ par des coordonnées triangulaires, conformément à la *figure* 1, ce changement de variables revient à prendre pour origine le centre de gravité du triangle et pour axes :

$Ox_1$ : la parallèle à la base $FeO_3$ ($z_1 = 100$), $TeO_3$ ($z_2 = 100$)

$Ox_2$ : la médiatrice relative à cette base (cf. *figure* 1).

On voit en effet aisément que :

$$\begin{cases} x_1 = 0 \\ x_2 = 0 \end{cases} \Leftrightarrow z_1 = z_2 = z_3 ;$$

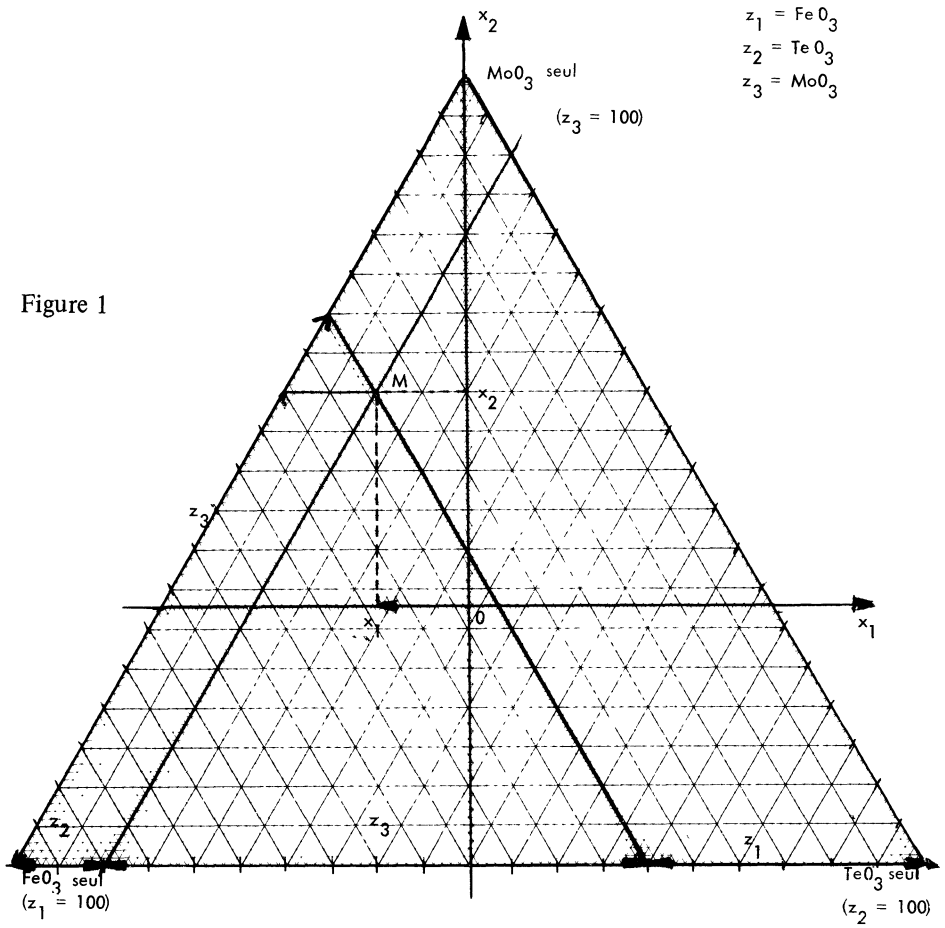
l'origine est donc le centre de gravité du triangle.

$x_1 = 0 \Leftrightarrow z_1 = z_2$ ; l'axe $Ox_2$ est donc la médiatrice de $FeO_3$, $TeO_3$.

$x_2 = 0 \Leftrightarrow z_3 = \frac{z_1 + z_2}{2}$ soit puisque $z_1 + z_2 + z_3 = 100$,

$x_2 = 0 \Leftrightarrow z_3 = \frac{100}{3}$ = constante ; l'axe $Ox_1$ est donc parallèle à la base $FeO_3$, $TeO_3$.

Figure 1




**Première série d'essais ou série de dégrossissage**

N'ayant aucune indication sur la position probable de l'optimum, le premier plan d'expérience a été construit autour du centre de gravité du diagramme triangulaire. Le point central 1 sera répété 4 fois afin d'avoir une estimation de la variance $\sigma^2$ de l'erreur expérimentale $\epsilon$, qu'on suppose normalement distribuée, et de variance constante pendant toute l'expérience.

Les autres points expérimentaux constituent un carré centré sur 1 et à côtés parallèles aux axes (cf. figure 2). Ils constituent donc un plan factoriel $2^2$ par rapport à $x_1$ et $x_2$. Le tableau 1 donne les coordonnées de ces points.

