

École Doctorale Science de la Terre
et de l'Environnement

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE STRASBOURG

Spécialité : Mécanique des Fluides

Présentée par

Noura FAJRAOUI

**Analyse de sensibilité globale et polynômes de chaos pour
l'estimation des paramètres : application aux transferts en milieu
poreux**

Soutenue le 21 Janvier 2014

Membres du Jury

Directeur de thèse :	M. A. YOUNES,	CR1 CNRS, LHYGES Strasbourg
Co-directeur de thèse :	M. T.A. MARA,	MC, Université de La Réunion
Rapporteur externe :	M. B. SUDRET,	Pr, ETH Zurich
Rapporteur externe :	M. J. CARRERA,	Pr, IDÆA-CSIC
Examineur :	M. A. GUADAGNINI	Pr, POLITECNICO Di Milano
Examineur :	M. P. ACKERER,	DR CNRS, LHYGES Strasbourg
Examineur :	M. F. DELAY,	Pr, Université de Strasbourg

Avant-propos

Les travaux de recherche qui ont fait l'objet de ce mémoire ont été réalisés au sein de l'équipe MONHyC «Méthodes et Outils Numériques pour les Hydrosystèmes Continentaux» du Laboratoire d'HYdrologie et de GéoChimie de Strasbourg, UMR 7515, CNRS.

En tout premier lieu, je tiens à remercier Mr Anis qui par ses qualités scientifiques et humaines, j'ai agréablement vécu l'expérience de la recherche à laquelle il a mis généreusement tout son savoir et toutes ses compétences et sa rigueur pour assurer une réussite qui l'a beaucoup tenu à cœur. Cette belle expérience a été initiée lors de mon stage de master. Avec lui, je dis tout simplement que j'ai beaucoup appris. Je lui dois le plus grand respect. Qu'il trouve ici toute ma reconnaissance.

J'adresse ma profonde gratitude à Mr Thierry qui s'est beaucoup dépensé pour l'aboutissement de ce travail et qui m'a beaucoup impressionnée par ses qualités et son apport dont j'avais énormément besoin.

Je voudrais également remercier Mr Marwan Fahs pour ces encouragements, et pour toute l'aide qu'il m'a apporté, ainsi que Mr François Lehmann et Mr Benjamin Belfort pour tous les conseils précieux, depuis mon master.

Je tiens également à remercier Mr Philippe Ackerer, Directeur de Recherche au CNRS, pour m'avoir accueilli au sein du LHyGeS et de m'avoir offert de très bonnes conditions de travail.

Je suis très reconnaissante à Mr Bruno Sudret et Mr Jésus Carrera d'avoir du temps qu'ils m'ont consacré en tant que rapporteurs sur cette thèse. Je tiens à remercier également Mr Alberto Guadagnini pour avoir accepté de participer au jury ainsi que Mr Frédéric Delay pour avoir présidé la soutenance.

Mes remerciements vont aussi à mes amis que j'ai côtoyés au LHYGES et avec qui j'ai partagé de très bons moments : Fanilo, Sana, Ivan, Laurianne, Nicolas, Simon, Omar, Nejib, Salsabil, Ali.

Je salue aussi: Wissal, Amina, Layal et Karima. Merci pour votre amitié et les précieux moments qu'on a passés ensemble. Merci pour tous. Une pensée spéciale pour mes petites et mes petits amis: Inès, Elyès, Zeineb et Ali.

Je tiens ensuite à remercier mon mari. Merci d'avoir supporté mes sauts d'humeur ces derniers temps. Merci de m'avoir toujours encouragée et soutenue. Merci pour les quelques randonnées en pleine nuit.

Finalement, je dédie ce travail à ma famille qui m'a permis de mener à bien toutes mes études. Une mention très spéciale à mes parents qui n'ont jamais cessé de me soutenir et me pousser pour progresser. Je leur dois une reconnaissance infinie.

Pour n'oublier personne, un grand merci aux personnes qui m'ont soutenue de près ou de loin durant ces années de thèse.

Strasbourg le 26 février 2014

Table des matières

Avant-propos	i
Table des matières	iii
Résumé	vii
Introduction générale	1
 CHAPITRE 1	 5
Modélisation mathématique des transferts en Milieu Poreux	5
1.1 Introduction	6
1.2 L'hydrodynamique en milieu poreux	6
<i>1.2.1 L'écoulement en milieu poreux saturé</i>	<i>6</i>
<i>1.2.1.1 La loi de Darcy</i>	<i>6</i>
<i>1.2.1.2 L'équation de conservation de la masse</i>	<i>7</i>
<i>1.2.2 L'écoulement en milieu poreux non saturé</i>	<i>8</i>
<i>1.2.2.1 La loi de Darcy</i>	<i>8</i>
<i>1.2.2.2 L'équation de conservation de la masse</i>	<i>8</i>
<i>1.2.2.3 Les relations constitutives</i>	<i>9</i>
1.3 Le transport de solutés en milieux poreux	11
<i>1.3.1 La dispersion en milieu poreux</i>	<i>11</i>
<i>1.3.1.1 La diffusion moléculaire</i>	<i>11</i>
<i>1.3.1.2 La dispersion cinématique</i>	<i>12</i>
<i>1.3.1.3 La dispersion hydrodynamique</i>	<i>13</i>
<i>1.3.2 L'équation d'advection dispersion</i>	<i>13</i>
1.4 Le transport réactif en milieu poreux	14
<i>1.4.1 Formulation générale</i>	<i>14</i>
<i>1.4.1.1 Notion des espèces et des composants</i>	<i>14</i>

1.4.1.2	<i>Loi de conservation de la masse</i>	15
1.4.1.3	<i>Loi d'action de la masse</i>	16
1.4.2	Cas des réactions de sorption avec isotherme	17
1.4.2.1	<i>Isotherme linéaire</i>	18
1.4.2.2	<i>Isotherme non linéaire de Langmuir</i>	18
1.4.2.3	<i>Isotherme non linéaire de Freundlich</i>	19
1.5	Résolution numérique	19
1.6	Conclusion	20
CHAPITRE 2		22
Analyse de sensibilité des modèles		22
2.1	Introduction	23
2.2	Analyse d'incertitude	23
2.2.1	<i>Différentes sources d'incertitude</i>	23
2.2.1.1	<i>L'incertitude structurelle</i>	24
2.2.1.2	<i>L'incertitude numérique</i>	24
2.2.1.3	<i>L'incertitude paramétrique</i>	24
2.2.2	<i>La propagation des incertitudes</i>	25
2.2.3	<i>Méthodes pour la propagation d'incertitude</i>	25
2.2.3.1	<i>Méthode des moments</i>	26
2.2.3.2	<i>Les méthodes d'échantillonnage</i>	27
2.2.3.3	<i>La méthode de surface de réponse</i>	28
2.3	Analyse de sensibilité	29
2.3.1	<i>Contexte</i>	29
2.3.2	<i>Les indices de Sobol</i>	30
2.3.3	<i>Les indicateurs basés sur la dérivée</i>	32
2.3.3.1	<i>Indicateur de Morris</i>	33
2.3.3.2	<i>Indicateur de DGSM</i>	35
2.4	Estimation des indices de sensibilité de Sobol	35
2.4.1	<i>La méthode de Sobol</i>	36
2.4.2	<i>La méthode FAST</i>	37
2.5	Quelques méthodes basées sur l'émulation	39
2.5.1	<i>Principe et intérêt</i>	39
2.5.2	<i>Le processus Gaussien</i>	40
2.5.2.1	<i>Représentation d'un processus Gaussien</i>	40
2.5.2.2	<i>Estimation des paramètres du krigeage</i>	41
2.5.2.3	<i>Prédiction du krigeage</i>	42

2.5.3	<i>Polynômes de chaos</i>	42
2.5.3.1	<i>Développement sur chaos polynomial</i>	42
2.5.3.2	<i>Méthode de projection</i>	44
2.5.3.3	<i>Méthode de régression</i>	45
2.5.3.4	<i>Généralisation des Polynômes de Chaos</i>	46
2.5.3.5	<i>Erreur d'estimation</i>	46
2.5.3.6	<i>Chaos polynomial creux et adaptatif</i>	47
2.6	Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory scale porous media	51
CHAPITRE 3		66
L'estimation des paramètres en milieu poreux		66
3.1	Introduction	67
3.2	L'optimisation	68
3.2.1	<i>Le critère quadratique</i>	68
3.2.2	<i>Le maximum de vraisemblance</i>	69
3.2.3	<i>Le maximum à posteriori</i>	70
3.3	Sur les algorithmes d'optimisation	71
3.4	Les algorithmes génétiques	72
3.4.1	<i>Principe général de fonctionnement</i>	73
3.4.2	<i>Description détaillée</i>	74
3.4.2.1	<i>Le codage des paramètres</i>	74
3.4.2.2	<i>La sélection</i>	75
3.4.2.3	<i>Le croisement</i>	76
3.4.2.4	<i>La mutation</i>	77
3.5	Les chaines de Markov	78
3.5.1	<i>Echantillonnage de type Monte Carlo</i>	78
3.5.2	<i>Algorithme de Gibbs</i>	79
3.5.3	<i>Algorithme de Metropolis-Hastings</i>	79
3.5.4	<i>MCMC adaptatif</i>	80
3.5.5	<i>Diagnostics de convergence d'une chaîne de Markov</i>	81
3.6	Applications à l'inversion de modèle en milieux poreux	82
3.6.1	<i>Reactive Transport Parameter Estimation and Global Sensitivity Analysis Using Sparse Polynomial Chaos Expansion</i>	82

3.6.2 Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters 98**CHAPITRE 4 112****Estimation des paramètres pour les milieux à distribution stochastique 112****4.1 Introduction 112****4.2 La décomposition de Karhunen-Loève 114****4.3 Inférence Bayésienne 116***4.3.1 Approche générale 116**4.3.2 Application au champ stochastique 118***4.4 Application pour un problème de diffusion en 1D 118***4.4.1 Description du problème 118**4.4.2 Choix de la fonction de covariance 121**4.4.3 Cas test1 : Profil sinusoïdal de période 1 123**4.4.4 Cas test 2: profil sinusoïdal de période 2 127**4.4.5 Méthode de sélection des modes 128**4.4.6 Application de la méthode de sélection des modes au cas test 2 130***4.5 Application sur un problème d'écoulement 2D 131***4.5.1 Description du problème 131**4.5.2 Choix de la fonction de covariance 133**4.5.3 Cas test1 : écoulement de base de gauche à droite 135**4.5.4 Cas test2 : essai de pompage 137***4.6 Conclusion 140****Conclusion générale 141****Bibliographie 144****Liste des figures 155****Liste des tableaux 157**

Résumé

La gestion des transferts des contaminants en milieu poreux représentent une préoccupation croissante et revêtent un intérêt particulier pour le contrôle de la pollution dans les milieux souterrains et la gestion de la ressource en eau souterraine, ou plus généralement la protection de l'environnement. Les phénomènes d'écoulement et de transport de polluants sont décrits par des lois physiques traduites sous forme d'équations algèbro-différentielles qui dépendent d'un grand nombre de paramètres d'entrée. Pour la plupart, ces paramètres sont mal connus et souvent ne sont pas directement mesurables et/ou leur mesure peut être entachée d'incertitude.

Ces travaux de thèse concernent l'étude de l'analyse de sensibilité globale et l'estimation des paramètres pour des problèmes d'écoulement et de transport en milieux poreux. Pour mener à bien ces travaux, la décomposition en polynômes de chaos est utilisée pour quantifier l'influence des paramètres sur la sortie des modèles numériques utilisés. Cet outil permet non seulement de calculer les indices de sensibilité de Sobol mais représente également un modèle de substitution (ou métamodèle) beaucoup plus rapide à exécuter. Cette dernière caractéristique est alors exploitée pour l'inversion des modèles à partir des données observées. Pour le problème inverse, nous privilégions l'approche Bayésienne qui offre un cadre rigoureux pour l'estimation des paramètres. Dans un second temps, nous avons développé une stratégie efficace permettant de construire des polynômes de chaos creux, où seuls les coefficients dont la contribution sur la variance du modèle est significative, sont retenus. Cette stratégie a donné des résultats très encourageants pour deux problèmes de transport réactif.

La dernière partie de ce travail est consacrée au problème inverse lorsque les entrées du modèle sont des champs stochastiques gaussiens spatialement distribués. La particularité d'un tel problème est qu'il est mal posé car un champ stochastique est défini par une infinité de coefficients. La décomposition de Karhunen-Loève permet de réduire la dimension du problème et également de le régulariser. Toutefois, les résultats de l'inversion par cette méthode fournit des résultats sensibles au choix à priori de la fonction de covariance du champ. Un algorithme de réduction de la dimension basé sur un critère de sélection (critère de Schwartz) est proposé afin de rendre le problème moins sensible à ce choix.

Abstract

The management of transfer of contaminants in porous media is a growing concern and is of particular interest for the control of pollution in underground environments and management of groundwater resources, or more generally the protection of the environment. The flow and transport of pollutants are modeled by physical and phenomenological laws that take the form of differential-algebraic equations. These models may depend on a large number of input parameters. Most of these parameters are well known and are often not directly observable.

This work is concerned with the impact of parameter uncertainty onto model predictions. To this end, the uncertainty and sensitivity analysis is an important step in the numerical simulation, as well as inverse modeling. The first study consists in estimating the model predictive uncertainty given the parameters uncertainty and identifying the most relevant ones. The second study is concerned with the reduction of parameters uncertainty from available observations.

This work concerns the study of global sensitivity analysis and parameter estimation for problems of flow and transport in porous media. To carry out this work, the polynomials chaos expansion is used to quantify the influence of the parameters on the predictions of the numerical model. This tool not only calculate Sobol' sensitivity indices but also provides a surrogate model (or metamodel) that is faster to run. This feature is then exploited for models inversion when observations are available. For the inverse problem, we focus on Bayesian approach that offers a rigorous framework for parameter estimation. In a second step, we developed an effective strategy for constructing a sparse polynomials chaos expansion, where only coefficients whose contribution to the variance of the model is significant, are retained. This strategy has produced very encouraging results for two reactive transport problems.

The last part of this work is devoted to the inverse problem when the inputs of the models are spatially distributed. Such an input is then treated as stochastic fields. The peculiarity of such a problem is that it is ill-posed because a stochastic field is defined by an infinite number of coefficients. The Karhunen-Loeve reduces the dimension of the problem and also allows regularizing it. However, the inversion with this method provides results that are sensitive to the presumed covariance function. An algorithm based on the selection criterion (Schwartz criterion) is proposed to make the problem less sensitive to this choice.

Introduction générale

La compréhension des phénomènes de transfert en milieux poreux est devenue un enjeu majeur compte tenu des problèmes de pollution dans les nappes phréatiques et de la problématique de la gestion des ressources en eau. La modélisation de ces phénomènes repose sur des équations aux dérivées partielles décrivant l'évolution spatio-temporelle des grandeurs tels que la pression, la température, la concentration des espèces chimiques et biologiques. De nos jours, ces équations peuvent être résolues par des méthodes numériques robustes donnant des résultats précis en termes de champs de pression et/ou de concentration et ce même pour des milieux naturels présentant une grande hétérogénéité spatiale. Toutefois, la modélisation des transferts dans les sols est par essence incertaine : d'une part les données disponibles permettant la caractérisation du sol (souvent très hétérogène) sont limitées car coûteuses ; d'autre part les données quand elles sont disponibles sont souvent entachées d'erreurs ; enfin, les modèles mathématiques et numériques sont eux-mêmes incertains car ils ne sont qu'une approximation de la réalité (par exemple la notion du VER, de perméabilité équivalente,...). L'ensemble de ces incertitudes influence de manière considérable les résultats de la modélisation. Ces sources d'incertitudes doivent être quantifiées et leur effet sur la sortie du modèle étudié. Ainsi, les prédictions du modèle doivent non seulement inclure les résultats les plus probables mais également les incertitudes associées.

Au cours de ces dernières années, un intérêt particulier a été porté sur le développement des méthodes de propagation d'incertitude qui sont applicables à un large éventail des problèmes d'écoulement et de transport en milieu poreux (Chen et al., 2005 ; Lu et Zhang, 2006). Toutefois, parmi les paramètres incertains du modèle, certains ont un effet peu important sur la sortie. L'objectif de l'analyse de sensibilité globale est de mesurer l'influence relative des paramètres incertains sur la sortie (Sobol, 1993 ; Homma et Saltelli, 1996). Une telle analyse permet de négliger les paramètres dont l'effet est peu important en fixant leur valeur et ainsi réduire la dimension de l'espace des paramètres. Le modélisateur peut alors se focaliser sur les paramètres les plus pertinents et tenter de réduire l'incertitude de ces derniers, par exemple, en menant des campagnes de mesure. La modélisation inverse pouvant être employée à cette fin.

Dans la littérature, différents types d'études de sensibilité ont été menées pour traiter des problèmes d'écoulement et de transport dans les milieux poreux. Dans ce travail, les

méthodes d'analyse de sensibilité globale ont été privilégiées par rapport aux méthodes de sensibilité locale, parce qu'elles sont indépendantes de la nature du modèle (linéaire, non-linéaire, monotone, continu, discontinu,...). L'analyse de sensibilité globale permet également d'aider le modélisateur dans le cadre du problème inverse pour savoir où et quand placer les mesures pour une meilleure identification des paramètres. En effet, l'idée du problème inverse est d'estimer les paramètres du modèle, connaissant la sortie en quelques points d'observation. L'inversion permet notamment d'estimer des paramètres qui ne peuvent pas être directement mesurés ou difficilement mesurables. Notons que dans le cadre des transferts dans le sol, étant données les erreurs de mesure et de modèle, la modélisation inverse doit fournir non seulement la valeur la plus probable du paramètre mais également quantifier son degré d'incertitude.

Afin de mieux appréhender les phénomènes de transfert dans le sol, nous appliquons dans ce travail de thèse deux approches :

1. L'analyse de sensibilité globale afin d'identifier les entrées influentes,
2. La modélisation inverse afin de mieux caractériser le processus étudié.

Pour l'analyse de sensibilité globale, nous privilégions les méthodes qui considèrent le modèle comme une « boîte noire ». L'analyse de sensibilité globale reposant sur la décomposition de la variance fait partie de ces méthodes. Elle se base sur le calcul des indices de sensibilité dits « de Sobol » (Sobol, 1993; Homma et Saltelli., 1996; Sobol, 2001, Archer et al., 1997, Sudret, 2008) qui mesurent la part de chaque paramètre d'entrée sur la variance totale du modèle.

Concernant l'estimation des paramètres à partir des observations, une méthode globale d'optimisation basée sur les algorithmes génétiques est privilégiée. En effet, les méthodes locales d'optimisation, basées sur le calcul du gradient, sont sujettes à des problèmes de convergence lorsque la solution initiale est loin de l'optimum et/ou en présence de plusieurs minima locaux. Cependant, les algorithmes génétiques offrent une estimation ponctuelle de la valeur optimale et ne permettent pas une description complète de la densité de probabilité. Cette dernière est alors calculée en faisant une estimation des paramètres dans un cadre Bayésien avec une méthode basée sur les chaînes de Markov. Etant donné que la modélisation inverse est très coûteuse en temps de calcul, nous utilisons l'astuce de substituer au modèle numérique original un métamodèle basé sur les polynômes du chaos. Ces derniers sont construits lors de l'analyse de sensibilité globale à partir des évaluations du modèle et permettent un calcul direct des indices de sensibilité de Sobol (Sudret, 2008).

Ce manuscrit est composé de quatre chapitres :

Dans le premier chapitre, nous rappelons les notions de base sur les différents modèles physiques et mathématiques qui régissent les transferts d'eau et de soluté dans un milieu

poreux. Nous discutons brièvement les méthodes numériques adaptées à la résolution de ces modèles mathématiques.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons dans un premier temps, les fondements théoriques de l'analyse d'incertitude et de l'analyse de sensibilité. Nous introduisons également les différents indices de sensibilité ainsi que quelques méthodes d'estimation de ces indices parmi lesquelles les approches basées sur l'émulation. En effet, l'analyse de sensibilité globale se montre efficace pour fournir des informations pertinentes pour l'interprétation des expériences car elle permet de mettre en évidence les principaux paramètres contrôlant la variation de la réponse du modèle ainsi que leurs régions et périodes d'influence. Nous illustrons l'intérêt du développement sur le chaos polynomial (une méthode basée sur l'émulation) pour l'interprétation de deux expériences en laboratoires de transport non réactif. Cette étude a fait l'objet d'un article publié dans le journal de *Water Resources Research* (Fajraoui et al., 2011) qui est inclus à la fin du chapitre 2.

Le troisième chapitre est consacré à la description de quelques approches de modélisation inverse. Après avoir défini, les critères d'optimisation servant à mesurer l'adéquation entre les valeurs mesurées et les valeurs simulées, nous présentons quelques techniques pour résoudre le problème inverse, à savoir les algorithmes génétiques et les chaînes de Markov. Les premiers permettent de déterminer de manière robuste l'optimum global d'une fonction multidimensionnelle. Les seconds sont employés afin de déterminer l'ensemble des solutions probables dans le cadre d'une démarche bayésienne du problème inverse.

Ces méthodes ont été employées pour l'inversion des modèles de transport réactif et d'écoulements dans la zone non saturée du sol. Ce travail est présenté sous la forme de deux articles à la fin du chapitre 3. Le premier article (Fajraoui et al., 2012) publié dans le journal de *Water Air and Soil Pollution*, concerne l'utilisation de l'analyse de sensibilité globale et de l'estimation des paramètres pour deux problèmes de transport réactif en milieu poreux saturé. Le deuxième article (Younes et al., 2013) publié dans *Vadoze Zone Journal* concerne l'estimation des paramètres d'un sol à partir d'une expérience de drainage effectuée au laboratoire. Dans cette étude, l'inversion a été effectuée dans un cadre bayésien en utilisant une méthode d'estimation basée sur les chaînes de Markov.

Le quatrième chapitre de cette thèse est consacré aux problèmes inverses dans le cas où les inconnues sont des champs aléatoires caractérisés par une fonction de covariance. Afin de réduire la dimension du problème, une décomposition de Karhunen-Loève est adoptée pour paramétrer ces champs aléatoires. Toutefois, le nombre d'inconnues pour le problème inverse est fortement conditionné par le choix à priori de la fonction de covariance. Plusieurs questions se posent sur le choix optimal des modes à retenir pour la détermination du champ de conductivité. Afin de réduire davantage la dimension du problème et accélérer la convergence, nous proposons d'utiliser préalablement un critère

de sélection associé à une stratégie d'optimisation permettant d'identifier les modes à retenir pour l'inversion. Cette stratégie est appliquée sur des tests numériques en 1D et 2D.

En fin du manuscrit, nous discutons les résultats obtenus et les perspectives possibles à ce travail de thèse.

Chapitre 1

Modélisation mathématique des transferts en Milieu Poreux

- 1.1 Introduction**
- 1.2 L'hydrodynamique en milieu poreux**
 - 1.2.1 L'écoulement en milieu poreux saturé**
 - 1.2.1.1 La loi de Darcy
 - 1.2.1.2 L'équation de conservation de la masse
 - 1.2.2 L'écoulement en milieu poreux non saturé**
 - 1.2.2.1 La loi de Darcy
 - 1.2.2.2 L'équation de conservation de la masse
 - 1.2.2.3 Les relations constitutives
- 1.3 Le transport de solutés en milieux poreux**
 - 1.3.1 La dispersion en milieu poreux**
 - 1.3.1.1 La diffusion moléculaire
 - 1.3.1.2 La dispersion cinématique
 - 1.3.1.3 La dispersion hydrodynamique
 - 1.3.2 L'équation d'advection dispersion**
- 1.4 Le transport réactif en milieu poreux**
 - 1.4.1 Formulation générale**
 - 1.4.1.1 Notion des espèces et des composants
 - 1.4.1.2 Loi de conservation de la masse
 - 1.4.1.3 Loi d'action de la masse
 - 1.4.2 Cas des réactions de sorption avec isotherme**
 - 1.4.2.1 Isotherme linéaire
 - 1.4.2.2 Isotherme non linéaire de Langmuir
 - 1.4.2.3 Isotherme non linéaire de Freundlich
- 1.5 Résolution numérique**
- 1.6 Conclusion**

1.1 Introduction

Dans ce premier chapitre, nous allons rappeler les équations de base qui décrivent les transferts d'eau et de soluté dans un milieu poreux supposé indéformable (porosité constante au cours du temps). Les équations sont établies à l'échelle du Volume Élémentaire Représentatif (VER) qui permet d'établir une équivalence entre le milieu réel et un milieu fictif continu défini à l'échelle macroscopique (Bear, 1979).

Les phénomènes de transfert d'eau abordés concernent les écoulements dans la partie saturée (transferts linéaires) ainsi que dans la partie non saturée (transferts non linéaires) du sol. Les équations fondamentales qui régissent ces transferts sont l'équation de Darcy et l'équation de conservation de la masse appliquée au fluide.

Les phénomènes de transfert de soluté concernent le transport linéaire de masse ainsi que le transport réactif non linéaire. Le transport linéaire est décrit par des processus physiques tel que la convection et la dispersion. Ces phénomènes sont modélisés par l'équation d'advection-dispersion. Le transport réactif non-linéaire permet de décrire en plus les différents processus chimiques et biologiques qui peuvent se produire lors du transport, tels que les réactions aqueuses, de sorption, de précipitation/dissolution, etc... Ces phénomènes sont modélisés par des systèmes d'équations différentielles ordinaires et/ou d'équations algébriques non-linéaires.

1.2 L'hydrodynamique en milieu poreux

1.2.1 L'écoulement en milieu poreux saturé

Le milieu poreux est dit saturé lorsque tous les pores sont remplis d'eau. Le milieu est dans ce cas formé par deux phases : la phase solide et la phase liquide.

1.2.1.1 La loi de Darcy

La loi Darcy est une loi empirique, obtenue initialement pour un écoulement unidirectionnel dans une colonne remplie par un milieu poreux saturé homogène et traversée par un fluide incompressible. