

Plans d'expériences pour mélanges à deux niveaux

Title: Experimental designs for mixture of mixtures

Hanan Hanna¹ et Walter Tinsson¹

Résumé : Cet article détaille la mise en oeuvre d'un modèle additif pour des situations de mélanges à deux niveaux où interviennent donc des composants principaux et secondaires. Des plans d'expériences adaptés sont construits pour les deux situations classiques des mélanges de type A ou de type B. Avec de tels plans la détermination des estimateurs des moindres carrés des coefficients du modèle ainsi que le calcul de la D-efficacité du plan peuvent être réalisés de manière explicite.

Abstract: This paper deals with the implementation of an additive linear model when a mixture of mixtures is used, with primary and secondary components. Experimental designs are built for the two classical cases type A or type B mixtures. With such designs the determination of the least squares estimators of the model parameters or the determination of the D-efficiency can be achieved in an explicit way.

Mots-clés : mélanges à deux niveaux, modèle additif, fractions régulières, plans axiaux.

Keywords: mixture of mixtures, additive model, regular fractions, axial designs.

Classification AMS 2000 : 62K05, 62K99

1. Introduction

La problématique des plans d'expériences pour mélanges est bien connue depuis les travaux initiaux de Scheffé [11]. On suppose alors que la réponse mesurée ne dépend que des proportions des constituants présents dans le mélange. Le fait que la somme des proportions soit toujours égale à l'unité implique l'utilisation de modèle polynomiaux réduits particuliers qu'il est courant d'ajuster sur des configurations classiques telles que les réseaux de Scheffé.

Nous considérons dans cet article une situation plus complexe où le mélange est constitué par des composants **principaux** qui eux-mêmes sont des mélanges de composants **secondaires**. Il s'agit alors d'un mélange de mélanges encore appelé mélange à deux niveaux ou, en reprenant la terminologie anglo-saxonne, **MoM** (mixture of mixtures). En pratique cette situation peut se présenter, par exemple, pour la fabrication d'un médicament devant contenir deux principes actifs, chacun d'entre eux pouvant être issu du mélange de plusieurs composants (secondaires) fournis par des laboratoires différents.

Une telle situation a été étudiée et formalisée initialement par Lambrakis [7] ainsi que Cornell et Good [3] puis appliquée par de nombreux autres auteurs (voir, par exemple, l'article de Piepel [8]). La démarche classique consiste à utiliser un modèle **multiplicatif** obtenu comme

¹ Laboratoire de Mathématiques Appliquées de Pau (LMAP), CNRS-UMR 5142, Avenue de l'Université, 64000 PAU.
E-mail : hanan.hanna@etud.univ-pau.fr and E-mail : walter.tinsson@univ-pau.fr

produit de modèles usuels pour chacun des composants principaux. Un tel modèle peut ensuite être ajusté à l'aide d'un plan **produit** obtenu comme produit cartésien de plans pour mélanges associés à chacun des composants principaux. Le problème avec une telle démarche est qu'elle se révèle rapidement inutilisable en pratique car, sauf cas particulier où seulement deux composants principaux interviennent, les plans et modèles obtenus sont alors généralement de très grande taille. Nous proposons dans cet article une démarche alternative, basée sur des modèles polynomiaux d'ordre un, beaucoup plus adaptée à des situations de type **criblage** où un grand nombre de composants (principaux et secondaires) peuvent intervenir.

Cet article est structuré de la manière suivante. La section 2 présente des généralités sur la problématique des mélanges. La section 3 est consacrée aux MoM de type A (pour lesquels les proportions des composants principaux sont fixées) alors que la section 4 est dédiée au cas général des MoM de type B (pour lesquels aucune proportion n'est fixée a priori).

2. Généralités sur les mélanges

2.1. Cas des mélanges classiques

Soit un phénomène aléatoire dépendant des proportions x_1, x_2, \dots, x_p des p composants d'un mélange. Supposons une réponse numérique mesurée $Y(x)$ pour le mélange de proportions $x = {}^t(x_1, x_2, \dots, x_p)$ telle que :

$$Y(x) = f(x) + \varepsilon(x)$$

avec $\varepsilon(x)$ variable aléatoire rendant compte du résidu. La spécificité d'un mélange provient du fait que :

$$\forall i = 1, \dots, p, 0 \leq x_i \leq 1 \text{ et } \sum_{i=1}^p x_i = 1. \quad (1)$$

Cette contrainte entraîne que les modèles polynomiaux usuels sont inutilisables car surparamétrés. Voici la forme classique des modèles pour mélanges d'ordre 1 et 2 (voir par exemple l'ouvrage de Cornell [2]) :

$$f(x_1, \dots, x_p) = \sum_{i=1}^p b_i x_i \text{ et } f(x_1, \dots, x_p) = \sum_{i=1}^p b_i x_i + \sum_{i < j} b_{ij} x_i x_j. \quad (2)$$

D'une manière générale, le modèle f étant linéaire, nous considérerons par la suite l'écriture matricielle suivante :

$$Y = X\beta + \varepsilon$$

avec $Y \in \mathbb{R}^n$ vecteur des observations, $\varepsilon \in \mathbb{R}^n$ vecteur des résidus, $\beta \in \mathbb{R}^r$ vecteur des coefficients inconnus et $X \in \mathcal{M}(n, r)$ matrice du modèle. Les hypothèses classiques sur les résidus (centrage, indépendance et homoscedasticité) se traduisent par :

$$E(Y) = X\beta \text{ et } \text{Var}(Y) = \sigma^2 I_n.$$

Si X est une matrice de plein rang alors l'estimateur des moindres carrés de β est donné par :

$$\hat{\beta} = ({}^t X X)^{-1} {}^t X Y \quad (3)$$

Concernant maintenant les plans d'expériences adaptés à des situations de mélanges (voir Cornell [2] ou Goupy [6]) il est très courant d'utiliser des **réseaux de Scheffé** de type $\{p, q\}$ (où $q \in \mathbb{N}^*$, fixé par l'utilisateur, est l'ordre du réseau). Ces plans contiennent toutes les expériences telles que les proportions des p composants sont des multiples de $(1/q)$. Les réseaux de Scheffé de type $\{p, 1\}$ contiennent alors tous les corps purs ($x_i = 1$) et sont des plans saturés permettant l'estimation des coefficients du modèle d'ordre un présenté en (2). Les réseaux de Scheffé de type $\{p, 2\}$ contiennent cette fois tous les corps purs ($x_i = 1$) ainsi que tous les mélanges binaires équilibrés ($x_i = x_j = 1/2$ pour $i \neq j$) et sont des plans saturés permettant l'estimation des coefficients du modèle d'ordre deux présenté en (2).

2.2. Cas des mélanges de mélanges

On considère ici une situation avec p composants principaux, en proportions x_1, x_2, \dots, x_p , tels que le composant principal i ($i = 1, \dots, p$) est lui même obtenu comme mélange de q_i composants secondaires. Pour le composant principal i soit ω_{ij} la proportion dans le mélange de son j -ème composant secondaire. Il est souvent plus pratique de considérer les **proportions relatives** x_{ij} des composants secondaires définies par :

$$\forall i = 1, \dots, p \text{ et } \forall j = 1, \dots, q_i, x_{ij} = \omega_{ij}/x_i.$$

Les contraintes sur les proportions sont alors données par :

$$\forall i = 1, \dots, p, \forall j = 1, \dots, q_i, 0 < x_i < 1, \sum_{i=1}^p x_i = 1, 0 \leq x_{ij} \leq 1, \sum_{j=1}^{q_i} x_{ij} = 1. \quad (4)$$

Ceci entraîne donc que $\sum_i \sum_j x_{ij} = p$ ou encore $\sum_i \sum_j \omega_{ij} = 1$. Le cas particulier des mélanges classiques est celui où chaque composant (principal) est un corps pur donc $q_i = 1$. Remarquons que l'on fait ici l'hypothèse courante sur les composants principaux excluant les cas limites 0 et 1 pour leurs proportions. En d'autres termes on impose que tous les composants principaux soient présents dans le mélange. Ceci est primordial pour avoir un maximum d'information (car ne pas utiliser un des composants principaux entraîne évidemment que tous ses composants secondaires ne pourront pas intervenir dans l'expérience).

Exemple. Considérons la fabrication d'un médicament obtenu à partir de $p = 2$ composant principaux, destinés à être mélangés, qui sont une pâte et un gel. Supposons que chaque pâte résulte du mélange de $q_1 = 3$ pâtes fournies par 3 laboratoires différents et chaque gel résulte du mélange de $q_2 = 2$ gels de provenances différentes. Une expérience correspond (par exemple) au mélange suivant :

Pâte : 70%	pâte 1 : 60%	Gel : 30%	gel 1 : 80%
	pâte 2 : 30%		gel 2 : 20%
	pâte 3 : 10%		

Elle est repérée par les valeurs :

$$x_1 = 0.7, x_2 = 0.3 \text{ et } x_{11} = 0.6, x_{12} = 0.3, x_{13} = 0.1, x_{21} = 0.8, x_{22} = 0.2.$$

Si les proportions dans le mélange des composants secondaires sont requises alors :

$$\omega_{11} = 0.42, \omega_{12} = 0.21, \omega_{13} = 0.07 \text{ et } \omega_{21} = 0.24, \omega_{22} = 0.06.$$

Les modélisations proposées dans la littérature pour des MoM consistent à utiliser des modèles **multiplicatifs**. Dans le cas des MoM de type A (pour lesquels seuls les effets des composants secondaires sont d'intérêt) il convient alors de construire un modèle pour mélange (classique) f_i associé au composant principal i ($i = 1, \dots, p$) et le modèle global utilisé est alors donné par (avec x vecteur repérant toutes les proportions x_{ij} des composants secondaires) :

$$f(x) = \prod_{i=1}^p f_i(x_{i1}, x_{i2}, \dots, x_{iq_i}). \quad (5)$$

En supposant le modèle (5) utilisé avec f_i modèle pour mélanges (classique) d'ordre m_i , il est courant d'ajuster ce modèle à l'aide d'un réseau de Scheffé de type $\{q_i, m_i\}$. L'idée proposée dans la littérature est alors d'utiliser de manière globale le **réseau multiple de Scheffé** \mathcal{D} obtenu avec les produits cartésiens suivants :

$$\mathcal{D} = \{q_1, m_1\} \times \{q_2, m_2\} \times \dots \times \{q_p, m_p\}.$$

Le problème principal de cette méthode est qu'elle conduit à des modèles (et donc des plans) de grande taille. Le modèle est généralement construit avec tous les f_i d'ordre un et donc le nombre de coefficients inconnus est égal à $r = q_1 q_2 \dots q_p$ (les réseaux de Scheffé de type $\{q_1, 1\}$ étant saturés le plan d'expériences \mathcal{D} a aussi r expériences). Les exemples proposés dans la littérature se limitent généralement à $q = 2$ composants principaux avec un petit nombre de composants secondaires.

Exemple. Reprenons l'exemple précédant avec le mélange de la pâte (à $q_1 = 3$ composants secondaires) et du gel (à $q_2 = 2$ composants secondaires). Les modèles pour mélanges classiques d'ordre un pour les deux composants principaux sont donnés par :

$$f_1(x_{11}, x_{12}, x_{13}) = b_{11}x_{11} + b_{12}x_{12} + b_{13}x_{13} \text{ et } f_2(x_{21}, x_{22}) = b_{21}x_{21} + b_{22}x_{22}.$$

Le modèle multiplicatif obtenu avec f_1 et f_2 a alors la forme suivante :

$$f(x_{11}, x_{12}, x_{13}, x_{21}, x_{22}) = b_1 x_{11} x_{21} + b_2 x_{11} x_{22} + b_3 x_{12} x_{21} + b_4 x_{12} x_{22} + b_5 x_{13} x_{21} + b_6 x_{13} x_{22}.$$

Un plan d'expériences couramment utilisé pour ajuster un tel modèle est le réseau de Scheffé multiple $\{3, 1\} \times \{2, 1\}$ en 6 expériences données dans la matrice du plan :

$$D = \left[\begin{array}{ccc|cc} 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 1 \end{array} \right]$$

Dans ce cadre où peu de composants principaux et peu de composants secondaires interviennent ce modèle et ce plan restent relativement économiques.

3. Mélanges à deux niveaux de type A

3.1. Modélisation

Considérons dans cette partie la situation où les proportions des composants principaux sont fixées. Nous avons déjà vu que pour plus de $p = 2$ composants principaux le modèle multiplicatif devient rapidement ingérable à cause de sa taille. Sorti du cas particulier où peu de composants interviennent il semblerait plus naturel de considérer une modélisation à l'aide d'un polynôme classique d'ordre un, donc (avec x vecteur repérant toutes les proportions x_{ij} des composants secondaires) :

$$f(x) = b_0 + \sum_{j=1}^{q_1} b_{1j}x_{1j} + \sum_{j=1}^{q_2} b_{2j}x_{2j} + \dots + \sum_{j=1}^{q_p} b_{pj}x_{pj}. \quad (6)$$

Attention au fait que le modèle proposé ici ne traduit pas forcément de manière exacte la loi d'évolution du phénomène étudié (inconnue a priori). Il n'est en fait qu'une approximation de cette loi, obtenue ici mathématiquement à l'aide d'un développement limité d'ordre un. Ce type de modèle peut être très utile et peu coûteux dans certains cas mais inefficace dans d'autres. La matrice d'un tel modèle est donnée par :

$$X = [\mathbb{I}_n \mid D_1 \mid D_2 \mid \dots \mid D_p]$$

avec $D_i \in \mathcal{M}(n, q_i)$ ($i = 1, \dots, p$) matrice contenant les proportions des q_i composants secondaires du i -ème composant principal. Dans le cas particulier des mélanges classiques il n'y avait qu'une seule contrainte à respecter ($\sum_i x_i = 1$) et ceci pouvait facilement être réalisé en supprimant la constante polynomiale b_0 . Maintenant, d'après la relation (4), p contraintes interviennent sur les composants secondaires. Nous proposons d'en tenir compte via les contraintes d'identification suivantes :

$$\forall i = 1, \dots, p, \sum_{j=1}^{q_i} b_{ij} = 0. \quad (7)$$

Remarquons que d'autres contraintes peuvent être utilisées, poser par exemple $b_{iq_i} = 0$ (pour $i = 1, \dots, p$) est une autre possibilité. D'un point de vue matriciel X ne peut jamais être de plein rang (car la somme des colonnes de chaque D_i est égale à \mathbb{I}_n). Tenir compte des contraintes (7) en les utilisant pour systématiquement supprimer le dernier coefficient b_{iq_i} ($i = 1, \dots, p$) conduit alors à la **matrice du modèle "centrée"** X^* (pouvant être, elle, de plein rang) donnée par :

$$X^* = [\mathbb{I}_n \mid D_1 A_{q_1} \mid D_2 A_{q_2} \mid \dots \mid D_p A_{q_p}] \text{ avec } A_{q_i} = \begin{bmatrix} I_{q_i-1} \\ -{}^t \mathbb{I}_{q_i-1} \end{bmatrix}.$$

Exemple. Toujours pour l'exemple concernant le mélange de la pâte et du gel, il vient pour la

matrice centrée du modèle :

$$X^* = [\mathbb{I}_n \mid D_1 A_3 \mid D_2 A_2] = \left[\begin{array}{c|cc|c} 1 & 1 & 0 & 1 \\ 1 & 1 & 0 & -1 \\ \hline 1 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & -1 \\ \hline 1 & -1 & -1 & 1 \\ 1 & -1 & -1 & -1 \end{array} \right].$$

Remarquons que la matrice A_{q_i} ($i = 1, \dots, p$) vérifie toujours :

$${}^t \mathbb{I}_{q_i} A_{q_i} = 0 \text{ et } {}^t A_{q_i} A_{q_i} = I_{q_i-1} + J_{q_i-1}. \quad (8)$$

La matrice d'information de ce modèle, sous les contraintes postulées, est alors :

$${}^t X^* X^* = \begin{bmatrix} n & {}^t \mathbb{I}_n D_1 A_{q_1} & \dots & {}^t \mathbb{I}_n D_p A_{q_p} \\ {}^t A_{q_1} {}^t D_1 \mathbb{I}_n & {}^t A_{q_1} {}^t D_1 D_1 A_{q_1} & & {}^t A_{q_1} {}^t D_1 D_p A_{q_p} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ {}^t A_{q_p} {}^t D_p \mathbb{I}_n & {}^t A_{q_p} {}^t D_p D_1 A_{q_1} & \dots & {}^t A_{q_p} {}^t D_p D_p A_{q_p} \end{bmatrix}$$

3.2. Plans d'expériences

Déterminons ici des configurations de petite taille adaptées à l'ajustement du modèle (6). Dans l'optique de simplifier la structure de la matrice d'information ${}^t X^* X^*$ orientons-nous vers la propriété suivante :

Définition 1. Un plan d'expériences pour mélanges à deux niveaux de type A est dit **équilibré** si et seulement si (en notant $J_{q_i q_j} = \mathbb{I}_{q_i} {}^t \mathbb{I}_{q_j}$) :

$$\forall i, j = 1, \dots, p \text{ avec } i \neq j, {}^t D_i D_j = a_{ij} J_{q_i q_j}, {}^t D_i D_i = b_i I_{q_i}, {}^t \mathbb{I}_n D_i = c_i {}^t \mathbb{I}_{q_i}$$

avec a_{ij}, b_i et c_i constantes réelles.

Remarquons que la condition ${}^t D_i D_i = b_i I_{q_i}$ implique que seuls des corps purs pourront intervenir pour les composants secondaires (puisque D_i ne contient que des proportions c'est-à-dire des valeurs positives). Tout plan équilibré va alors être d'analyse aisée puisque :

Proposition 2. Pour tout plan d'expériences **équilibré** pour mélanges à deux niveaux de type A la matrice d'information, sous contraintes d'identifiabilité, est donnée par :

$${}^t X^* X^* = \text{diag} \left[n, b_1 (I_{q_1-1} + J_{q_1-1}), \dots, b_p (I_{q_p-1} + J_{q_p-1}) \right].$$

Démonstration. D'après les relations (8) vérifiées par les matrices A_i les éléments de la matrice ${}^t X^* X^*$ sont donc de la forme suivante en cas d'équilibre du plan :

$$\begin{cases} {}^t \mathbb{I}_n D_i A_{q_i} & = c_i {}^t \mathbb{I}_{q_i} A_{q_i} = 0 \\ {}^t A_{q_i} {}^t D_i D_i A_{q_i} & = b_i {}^t A_{q_i} A_{q_i} = b_i (I_{q_i-1} + J_{q_i-1}) \\ {}^t A_{q_i} {}^t D_i D_j A_{q_j} & = {}^t A_{q_i} (a_{ij} J_{q_i q_j}) A_{q_j} = a_{ij} ({}^t A_{q_i} \mathbb{I}_{q_i}) ({}^t \mathbb{I}_{q_j} A_{q_j}) = 0 \end{cases} \quad \square$$

On vérifie que tout réseau de Scheffé multiple $\{q_1, 1\} \times \dots \times \{q_p, 1\}$ est bien équilibré, mais de taille généralement rédhibitoire pour ajuster le modèle (6). La matrice du modèle ne contient donc que les valeurs 0 ou 1 et l'idée utilisée par la suite est alors d'identifier ce type de matrice à la matrice du modèle additif obtenu dans le cas de **facteurs qualitatifs** à q_1, q_2, \dots, q_p modalités (les colonnes de X sont alors des indicatrices des différentes modalités). Par exemple, pour le cas du réseau de Scheffé multiple $\{q_1, 1\} \times \dots \times \{q_p, 1\}$ la matrice du modèle (6) est identique à celle obtenue avec un plan factoriel complet pour m facteurs qualitatifs à q_1, q_2, \dots, q_p modalités. Une telle identification va permettre d'utiliser par la suite toutes les configurations orthogonales classiques déjà construites pour des facteurs qualitatifs.

Rappelons que dans le cas de m facteurs qualitatifs à q_1, q_2, \dots, q_p modalités un plan d'expériences est qualifié d'**orthogonal** (on parle aussi parfois d'orthogonalité forte ou stricte, voir par exemple Benoist et al. [1]) si et seulement si :

$$\forall i, j = 1, \dots, p \text{ avec } i \neq j, {}^t X_i X_j = a_{ij} J_{q_i q_j}$$

où X_i désigne la matrice des indicatrices des modalités du i -ème facteur qualitatif. Dans une telle situation la matrice ${}^t X_i X_j$ est aussi une matrice d'**incidence** dont les éléments donnent le nombre d'occurrences de chaque couple de modalités des facteurs i et j . Il en découle alors que pour tout plan orthogonal pour facteurs qualitatifs les propriétés suivantes sont aussi vérifiées (voir, par exemple, Tinsson [12]) :

$$\forall i, j = 1, \dots, p \text{ avec } i \neq j, a_{ij} = \frac{n}{q_i q_j}, {}^t X_i X_i = \left(\frac{n}{q_i}\right) I_{q_i} \text{ et } {}^t \mathbb{1}_n X_i = \left(\frac{n}{q_i}\right) {}^t \mathbb{1}_{q_i}.$$

On en déduit donc que tout plan **orthogonal** pour m facteurs qualitatifs à q_1, q_2, \dots, q_p modalités peut être assimilé à un plan **équilibré** pour mélanges à deux niveaux, avec m composants principaux à q_1, q_2, \dots, q_p composants secondaires, via l'identification des matrices des indicatrices des modalités X_i aux matrices D_i des proportions des composants secondaires. D'où le résultat suivant :

Proposition 3. *Considérons un plan d'expériences équilibré pour mélanges à deux niveaux de type A, obtenu à partir d'un plan orthogonal pour facteurs qualitatifs. Si les composants secondaires des p composants principaux sont au nombre de q_1, q_2, \dots, q_p alors les estimateurs des moindres carrés des coefficients du modèle (6) sont :*

$$\widehat{b}_0 = \bar{Y} \text{ et } \forall i = 1, \dots, p, \forall j = 1, \dots, q_i, \widehat{b}_{ij} = \bar{Y}_{ij} - \bar{Y}$$

où \bar{Y}_{ij} désigne la moyenne des réponses pour lesquelles le composant secondaire j du composant principal i intervient. Les dispersions associées sont :

$$\text{Var}(\widehat{b}_0) = \frac{\sigma^2}{n} \text{ et } \forall i = 1, \dots, p, \forall j = 1, \dots, q_i, \text{Var}(\widehat{b}_{ij}) = \frac{\sigma^2}{n} (q_i - 1).$$

Démonstration. Pour les dispersions la forme de la matrice d'information est donnée à la proposition 2. Il s'agit d'une matrice diagonale par blocs à blocs complètement symétriques, son

inverse a donc la même structure avec :

$$(aI_n + bJ_n)^{-1} = \frac{1}{a} \left(I_n - \frac{b}{a + nb} J_n \right).$$

Concernant les estimateurs des moindres carrés il suffit de déterminer $({}^tX^*X^*)^{-1}{}^tX^*Y$. Le fait que chaque matrice D_i soit à composantes 0 ou 1 entraîne le résultat faisant intervenir les valeurs moyennes \bar{Y}_{ij} . Remarquons que tous ces résultats sont obtenus sous les contraintes (7) donc ne font pas intervenir les coefficients b_{iq_i} qui ont été supprimés. On vérifie cependant que les formules générales données restent encore vraies pour ces coefficients, à partir du développement de l'expression :

$$\forall i = 1, \dots, p, b_{iq_i} = - \sum_{j=1}^{q_i-1} b_{ij}.$$

Voir aussi Tinsson [12] pour une démonstration complète avec des facteurs qualitatifs \square

Il découle de tout ceci qu'il est alors souvent possible de mettre en oeuvre des plans équilibrés de petite taille pour mélanges à deux niveaux en réutilisant des configurations orthogonales classiques pour facteurs qualitatifs : fractions régulières de plans factoriels complets de résolution III, carrés latins, tables de Taguchi, tableaux orthogonaux de force 2, etc ...

Exemple. Considérons une situation où $p = 4$ composants principaux interviennent, trois d'entre eux ayant $q_1 = q_2 = q_3 = 2$ composants secondaires et le dernier en ayant $q_4 = 3$ (il y a donc un total de 6 coefficients inconnus à estimer dans le modèle). On peut alors identifier cette situation à celle de 4 facteurs qualitatifs ayant q_1, q_2, q_3 et q_4 modalités. Le plan factoriel complet est de grande taille ($n = 2^3 3 = 24$), orientons-nous vers une configuration plus petite. Le choix peut se porter sur la table de Taguchi $L_{12}2^3 3$ qui est un plan orthogonal pour facteurs qualitatifs en seulement $n = 12$ expériences (voir, par exemple, Pillet [9]) de matrice D donnée ci-dessous (on utilise ici le codage classique obtenu en identifiant les q_i modalités à l'ensemble des éléments du groupe $\mathbb{Z}/q_i\mathbb{Z}$ c'est-à-dire à $\{0, 1, 2, \dots, q_i - 1\}$). La matrice X , donnée parallèlement, est la matrice du modèle pour mélanges à deux niveaux.

$$D = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 2 \\ 0 & 1 & 0 & 2 \\ 1 & 0 & 1 & 2 \\ 1 & 1 & 0 & 2 \end{bmatrix}, X = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}.$$

Ce plan est bien aussi **équilibré** selon la définition 1 avec explicitement :

$$\begin{cases} a_{12} = a_{13} = a_{23} = 3 \text{ et } a_{14} = a_{24} = a_{34} = 2, \\ b_1 = b_2 = b_3 = 6, b_4 = 4 \text{ et } c_1 = c_2 = c_3 = 6, c_4 = 4. \end{cases}$$

Il découle alors de la proposition 3 que (par exemple) :

$$\widehat{b}_{43} = \bar{Y}_{43} - \bar{Y} \text{ et } \text{Var}(\widehat{b}_{43}) = \frac{\sigma^2}{n}(q_4 - 1) = \frac{\sigma^2}{6}$$

avec donc \bar{Y}_{43} moyenne portant sur les 4 dernières observations (faisant intervenir le troisième composant secondaire du composant principal 4).

4. Mélanges à deux niveaux de type B

4.1. Modélisation

Considérons maintenant une situation plus générale où les proportions des composants principaux ne sont plus fixées (et interviennent dans le modèle au même titre que les proportions des composants secondaires). Dans la littérature actuelle il est proposé d'analyser une telle situation toujours à l'aide de modèles multiplicatifs (voir, par exemple, Cornell et Ramsey [4]) : partant d'un modèle multiplicatif pour MoM de type A il est conseillé de le multiplier par un modèle classique pour mélanges faisant intervenir uniquement les composants principaux. Utiliser une telle stratégie va, évidemment, conduire à des modèles de très grande taille (bien souvent inutilisables en pratique). On pourrait alors être tenté d'utiliser, en première analyse, le modèle additif suivant généralisant "naturellement" celui pour les MoM de type A (avec x vecteur repérant toutes les proportions x_i des composants principaux ainsi que les proportions x_{ij} des composants secondaires) :

$$f(x) = b_0 + \sum_{i=1}^p b_i x_i + \sum_{j=1}^{q_1} b_{1j} x_{1j} + \sum_{j=1}^{q_2} b_{2j} x_{2j} + \dots + \sum_{j=1}^{q_p} b_{pj} x_{pj}.$$

Un tel modèle n'est cependant pas réaliste en pratique car il présuppose que les proportions des composants principaux et secondaires soient indépendantes (par exemple, on pourrait avec un tel modèle considérer le cas où tous les x_i sont nuls mais avec des x_{ij} non-nuls, ce qui est absurde). De plus ce modèle n'est pas linéaire par rapport aux proportions x_i (puisque $x_{ij} = \omega_{ij}/x_i$ d'après la partie 2). Pour toutes ces raisons nous proposons donc d'utiliser le modèle suivant faisant intervenir les **proportions réelles** (et non plus relatives) des composants secondaires :

$$\begin{aligned} f(x) &= b_0 + \sum_{i=1}^p b_i x_i + \sum_{j=1}^{q_1} b_{1j} \omega_{1j} + \sum_{j=1}^{q_2} b_{2j} \omega_{2j} + \dots + \sum_{j=1}^{q_p} b_{pj} \omega_{pj} \\ &= b_0 + \sum_{i=1}^p b_i x_i + \sum_{j=1}^{q_1} b_{1j} x_1 x_{1j} + \sum_{j=1}^{q_2} b_{2j} x_2 x_{2j} + \dots + \sum_{j=1}^{q_p} b_{pj} x_p x_{pj}. \end{aligned} \quad (9)$$

Remarquons que ce modèle peut aussi être écrit sous la forme suivante (découlant du fait que $\sum_j x_{ij} = 1$) :

$$f(x) = b_0 + \sum_{i=1}^p \left(b_i x_i + \sum_{j=1}^{q_i} b_{ij} \omega_{ij} \right) = b_0 + \sum_{i=1}^p \sum_{j=1}^{q_i} (b_i + b_{ij}) \omega_{ij}.$$

On déduit de cette forme que ce modèle ne distingue pas les mélanges primaires des mélanges secondaires puisqu'il peut donc être vu comme un simple modèle additif relativement aux proportions réelles ω_{ij} . Ce sont les contraintes expérimentales qui vont permettre de distinguer par la suite les mélanges primaires des mélanges secondaires. Cette forme montre aussi que le modèle a été artificiellement surparamétré. On généralise alors les contraintes d'identification (7) en imposant maintenant que :

$$\sum_{i=1}^p b_i = 0 \text{ et } \forall i = 1, \dots, p, \sum_{j=1}^{q_i} b_{ij} = 0. \quad (10)$$

4.2. Plans d'expériences

Afin de construire des configurations adaptées à l'ajustement du modèle (9) considérons ici des plans d'expériences **produits** (obtenus comme produit cartésien d'un plan pour composants principaux avec un second plan pour composants secondaires).

Concernant les expériences associées aux composants principaux la difficulté principale vient du fait qu'ils doivent tous intervenir dans le mélange (voir la partie 2.2), donc il est exclu d'utiliser encore des proportions binaires du type 0 ou 1. Une configuration expérimentale classique et économe est un **plan axial** (voir Cornell [2]) pour lequel chaque expérience consiste à fixer un des composants principaux à la proportion $(1 - (p - 1)\alpha)$ et les autres à la proportion α (pour $0 \leq \alpha \leq 1/(p - 1)$). Une telle configuration conduit donc à $n_1 = p$ expériences uniformément réparties sur les axes de Cox (chacun d'eux passant par un des sommets ainsi que par le centre de gravité du simplexe). La figure 1 représente la situation pour $p = 3$ composants principaux.

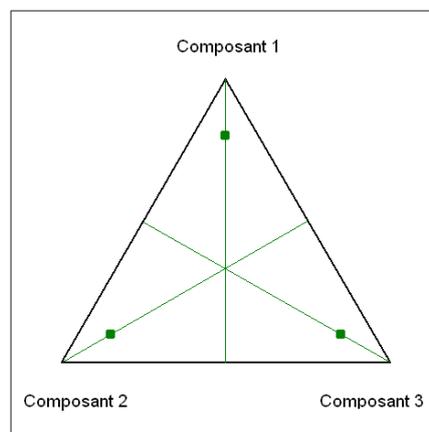


Figure 1. Plan axial pour 3 composants ($\alpha = 0.1$).

Matriciellement, les expériences de ce type de plan sont repérées par :

$$D_{cp} = (1 - p\alpha)I_p + \alpha J_p.$$

Pour chaque expérience du plan axial un plan d'expériences pour les composants secondaires va être réalisé. On va supposer ici que ces p plans pour composants secondaires sont tous de

même taille n_2 et on note $D_{cs}^{[k]}$ la matrice du plan pour composants secondaires associée à la k -ième expérience du plan axial. Il vient donc :

$$D_{cs}^{[k]} = \left[D_1^{[k]} \mid D_2^{[k]} \mid \dots \mid D_p^{[k]} \right]$$

avec donc $D_i^{[k]} \in \mathcal{M}(n_2, q_i)$ ($i = 1, \dots, p$) matrice contenant les proportions des q_i composants secondaires du i -ème composant principal pour les expériences associées à la k -ième expérience du plan axial. Nous allons supposer dans la suite que les expériences pour composants secondaires vérifient la propriété d'**équilibre** (définition 1) pour les p plans ainsi construits, donc :

$$\begin{aligned} \forall k = 1, \dots, p \text{ et } \forall i, j = 1, \dots, p \text{ avec } i \neq j, \\ {}^t D_i^{[k]} D_j^{[k]} = a_{ij} J_{q_i q_j}, {}^t D_i^{[k]} D_i^{[k]} = b_i I_{q_i}, {}^t \mathbb{1}_{n_2} D_i^{[k]} = c_i {}^t \mathbb{1}_{q_i} \end{aligned} \quad (11)$$

Attention au fait que nous imposons donc ici que toutes les constantes d'équilibre (a_{ij} , b_i et c_i) ne dépendent pas de k (cette propriété peut facilement être atteinte en répétant, par exemple, p fois le même plan pour composants secondaires). Toutes ces hypothèses étant vérifiées on cherche naturellement à connaître la forme de la matrice d'information d'un tel plan d'expériences. On a alors le résultat suivant (la démonstration est présentée en annexe A) :

Proposition 4. *Soit un plan d'expériences pour mélanges à deux niveaux de type B analysé à l'aide du modèle linéaire (9). Supposons que ce plan est un plan produit, le plan pour composants principaux étant un plan **axial** (de taille $n_1 = p$) et les p plans associés pour composants secondaires (de taille n_2) étant **équilibrés** selon la relation (11). Il vient alors, sous contraintes d'identifiabilité (10) :*

$${}^t X^* X^* = \text{diag} \left[n, n_2 (1 - p\alpha)^2 (I_{p-1} + J_{p-1}), \Delta_1, \dots, \Delta_p \right]$$

avec le bloc Δ_i ($i = 1, \dots, p$) tel que :

$$\Delta_i = \vartheta_i (I_{q_i-1} + J_{q_i-1}) \text{ où } \vartheta_i = b_i [1 - (2(p-1))\alpha + (p(p-1))\alpha^2].$$

4.3. Applications

Il découle de la proposition 4 un certain nombre de résultats immédiats. Tout d'abord (remarquer simplement que $\det(aI_n + bJ_n) = a^{n-1}(a + nb)$) :

Lemme 5. *Le déterminant de la matrice d'information est donné par :*

$$\det({}^t X^* X^*) = n n_2^{p-1} p (1 - p\alpha)^{2p-2} \left(\prod_{i=1}^p q_i \vartheta_i^{q_i-1} \right).$$

Déterminons maintenant la forme des estimateurs des moindres carrés. Réutilisons pour cela les plans pour mélanges de type A obtenus dans la partie 3 par identification à des plans pour

facteurs qualitatifs (les composants secondaires étant des corps purs). Appelons "bloc k " les n_2 expériences associées à la k -ième expérience du plan (axial) pour composants principaux. \bar{Y}_{ij} étant la moyenne des réponses pour lesquelles le composant secondaire j du composant principal i intervient on pose maintenant :

$\bar{Y}^{[k]}$: moyenne des réponses du bloc k ,
 $\bar{Y}_{ij}^{[k]}$: moyenne des réponses du bloc k pour lesquelles le composant secondaire j du composant principal i intervient.

Proposition 6. Soit un plan d'expériences pour mélanges à deux niveaux de type B analysé à l'aide du modèle linéaire (9). Supposons que ce plan est un plan produit, le plan pour composants principaux étant un plan **axial** (de taille $n_1 = p$) et les p plans associés pour composants secondaires (de taille n_2), obtenus à partir de plans pour facteurs qualitatifs, étant **équilibrés** selon la relation (11). Si les composants secondaires des p composants principaux sont au nombre de q_1, q_2, \dots, q_p alors les **estimateurs des moindres carrés** sont donnés par :

$$\hat{b}_0 = \bar{Y}, \forall i = 1, \dots, p, \forall j = 1, \dots, q_i, \hat{b}_i = \frac{1}{(1 - p\alpha)} (\bar{Y}^{[i]} - \bar{Y})$$

$$\hat{b}_{ij} = \frac{1}{\vartheta_i} \left(\frac{n_2}{q_i} \right) \left[\alpha p (\bar{Y}_{ij} - \bar{Y}) + (1 - p\alpha) (\bar{Y}_{ij}^{[i]} - \bar{Y}^{[i]}) \right]$$

Les dispersions associées sont :

$$\text{Var}(\hat{b}_0) = \frac{\sigma^2}{n}, \text{Var}(\hat{b}_i) = \frac{\sigma^2(p-1)}{n(1-p\alpha)^2} \text{ et } \text{Var}(\hat{b}_{ij}) = \frac{\sigma^2(q_i-1)}{q_i\vartheta_i}.$$

Démonstration. Le résultat pour \hat{b}_0 est immédiat. Concernant \hat{b}_i la proposition 4 permet d'affirmer que si b est le vecteur contenant les effets des composants principaux alors (remarquer que $(I_n + J_n)^{-1} = I_n - (1/n + 1)J_n$) :

$$\hat{b} = \frac{1}{n_2(1-p\alpha)^2} \left(I_{p-1} - \frac{1}{p} J_{p-1} \right) {}^t X_{CP}^* Y$$

Il suffit maintenant de développer ${}^t X_{CP}^* Y = {}^t A_p D_{CP} {}^t B Y$ pour arriver au résultat. Pour les estimateurs \hat{b}_{ij} des effets des composants secondaires on peut facilement trouver le résultat en reprenant la démarche donnant les estimateurs des moindres carrés dans le cas des facteurs qualitatifs : voir, par exemple, Tinsson [12] (remplacer dans les relations d'orthogonalité les b_i par (n_2/q_i) d'après la partie 3.2). Enfin, les différentes dispersions sont obtenues par une application directe de la proposition 4 (il suffit d'inverser cette matrice diagonale par blocs) \square

4.4. Etude d'un exemple

Considérons ici une situation où $p = 3$ composants principaux interviennent, chacun d'eux ayant $q = 3$ composants secondaires. La méthode classique proposée dans la littérature est très lourde car même en utilisant les modèles les plus petits possibles (en l'occurrence d'ordre un) le modèle

multiplicatif associé a un total de 81 coefficients (et il n'est pas simple à interpréter puisque tous ses monômes sont de degré 4). De plus avec un tel modèle un minimum de 81 expériences est requis. Considérons alors tout d'abord un plan axial pour les composants principaux. Il s'agit du plan dont la matrice D_{cp} est donnée ci-dessous (pour $0 \leq \alpha \leq 1/2$) :

$$D_{cp} = \begin{bmatrix} 1-2\alpha & \alpha & \alpha \\ \alpha & 1-2\alpha & \alpha \\ \alpha & \alpha & 1-2\alpha \end{bmatrix}.$$

Pour maintenant les composants secondaires on peut classiquement obtenir des plans de petite taille par identification à des fractions régulières du plan factoriel complet pour 3 facteurs qualitatifs à 3 modalités. Ceci conduit aux trois choix possibles présentés ci-dessous, chacun en $n_2 = 9$ expériences (la matrice $D_{cs}^{[i]}$ est ici associée à la fraction régulière obtenue par la relation $x_1 + x_2 + x_3 \equiv (i-1)[3]$). Ces matrices sont données en utilisant encore le codage classique identifiant les q_i modalités à l'ensemble $\{0, 1, 2, \dots, q_i - 1\}$.

$$D_{cs}^{[1]} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 2 & 1 & 0 \\ 1 & 2 & 0 \\ 2 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 2 \\ 0 & 2 & 1 \\ 0 & 1 & 2 \\ 1 & 1 & 1 \\ 2 & 2 & 2 \end{bmatrix}, D_{cs}^{[2]} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 2 \\ 1 & 2 & 1 \\ 2 & 1 & 1 \\ 2 & 2 & 0 \\ 2 & 0 & 2 \\ 0 & 2 & 2 \end{bmatrix}, D_{cs}^{[3]} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 2 \\ 0 & 2 & 0 \\ 2 & 0 & 0 \\ 2 & 2 & 1 \\ 2 & 1 & 2 \\ 1 & 2 & 2 \\ 1 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 1 \end{bmatrix}.$$

Il est alors possible d'utiliser un plan d'expériences produit pour mélanges à deux niveaux de type B en réalisant les expériences données par la matrice D présentée à la suite. La configuration ainsi présentée ne comporte que $n = n_1 n_2 = 27$ expériences (à comparer au minimum de 81 expériences nécessaires pour ajuster le modèle multiplicatif classique). Les plans pour composants secondaires sont de plus bien équilibrés selon la relation (11) avec ici :

$$\forall i, j = 1, 2, 3 \text{ avec } i \neq j, a_{ij} = 1 \text{ et } b_i = c_i = 3.$$

D'après la proposition 6 les estimateurs des moindres carrés des coefficients du modèle peuvent facilement être déterminés. Remarquons que la valeur de ϑ_i est ici commune à tous les composants principaux avec :

$$\forall i = 1, 2, 3, \vartheta_i = \vartheta = 3(1 - 4\alpha + 6\alpha^2).$$

Il en résulte que l'on obtient (par exemple) en numérotant les expériences dans le même ordre que les lignes de la matrice D :

$$\hat{b}_1 = \frac{1}{(1-3\alpha)} (\bar{Y}^{[1]} - \bar{Y}) = \frac{1}{(1-3\alpha)} \left(\frac{1}{9} \sum_{i=1}^9 Y_i - \bar{Y} \right) \text{ et } \text{Var}(\hat{b}_1) = \frac{2\sigma^2}{27(1-3\alpha)^2}.$$

$$D = \begin{bmatrix} \delta & \alpha & \alpha & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \delta & \alpha & \alpha & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \delta & \alpha & \alpha & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ \hline \alpha & \delta & \alpha & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \delta & \alpha & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \alpha & \delta & \alpha & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ \hline \alpha & \alpha & \delta & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \alpha & \alpha & \delta & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ \alpha & \alpha & \delta & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \alpha & \alpha & \delta & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{avec } \delta = 1 - 2\alpha.$$

Les effets des composants secondaires sont eux obtenus à l'aide de formules telle que :

$$\hat{b}_{12} = \frac{3}{\vartheta} \left[3\alpha (\bar{Y}_{12} - \bar{Y}) + (1 - 3\alpha) (\bar{Y}_{12}^{[1]} - \bar{Y}^{[1]}) \right]$$

avec donc ici :

$$\begin{cases} \bar{Y}_{12} = (Y_3 + Y_5 + Y_8 + Y_{12} + Y_{13} + Y_{14} + Y_{24} + Y_{25} + Y_{26}) / 9 \\ \bar{Y}_{12}^{[1]} = (Y_3 + Y_5 + Y_8) / 3 \end{cases}$$

La dispersion de cet estimateur est donnée par :

$$\text{Var}(\hat{b}_{12}) = \frac{2\sigma^2}{9(1 - 4\alpha + 6\alpha^2)}.$$

L'ajustement du modèle est donc facilement réalisable pour une valeur de α fixée mais le problème pratique pour l'utilisateur concerne le choix de cette valeur. Il peut être réalisé de manière classique

à l'aide, par exemple, du critère de D-efficacité (voir l'ouvrage de Pukelsheim [10] pour la notion d'optimalité d'un plan d'expériences). La **D-efficacité** d'un plan d'expériences est quantifiée ici par (puisque le modèle sous contraintes contient 9 coefficients inconnus) :

$$\phi(\alpha) = (\det({}^tX^*X^*))^{1/9}.$$

Un plan d'expériences est alors D-optimal si et seulement si il maximise la fonction ϕ (ce qui revient à dire qu'il minimise le déterminant de la matrice de dispersion $({}^tX^*X^*)^{-1}$). D'après le lemme 5 on a la forme explicite suivante :

$$\begin{aligned} \det({}^tX^*X^*) &= nn_2^{p-1} p (1-p\alpha)^{2p-2} \left(\prod_{i=1}^p q_i \vartheta_i^{q_i-1} \right) \\ &= 129.140.163 (1-3\alpha)^4 (1-4\alpha+6\alpha^2)^6 \end{aligned}$$

On vérifie que le maximum de ϕ est atteint pour $\alpha = 0$. Ce résultat n'est pas étonnant car un plan d'expériences est d'autant plus D-efficace que les points expérimentaux sont "rejetés" aux limites du domaine expérimental. Cette situation est cependant inutilisable ici car pour $\alpha = 0$ les composants principaux ne sont jamais mélangés entre eux. La figure suivante représente la D-efficacité relative du plan, c'est à dire son efficacité ramenée à celle du plan optimal (donc $\phi(\alpha)/\phi(0)$).

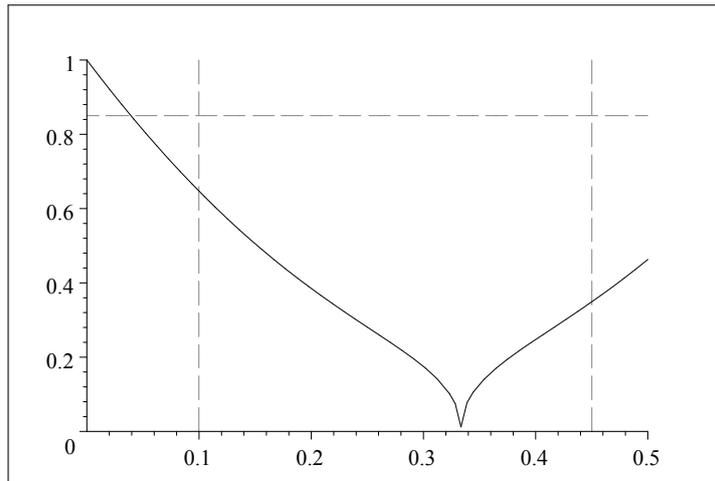


Figure 2. D-efficacité relative en fonction de α .

Remarquons que pour $\alpha = 1/3$ l'efficacité du plan est nulle, ceci était prévisible car dans ce cas la configuration est singulière du fait que les proportions des composants principaux ne varient jamais. A partir de ces résultats il est donc possible de sélectionner une valeur optimale du paramètre α selon divers critères. Il est par exemple possible de construire un plan d'expériences atteignant un certain seuil fixé d'efficacité relativement au plan D-optimal. Si, par exemple, on souhaite une configuration atteignant 85% de la D-efficacité du plan théorique optimal il suffit alors de résoudre (droite horizontale sur la figure 2) :

$$(1-3\alpha)^4 (1-4\alpha+6\alpha^2)^6 = 0.85 \iff \alpha \simeq 0.039.$$

Les composants principaux seront donc mélangés ici en utilisant une proportion de 0.922 pour l'un d'eux et de 0.039 pour les deux autres. Une autre possibilité, plus courante en pratique, consiste à imposer une borne inférieure p_0 pour les proportions des composants principaux. Si, par exemple, il est souhaité ici que chaque composant principal intervienne dans le mélange avec une proportion minimale de $p_0 = 0.1$ les contraintes sont donc (droites verticales sur la figure 2) :

$$\alpha \geq 0.1 \text{ et } 1 - 2\alpha \geq 0.1 \Leftrightarrow \alpha \leq 0.45.$$

Il suffit, une nouvelle fois, de déterminer le maximum de la D-efficacité relative dans le sous-domaine ainsi déterminé. Dans cet exemple la configuration optimale correspond à $\alpha = 0.1$ donc à des mélanges dont les composants principaux utilisent une proportion de 0.8 pour l'un d'eux et de 0.1 pour les deux autres.

5. Conclusion

Il a été prouvé ici que des configurations relativement aisées à contruire peuvent être utilisées dans des situations de mélanges à deux niveaux de type A ou B. Ces configurations sont adaptées à des **modèles additifs** particulièrement utiles lorsqu'un grand nombre de composants interviennent (contrairement aux modèles multiplicatifs classiques qui deviennent ingérables). L'ajustement de ce type de modèle est alors réalisable très facilement et l'utilisateur peut en déduire les effets des différents composants sur la réponse mesurée. Remarquons que si le nombre d'expériences est encore jugé trop important (comme dans l'exemple 4.4 où on réalise 27 expérience pour estimer les 9 coefficients réellement inconnus du modèle) alors il reste possible de réduire la taille du plan d'expériences en utilisant, par exemple, un algorithme classique d'échange (voir, par exemple, Federov [5]). Ce type d'algorithme peut être initialisé avec les plans proposés dans cet articles, leur petite taille (par rapport aux plans produits de la littérature actuelle) permettra à l'agorithme de converger plus rapidement vers un sous-ensemble "optimal" d'expériences.

Références

- [1] D. BENOIST, Y. TOURBIER et S. GERMAIN-TOURBIER : *Plans d'expériences : construction et analyse*. Lavoisier, Tec et Doc, 1994.
- [2] J.A. CORNELL : *Experiments with mixtures : designs, models and the analysis of mixture data*. Wiley Series in Probability and Mathematical Statistics, 2002.
- [3] J.A. CORNELL et I.J. GOOD : *The mixture problem for categorized components*. Journal of American Statistical Society, 65, 329, 339-355, 1970.
- [4] J.A. CORNELL et P.J. RAMSEY : *A generalized mixture model for categorized-components problems with an application to a photoresist-coating experiment*. Technometrics, Vol. 40, No. 1, 48-61, 1998.
- [5] V.V. FEDEROV : *Theory of optimal experiments*. Academic Press Inc. (London), LTD, 1972.
- [6] J. GOUPY : *Plans d'expériences : les mélanges*. Dunod, collection Technique et Ingénierie, 2001.
- [7] I.S. LAMBRAKIS : *Experiments with mixtures : a generalization of the simplex-lattice design*. Journal of the Royal Statistical Society, Series B, 30, 123-136, 1968.
- [8] G.F. PIEPEL : *Modeling methods for mixture-of-mixtures experiments applied to a tablet formulation problem*. Pharmaceutical Development and Technology, 4(4), 593-606, 1999.
- [9] M. PILLET : *Les plans d'expériences par la méthode Taguchi*. Les Editions d'Organisation, 1997.
- [10] F. PUKELSHEIM : *Optimal design of experiments*. Wiley Series in Probability and Mathematical Statistics : Probability and Mathematical Statistics Section, 1993.

- [11] H. SCHEFFÉ : *Experiment with mixtures*. Journal of the Royal Statistical Society, Series B, 344-360, 1958.
- [12] W. TINSSON : *Plans d'expérience : constructions et analyses statistiques*. Collection Mathématiques et Applications, Vol. 67, Springer, 2010.

Annexe A

La matrice du modèle utilisée à la proposition 4 est $X = [\mathbb{I}_n \mid X_{cp} \mid X_{cs}]$ avec $n = n_1 n_2$ nombre total d'expériences, X_{cp} et X_{cs} parties relatives aux composants principaux et secondaires. La structure de X_{cp} est identique à celle de la matrice D_{cp} avec chaque ligne de D_{cp} répétée n_2 fois, donc :

$$X_{cp} = BD_{cp} \text{ avec } B = \text{diag}(\mathbb{I}_{n_2}, \mathbb{I}_{n_2}, \dots, \mathbb{I}_{n_2}) \in \mathcal{M}(n, p).$$

La matrice X_{cs} doit contenir tous les termes croisés de la forme $x_i x_{ij}$, elle a donc la forme suivante en notant ici $\gamma = (1 - (p - 1) \alpha)$:

$$X_{cs} = \begin{bmatrix} \gamma D_1^{[1]} & \alpha D_2^{[1]} & \dots & \alpha D_p^{[1]} \\ \alpha D_1^{[2]} & \gamma D_2^{[2]} & \dots & \alpha D_p^{[2]} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ \alpha D_1^{[p]} & \alpha D_2^{[p]} & \dots & \gamma D_p^{[p]} \end{bmatrix}.$$

Tenons compte maintenant des contraintes d'identification (10). Tout comme à la partie 3.1 utilisons ces contraintes afin de supprimer systématiquement les derniers coefficients (b_p ainsi que b_{iq_i} pour $i = 1, \dots, p$). Ceci conduit encore à la matrice du modèle "centrée" $X^* = [\mathbb{I}_n \mid X_{cp}^* \mid X_{cs}^*]$. Pour la matrice X_{cp}^* il vient simplement (avec la matrice A_i définie à la partie 3.1) $X_{cp}^* = X_{cp} A_p$. Concernant la matrice X_{cs}^* elle est donnée par :

$$X_{cs}^* = \begin{bmatrix} \gamma D_1^{[1]} A_{q_1} & \alpha D_2^{[1]} A_{q_2} & \dots & \alpha D_p^{[1]} A_{q_p} \\ \alpha D_1^{[2]} A_{q_1} & \gamma D_2^{[2]} A_{q_2} & \dots & \alpha D_p^{[2]} A_{q_p} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ \alpha D_1^{[p]} A_{q_1} & \alpha D_2^{[p]} A_{q_2} & \dots & \gamma D_p^{[p]} A_{q_p} \end{bmatrix}.$$

A partir de tout ceci, la matrice d'information (sous contraintes) est :

$${}^t X^* X^* = \begin{bmatrix} n & {}^t \mathbb{I}_n X_{cp}^* & {}^t \mathbb{I}_n X_{cs}^* \\ {}^t X_{cp}^* \mathbb{I}_n & {}^t X_{cp}^* X_{cp}^* & {}^t X_{cp}^* X_{cs}^* \\ {}^t X_{cs}^* \mathbb{I}_n & {}^t X_{cs}^* X_{cp}^* & {}^t X_{cs}^* X_{cs}^* \end{bmatrix}.$$

Déterminons la forme de chacun de ces blocs (on utilise systématiquement les propriétés (8) des matrices A_{q_i} ainsi que l'équilibre (11) afin de simplifier les résultats).

1) Chaque colonne de X_{cp} contient $n_2 (p - 1)$ fois la valeur α et n_2 fois γ donc :

$${}^t \mathbb{I}_n X_{cp}^* = {}^t \mathbb{I}_n X_{cp} A_p = Cte ({}^t \mathbb{I}_p A_p) = 0.$$

2) Le j -ème bloc du vecteur ${}^t\mathbb{I}_n X_{cs}^*$ est (avec $\theta_j = \gamma$, $\theta_i = \alpha$ pour $i \neq j$) :

$$\sum_{i=1}^p \theta_i \left({}^t\mathbb{I}_{n_2} D_j^{[i]} \right) A_{q_j} = \sum_{i=1}^p \theta_i c_j \left({}^t\mathbb{I}_{q_j} A_{q_j} \right) = 0.$$

3) En désignant par ${}^t l_i$ ($i = 1, \dots, p$) les lignes de la matrice D_{cp} du plan axial initial il vient ${}^t X_{cp}^* = [{}^t A_p l_1 {}^t \mathbb{I}_{n_2} \mid \dots \mid {}^t A_p l_p {}^t \mathbb{I}_{n_2}]$. Alors ${}^t X_{cp}^* X_{cs}^* = 0$ car le produit de cette matrice par le j -ème bloc colonne de X_{cs}^* est égal à (avec $\theta_j = \gamma$, $\theta_i = \alpha$ pour $i \neq j$) :

$$\sum_{i=1}^p \theta_i {}^t A_p l_i \left({}^t\mathbb{I}_{n_2} D_j^{[i]} \right) A_{q_j} = \sum_{i=1}^p \theta_i c_j {}^t A_p l_i \left({}^t\mathbb{I}_{q_j} A_{q_j} \right) = 0.$$

4) On a vu que $X_{cp}^* = X_{cp} A_p = B D_{cp} A_p$ avec $D_{cp} = (1 - p\alpha) I_p + \alpha J_p$ donc :

$$\begin{aligned} {}^t X_{cp}^* X_{cp}^* &= {}^t A_p D_{cp} ({}^t B B) D_{cp} A_p \\ &= n_2 {}^t A_p (D_{cp} D_{cp}) A_p \\ &= n_2 {}^t A_p \left[(1 - p\alpha)^2 I_p + \vartheta J_p \right] A_p \text{ avec } \vartheta \in \mathbb{R} \\ &= n_2 (1 - p\alpha)^2 {}^t A_p A_p \text{ avec } {}^t A_p A_p = I_{p-1} + J_{p-1}. \end{aligned}$$

5) La matrice ${}^t X_{cs}^* X_{cs}^*$ est une matrice en $p \times p$ blocs. Le bloc extradiagonal issu du produit de la ligne i par la colonne j est donné par :

$$\alpha\gamma \left({}^t A_{q_i} {}^t D_i^{[i]} D_j^{[i]} A_{q_j} \right) + \alpha\gamma \left({}^t A_{q_i} {}^t D_i^{[j]} D_j^{[j]} A_{q_j} \right) + \alpha^2 \sum_{k \neq i \text{ et } k \neq j} {}^t A_{q_i} {}^t D_i^{[k]} D_j^{[k]} A_{q_j}$$

Cette expression est nulle puisque par hypothèse d'équilibre ${}^t D_i^{[k]} D_j^{[k]} = a_{ij} J_{q_i q_j}$. Le i -ème bloc diagonal est maintenant donné par :

$$\begin{aligned} \Delta_i &= \gamma^2 \left({}^t A_{q_i} {}^t D_i^{[i]} D_i^{[i]} A_{q_i} \right) + \alpha^2 \sum_{j \neq i} {}^t A_{q_i} {}^t D_i^{[j]} D_i^{[j]} A_{q_i} \\ &= b_i \left[\gamma^2 ({}^t A_{q_i} A_{q_i}) + \alpha^2 \sum_{j \neq i} {}^t A_{q_i} A_{q_i} \right] = b_i [\gamma^2 + (p-1)\alpha^2] (I_{q_i-1} + J_{q_i-1}) \quad \square \end{aligned}$$