Les valeurs observées pour le rendement y sont les suivantes :

| n° de l'essai | 1 | 1 | 1 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| y | 17,9 | 14,4 | 15,3 | 16,9 | 21,7 | 30,3 | 17,8 | 7,4 |

A première vue (cf. *figure* 2) ces résultats expérimentaux justifient l'ajustement d'un modèle de régression polynomiale du premier degré en $x_1$ et $x_2$ c'est-à-dire l'approximation de la surface de réponse par un plan, dans la région considérée.

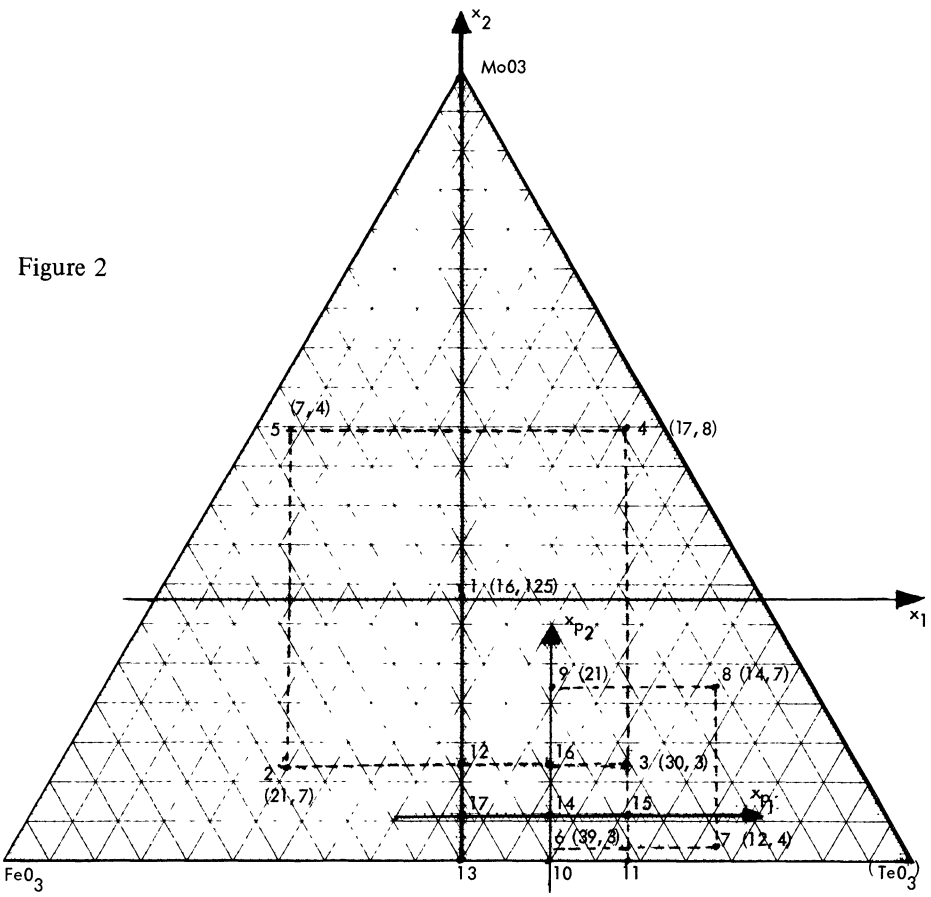
L'application de la méthode des moindres carrés conduit à l'équation $y^* = 18{,}66 + 0{,}2594\, x_1 - 0{,}3659\, x_2$.

Le tableau 2 donne les valeurs observées et calculées de y aux points expérimentaux (valeur moyenne pour le point 1) ainsi que le tableau d'analyse de la variance correspondant aux tests suivants faits sous l'hypothèse de normalité de l'erreur expérimentale :

1) Validité de l'ajustement d'une fonction du premier degré, que l'on teste par comparaison du carré moyen résiduel autour de la régression, à la variance de répétition.

2) Signification de l'influence linéaire de l'ensemble des variables $x_1$ et $x_2$, qu'on a testé par comparaison du carré moyen dû à la régression à la variance de répétition.

Figure 2




Position des points expérimentaux
(entre parenthèses valeurs du rendement y)

TABLEAU 1

| n° essais | $z_1$ ($Fe\ O_3$) | $z_2$ ($Te\ O_3$) | $z_3$ ($MO\ O_3$) | $x_1$ | $x_2$ | $xp_1$ | $xp_2$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 33,33 | 33,33 | 33,33 | 0 | 0 | | |
| 2 | 62,20 | 25,60 | 12,20 | − 18,31 | − 18,31 | | |
| 3 | 25,60 | 62,20 | 12,20 | 18,31 | − 18,31 | 1 | 1 |
| 4 | 4,46 | 41,06 | 54,48 | 18,31 | 18,31 | | |
| 5 | 41,06 | 4,46 | 54,48 | − 18,31 | 18,31 | | |
| 6 | 39,50 | 58,50 | 2,00 | 9,50 | − 27,12 | | |
| 7 | 21,90 | 76,10 | 2,00 | 27,12 | − 27,12 | | |
| 8 | 11,70 | 65,94 | 22,36 | 27,12 | − 9,50 | | |
| 9 | 29,33 | 48,33 | 22,36 | 9,50 | − 9,50 | | |
| 10 | 40,50 | 59,50 | 0 | 9,50 | − 28,87 | 0 | − 1 |
| 11 | 31,68 | 68,32 | 0 | 18,31 | − 28,87 | 1 | − 1 |
| 12 | 43,90 | 43,90 | 12,20 | 0 | − 18,31 | − 1 | − 1 |
| 13 | 50,00 | 50,00 | 0 | 0 | − 28,87 | − 1 | − 1 |
| 14 | 37,45 | 56,45 | 6,10 | 9,50 | − 23,59 | 0 | 0 |
| 15 | 28,64 | 65,26 | 6,10 | 18,31 | − 23,59 | 1 | 0 |
| 16 | 34,40 | 53,40 | 12,20 | 9,50 | − 18,31 | 0 | 1 |
| 17 | 46,95 | 46,95 | 6,10 | 0 | − 23,59 | − 1 | 0 |

TABLEAU II

**1ère grille d'essais**

| N° | $x_1$ | $x_2$ | y obs. | y calculé | Remarque |
|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 0 | 0 | 16,125* | 18,66 | La répétition du point |
| 2 | − 18,31 | − 18,31 | 21,7 | 20,62 | central donne 2,47 |
| 3 | 18,31 | − 18,31 | 30,3 | 30,11 | comme estimation de la |
| 4 | 18,31 | 18,31 | 17,8 | 16,72 | variance expérimentale |
| 5 | − 18,31 | 18,31 | 7,4 | 7,21 | avec 3 d.d.l. |

* Moyenne des 4 résultats obtenus.

**Tableau d'Analyse de Variance**

*obtenu quand on remplace les 4 résultats du point 1 par leur moyenne*

| Source de variation | Somme de carrés | d.d.l. | Carré moyen | F Test (1) |
|---|---|---|---|---|
| Régression | 269,81 | 2 | 134,90 | 54,63 HS |
| Résidu | 8,87 | 2 | 4,43 | 1,79 NS |
| Total | 278,68 | 4 | 69,67 | |

*Equation du modèle*

$$y = 18{,}66 + 0{,}2594\ x_1 - 0{,}3659\ x_2$$

(1) Par comparaison avec la variance expérimentale basée sur 3 d.d.l.

Si on trouvait que dans le domaine de variation considéré $x_1$ et $x_2$ n'avaient pas d'influence, il faudrait en effet leur donner des variations plus importantes. On notera qu'un tel résultat n'est pas impossible puisque si on s'est placé d'emblée au voisinage de l'optimum, les plans tangents à la surface de réponse y sont horizontaux.

On notera que la contribution des résultats $y_{1j}$, j = 1, 2, 3, 4 obtenus au point 1 à la somme des carrés résiduelle peut s'écrire :

$$\sum_{j=1}^{4} (y_{1j} - y_1^*)^2 = \sum_{j=1}^{4} (y_{1j} - \bar{y}_1)^2 + 4(\bar{y}_1 - y_1^*)^2$$

avec $\bar{y}_1$ moyenne des $y_{1j}$

Ceci justifie la détermination des coefficients de régression et de la somme des cacrrés résiduelle, amputée de celle due aux répétitions en remplaçant les $y_{1j}$ par leur moyenne $\bar{y}_1$ comme on l'a fait au tableau 2.

**Expression des coefficients de régression d'un modèle du premier degré dans un plan factoriel $2^k$ avec centre ($k \geqslant 2$).**

On suppose que le centre est pris pour origine des coordonnées.

Soit $y^* = b_0 + \sum_{i=1}^{k} b_i x_i$ le modèle ajusté.

Ce modèle est orthogonal par rapport à la constante et aux variables $x_i$, ce qui permet de calculer les coefficients $b_i$ comme des régressions totales.

On a donc $b_0 = \bar{y}$ moyenne générale des observations $y_j$, j = 1, 2, . . . , n,

et $b_i = \dfrac{\sum_{j=1}^{n} y_j x_{ij}}{\sum_{j=1}^{n} x_{ij}^2}$ pour $i \neq 0$ peut se calculer en omettant les résultats correspondant au centre puisqu'alors $x_i = 0$.

Compte tenu de ce que tous les $x_{ij}$ non nuls ont même valeur absolue $x_{i+}$ il vient $b_i = \dfrac{\bar{y}_{(x_{i+})} - \bar{y}_{(x_{i-})}}{2x_{i+}}$ où $\bar{y}_{(x_{i+})}$ et $\bar{y}_{(x_{i-})}$ désignent respectivement les moyennes des $y_j$ correspondant à $x_{i+}$ et $x_{i-}$.

Quant à la somme des carrés due à la régression c'est :

$$\sum_{i=1}^{k} b_i^2 \left( \sum_{j=1}^{k} x_{ij}^2 \right) = 2^k \sum_{i=1}^{k} b_i^2 x_{i+}^2.$$

Le plan factoriel $2^k$ (ou fractional factorial $2^{k-p}$ si k est grand) avec centre représente donc une solution particulièrement commode et peu coûteuse pour l'ajustement d'un modèle du 1$^{er}$ degré et pour tester la validité de ce modèle en procédant à un certain nombre de répétitions au centre.

Les valeurs observées au centre n'interviennent (par leur moyenne) que dans le calcul du terme constant $b_0$ et de la somme des carrés résiduelle à comparer à la variance de répétition. Par ailleurs en l'absence d'expérience au centre, la somme de carrés résiduelle représente la contribution des seules interactions entre les facteurs et par suite des seuls termes rectangles $b_{i\ell}\, x_i\, x_\ell$, $i \neq \ell$ si le modèle de régression était du 2e degré au lieu d'être du 1er degré. L'introduction d'expériences au centre permet de faire intervenir l'effet de la somme $\sum_{i=1}^{k} b_{ii}$ des coefficients des termes en $x_i^2$.

**Utilisation de la représentation du premier degré pour améliorer le rendement ; 2e grille d'essais**

Dans cette représentation les isorendements sont des droites parallèles d'équation $0{,}2594\ x_1 - 0{,}3659\ x_2 =$ constante. C'est par suite en se déplaçant perpendiculairement à cette direction, c'est-à-dire parallèlement au vecteur de composantes 0,26 et − 0,36 (plus généralement parallèlement au vecteur de composantes $b_1$ et $b_2$, ou $b_1, b_2, \ldots, b_k$ s'il y a k variables contrôlées) que $\eta$ a des chances d'augmenter le plus. Le point $(x_1, x_2, y^*)$ se déplacera alors en effet sur une ligne de plus grande pente du plan représentatif de la surface de réponse.

Un tel déplacement à partir de l'origine conduirait au voisinage du point 3 qui est celui qui a donné la plus grande valeur observée de y. Ce point est déjà suffisamment loin de l'origine et proche de la base du triangle pour qu'on ait envie d'explorer ses abords. Dans un souci d'économie, on a décidé de faire une nouvelle expérience avec des points expérimentaux réparties au sommet d'un carré centré sur le point 3 dont le résultat sera utilisé dans le dépouillement de cette expérience, mais dont le côté est moitié du précédent. Les points expérimentaux 6, 7, 8, 9 et les résultats obtenus sont représentés sur la figure 2. Leurs coordonnées figurent au tableau 2 et les valeurs obtenues pour y sont les suivantes :

| n° de l'essai | 6 | 7 | 8 | 9 |
|---|---|---|---|---|
| y | 39,3 | 12,4 | 14,7 | 21 |

Il apparaît immédiatement qu'un modèle du premier degré, donc additif par rapport aux effets de $x_1$ et $x_2$ ne peut pas représenter les résultats obtenus puisque la différence $y_9 - y_8$ devrait être sensiblement égale à $y_6 - y_7$ étant donné que toutes deux correspondent à une même variation de $x_1$ seule.

Ceci est confirmé par les résultats du tableau 3 où l'analyse de la variance donne un carré moyen très significativement supérieur à la variance expérimentale estimée dans la première série d'essais.

Les résultats obtenus montrent qu'on atteint une région où la surface de réponse ne peut plus être représentée par un plan et où on peut par suite espérer que se trouve un maximum. Pour pouvoir ajuster un polynome de degré deux qui comporte 6 coefficients, il faut procéder à des essais supplémentaires.

TABLEAU III

**2ème grille d'essais**

Essai d'ajustement d'un modèle du premier degré

| n° essai | $x_1$ | $x_2$ | y obs | y calculé |
|---|---|---|---|---|
| 3 | 18,31 | – 18,31 | 30,30 | 23,54 |
| 6 | 9,50 | – 27,12 | 39,30 | 35,84 |
| 7 | 27,12 | – 27,12 | 12,40 | 19,24 |
| 8 | 27,12 | – 9,50 | 14,70 | 11,24 |
| 9 | 9,50 | – 9,50 | 21,00 | 27,84 |

**Tableau d'Analyse de Variance**

| Source de variation | Somme de carrés | d.d.l. | Carré moyen | F Test (1) |
|---|---|---|---|---|
| Régression | 339,56 | 2 | 169,78 | 68,74 HS |
| Résidu | 163,21 | 2 | 81,60 | 33,03 HS |
| Total | 502,77 | 4 | 125,69 | |

(1) Par comparaison avec la variance expérimentale de la 1ère grille d'essais soit 2,47 basée sur 3 d.d.l.

TABLEAU IV

**3ème grille d'essais**

Ajustement d'un polynôme du deuxième degré

| N° essai | $x_{P_1}$ | $x_{P_2}$ | y obs. | y calculé |
|---|---|---|---|---|
| 3 | 1 | 1 | 30,30 | 28,04 |
| 10 | 0 | – 1 | 27,30 | 25,48 |
| 11 | 1 | – 1 | 15,20 | 14,97 |
| 12 | – 1 | 1 | 29,40 | 29,40 |
| 13 | – 1 | – 1 | 18,10 | 20,14 |
| 14 | 0 | 0 | 46,90 | 46,46 |
| 15 | 1 | 0 | 34,40 | 36,89 |
| 16 | 0 | 1 | 34,40 | 36,66 |
| 17 | – 1 | 0 | 42,20 | 40,16 |

**Tableau d'Analyse de Variance**

| Source de variation | Somme de carrés | d.d.l. | Carré moyen | F Test (1) |
|---|---|---|---|---|
| Régression | 805,83 | 5 | 161,16 | 65,25 HS |
| Résidu | 28,26 | 3 | 9,42 | 3,81 NS |
| Total | 834,09 | 8 | 104,26 | |

(1) Par comparaison avec la variance de l'erreur expérimentale de la 1ère grille d'essais soit 2,47 basée sur 3 degrés de liberté.

*Equation du modèle*

$$y = 46{,}46 - 1{,}633\, x_{p_1} + 5{,}583\, x_{p_2} - 7{,}933\, x_{p_1}^2 + 0{,}9500\, x_{p_1} x_{p_2} - 15{,}383\, x_{p_2}^2$$

Ceux-ci seront organisés en tenant compte de ce que la $2^e$ série d'essais montre nettement que le rendement est plus élevé en 6 qu'en 3 et en 7, alors que la projection de la ligne de plus grande pente du plan ajusté à la première série d'essais passant par le point 3, passe plus près de 7 que de 6.

**Troisième grille d'essais :**

Cette $3^e$ série d'essais doit permettre d'explorer le voisinage du point 6 et de représenter la surface de réponse par un polynome de degré 2. Chaque variable doit donc prendre au moins 3 niveaux. On tiendra compte pour la définir des contraintes suivantes :

– utilisation au maximum des résultats précédents (essais 3 et 6) ;

– inclusion de points se trouvant sur la limite du domaine possible c'est-à-dire sur la base $FeO_3 - TeO_3$ du triangle (catalyseur sans molybdène : $z_3 = 0$).

Le désir d'avoir des calculs simples conduit à adopter un plan factoriel $3^2$ à modalités équidistantes pour $x_1$ d'une part et pour $x_2$ de l'autre.

On sait que les coefficients de régression et les sommes de carrés correspondantes peuvent être déterminés simplement en introduisant des polynômes orthogonaux par rapport aux variables $x_{p_1}$ et $x_{p_2}$ correspondant à $x_1$ et $x_2$ mais centrées sur le centre du plan.

La troisième grille d'essais correspond ainsi aux points 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 3 de la figure 2 qui constituent les sommets d'un rectangle, les milieux des côtés et le centre du rectangle.

Le centre 14 de ce rectangle est pris comme origine des axes $x_{p_1}$ et $x_{p_2}$, et les demi côtés du rectangle sont pris comme unités de longueur ce qui simplifie encore les expressions des coefficients de régression. On obtient ainsi le tableau de données et de résultats suivant :

| n° essai | Rendement Y | $x_{p_1}$ | $x_{p_2}$ |
|---|---|---|---|
| 10 | 27,3 | 0 | – 1 |
| 11 | 15,2 | 1 | – 1 |
| 12 | 29,4 | – 1 | 1 |
| 13 | 18,1 | – 1 | – 1 |
| 14 | 46,9 | 0 | 0 |
| 15 | 34,4 | 1 | 0 |
| 16 | 34,4 | 0 | 1 |
| 17 | 42,2 | – 1 | 0 |
| 3 | 30,3 | 1 | 1 |

Les valeurs correspondantes de $x_1$, $x_2$, $z_1$, $z_2$, $z_3$ sont donnés au tableau 1.

Le modèle du second degré ajusté est :

$$y^* = 46{,}46 - 1{,}63\, x_{p_1} + 5{,}58\, x_{p_2} - 7{,}93\, x_{p_1}^2 + 0{,}95\, x_{p_1}^2 \,.\, x_{p_2} - 15{,}38\, x_{p_2}^2$$

Le tableau 4 montre qu'il représente les résultats obtenus de façon satisfaisante puisque le carré moyen résiduel n'est pas significativement supérieur à la variance expérimentale estimée dans la première grille d'essais.

On voit aussi que la différence |y obs − y calc| ne dépasse pas 2,40 alors que l'écart-type résiduel 0 est de l'ordre de 1,6. Elle est très inférieure à $2\,\sigma\,\sqrt{2}$ qui représente l'erreur à 95 % sur cette différence.

Sur ce modèle du second degré, l'extremum est défini par :

$$\frac{dy^*}{\delta x_{P_1}} = \frac{dy^*}{\delta x_{P_2}} = 0$$

soit

$$\begin{cases} -1{,}63 - 15{,}86\, x_{P_1} + 0{,}95\, x_{P_2} = 0 \\ 5{,}58 + 0{,}95\, x_{P_1} - 30{,}76\, x_{P_2} = 0 \end{cases}$$

dont la solution est

$$x_{P_1} = -0{,}096 \qquad \text{soit} \begin{cases} x_1 = 8{,}59 \\ x_2 = -22{,}61 \end{cases}$$

$$x_{P_2} = 0{,}176$$

avec $y^* = 46{,}57$.

Les valeurs de $x_1$ , $x_2$ et $y^*$ sont très proches de celles de l'essai 14 [9,5 − 23,59, 46,9] qu'on peut donc retenir comme représentant la formule catalytique optimale. La figure 3 reproduit un tracé de courbes isorendements dans le système ($x_{p1}$ , $x_{p2}$) déterminées à partir de l'ajustement du second degré (ce sont des ellipses homothétiques).

Cette méthode de tracé des isorésultantes au voisinage de l'optimum est la meilleure dans le cas de deux variables pour avoir une idée de la forme de la surface de réponse dans ce voisinage, quand on dispose d'un traceur de courbes.

Dans le cas de plus de deux variables il peut être intéressant de mettre la forme quadratique du 2e membre sous sa forme canonique pour étudier la forme de la surface de réponse. On trouvera dans (1) un exemple dans le cas de 2 variables et dans [(2) p. 362] une discussion générale dans le cas de 3 variables.

En conclusion la formule catalytique proposée a été :

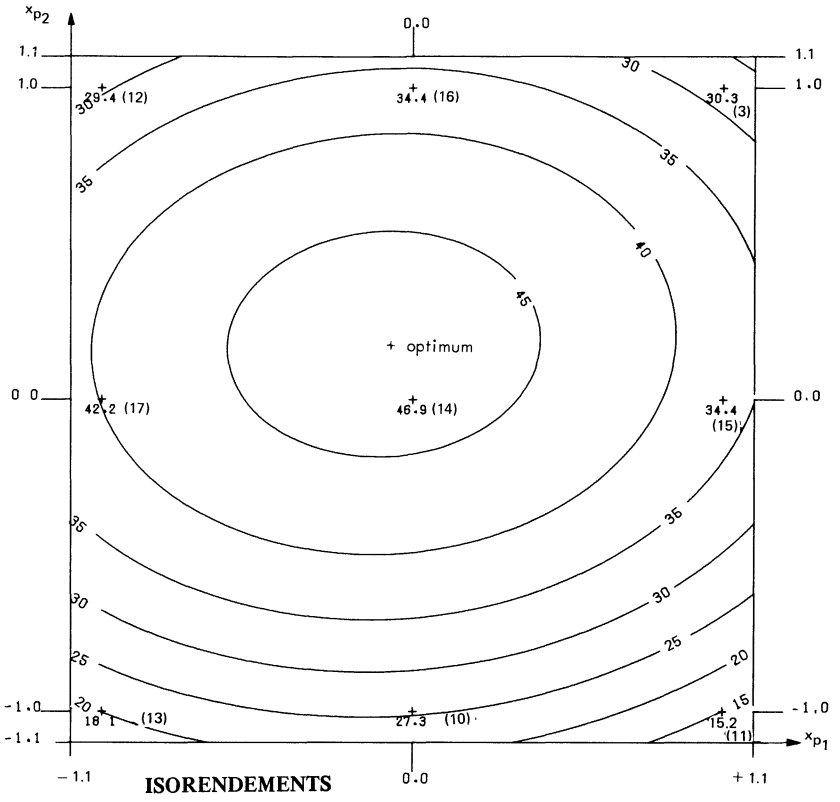
$$\begin{cases} z_1\,(FeO_3) : 38{,}2\,\% \\ z_2\,(TeO_3) : 54{,}6\,\% \\ z_3\,(MoO_3) : 7{,}2\,\% \end{cases}$$

ces pourcentages étant ceux de la phase active qui représente 50 % du poids du catalyseur.

## 3. – COMMENTAIRES SUR LA METHODE

### 1. Etapes de dégrossissage

**1.1.** Comme on l'a déjà dit, il est nécessaire de tester non seulement la validité d'un ajustement du premier ordre mais aussi la signification de l'ensemble des coefficients $\beta_i$ , i ≠ 0. Si le plan représentatif de la surface peut être considéré comme horizontal, la direction de la ligne de plus grande pente estimée n'a en effet plus




ISORENDEMENTS

Figure 3

Les Numéros entre parenthèses sont ceux des expériences. A côté figurent les rendements obtenus

d'intérêt. Si l'ensemble des $b_i$ est non significatif il faut selon les cas augmenter le pas de variation des $x_i$, ou passer à l'approximation par un polynôme d'ordre deux qui donnera une représentation plus exacte de la surface de réponse.

**1.2.** Dans l'exemple précédent le point 3 était assez éloigné de 1 et assez proche d'une limite du domaine d'expérimentation pour qu'on ne poursuive pas plus loin l'exploration le long de la projection de la ligne de plus grande pente déterminée par les premiers essais. Dans bien des cas, on réalise 2 ou 3 essais successifs dans cette direction et ce n'est que quand on a obtenu une diminution de y montrant que la région de l'optimum est dépassée qu'on s'arrête pour organiser une deuxième série d'essais autour du meilleur point retenu.

## 2. Etapes d'exploration

**2.1.** Là encore il est nécessaire de tester la validité de l'ajustement du deuxième ordre trouvé et, si elle n'est pas évidente la signification de ses termes du 2$^e$ degré.

Par ailleurs si la position déterminée pour l'optimum se trouve en dehors de la région explorée, il est nécessaire de procéder à quelques expériences dans cette région pour s'assurer qu'on a effectivement des résultats au moins meilleurs que ceux obtenus dans la région explorée, car il ne faut pas oublier que la for-

mule polynomiale trouvée se prête en général très mal à l'extrapolation. (Elle ne donne qu'une représentation locale de la surface de réponse). Le mieux est donc de recommencer une série d'expériences suffisante pour permettre à nouveau l'ajustement d'un polynôme du deuxième degré et la détermination de la position de l'optimum.

### 2.2. Plan d'expérience pour ajuster un modèle du $2^e$ ordre

Les plans factoriels $3^k$ se prêtent très bien à l'ajustement de tels modèles surtout quand les 3 niveaux sont codés $-1$, 0 et 1, mais dès que k est supérieur ou égal à 3 cela fait beaucoup d'essais pour le nombre de coefficients à déterminer (10 pour $k = 3$, 15 pour $k = 4$), bien qu'on puisse réduire ce nombre en utilisant des plans fractional fractorial. Par ailleurs Box et Wilson ont montré que les coefficients des termes carrés $\beta_{ii}$ étaient estimés avec une précision assez faible.

Ces auteurs ont proposé de nouveaux plans spécialement adaptés à l'ajustement de modèles du $2^e$ ordre. Leurs premiers plans appelés "composite designs" sont construits en ajoutant d'autres points à ceux correspondant à un plan factoriel $2^k$. Si dans le plan factoriel $2^k$, les niveaux de chaque variables $x_i$ sont codés $-1$ et $+1$ les nouveaux plans sont les suivants :

*"Central composite designs"* : On ajoute les $(2k + 1)$ combinaisons :

$$(0 \ldots . 0),\ (-\alpha, 0 \ldots . . . . 0),\ (\alpha, 0 \ldots . . . . . 0)$$
$$(0,\ -\alpha, \ldots . . 0),\ (0,\ \alpha \ldots . . . . 0)$$
$$\ldots . . . . . .$$
$$(0,\ 0 \ldots . . . -\alpha),\ (0,\ 0 \ldots . . . \alpha)$$

ce qui conduit à $(2^k + 2k + 1)$ combinaisons. Pour $k = 2, 3, 4$ cela donne 9,15 et 24 essais au lieu de 9, 27 et 81 dans les plans $3^k$.

La valeur de $\alpha$ peut être choisie pour rendre les coefficients de régression orthogonaux, ou pour donner au plan la propriété d'être "rotatable", cf. définition plus loin.

Le plan peut être réalisé de façon séquentielle, la première séquence étant la réalisation du plan factoriel $2^k$ et l'ajustement d'une réponse du $1^{er}$ ordre.

Si cet ajustement n'est pas satisfaisant et si il semble que le centre de l'expérience soit proche de l'optimum on ajoutera les $2k + 1$ essais nécessaires pour créer le central composite design. Ceci suppose qu'il n'y ait pas d'influence du temps qui modifie le niveau de y entre la $1^{ère}$ et la $2^{ème}$ expérience. Si on craint une telle modification on réalisera une expérience en blocs (cf. références 1 et 2).

Le résultat du plan $2^k$ peut suggérer que l'optimum est plus proche d'une des combinaisons que du centre. Dans ce cas on pourra utiliser un "non central composite design". (cf. référence 2).

*Plans rotatables* (cf. 2) : Le critère de rotatabilité a été proposé par Box et Hunter.

Supposons que l'origine soit le centre de la région explorée et soit

$$\hat{y}_u = b_0 + \sum_{i=1}^{k} b_i x_{iu} + \sum_{i=1}^{k} b_{ii} x_{iu}^2 + \sum_{i<j} b_{ij} x_{iu} x_{ju}$$

la valeur estimée de $\eta$ au point $(x_{iu}, i = 1, 2, \ldots, k)$. On peut exprimer $\sigma^2(\hat{y}_u)$ en fonction de $\sigma^2$, variance expérimentale des $x_{iu}$ et des coordonnées des points expérimentaux.

Dans un plan rotatable, $\sigma^2(\hat{y_u})$ est le même pour tous les points $\{x_{iu}\}$ qui sont à la même distance $\rho^2 = \sum_{i=1}^{k} x_{iu}^2$ du centre.

Cette propriété d'isotropie de la prévision de y paraît raisonnable.

Avec deux variables on obtient des plans rotatables, en répartissant les essais en $n_2$ points régulièrement espacés sur un cercle centré sur l'origine et en procédant à $n_1$ essais au centre.

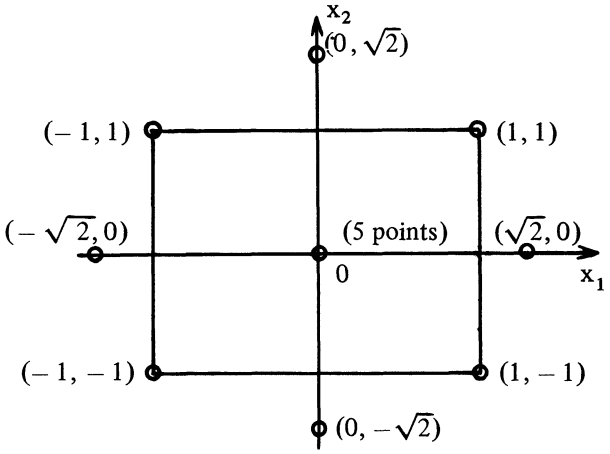
Comme il y a 6 coefficients à déterminer, le plus petit plan correspond à $n_2 = 5, n_1 = 1$.

Les répétitions d'essais au centre ont deux buts : elles donnent $(n_1 - 1)$ degrés de liberté pour estimer l'erreur expérimentale et définissent la précision de y au centre et dans son voisinage.

S'il y a plusieurs répétitions au centre, $\sigma(\hat{y})$ y est faible mais augmente rapidement quand on s'en écarte. Au contraire avec un ou deux essais au centre $\sigma(\hat{y})$ peut être plus grand au centre qu'en des points tels que (1, 0) ou (0, 1) – Box et Hunter suggèrent que le nombre des répétitions au centre soit choisi de façon à ce que $\sigma(\hat{y})$ soit sensiblement le même au centre et sur le cercle de rayon 1. Dans ce cas $\sigma(\hat{y})$ reste sensiblement constant en tous les points à l'intérieur de ce cercle.

Les plans rotatables les plus usuels sont aussi des central composite désigns.

Avec k = 2 on obtient le plan ci-dessous avec $n_2 = 8, n_1 = 5$.




Il peut être décomposé en 3 parties.

1) Les 4 points (–1, 1), (1, – 1), (– 1 ; – 1), (1, 1) d'un plan factoriel $2^2$ ;

2) Les 4 points $(-\sqrt{2}, 0)$, $(\sqrt{2}, 0)$, $(0, -\sqrt{2})$, $(0, \sqrt{2})$ nécessaires pour former avec le centre un central composite design.

Ici $\alpha = \sqrt{2}$ ;

3) 5 points au centre qui donnent sensiblement la même valeur pour $\sigma(\hat{y})$ dans tout le cercle de rayon 1.

Pour $k > 2$, on peut construire des central composite designs rotatables suivant le même principe. On doit prendre $\alpha = 2^{k/4}$ pour que le plan soit rotatable.

On trouvera dans (2) l'analyse statistique du plan ci-dessus pour $k = 2$ et dans (1) l'analyse du même plan avec $n_1 = 4$ répétitions au centre au lieu de 5 puis la description de central composite designs rotatables et organisés en blocs pour $k = 3, 4, 5$.

## QUELQUES REFERENCES


[1] HUNTER (J.S.). – Some applications of statistics to experimentation, *Chemical engineering progress Symposium series*, vol. 56, n° 31, p. 10-26 (1960 ?). Un exemple est traité en détail et la théorie est développée à cette occasion puis généralisée.

[2] COCHRAN and COX. – Experimental designs. 2nd Ed. Wiley (1957), chapitre 8 A.

[3] G.E.P. BOX. – The exploration and exploitation of response surfaces. Some general considerations and examples. *Biometrics* (1954), Vol. 10, n° 1, p. 16-60.

[4] DAVIES O.L. – The design and analysis of industrial experiments. Oliver and Boyd, Londres (1954).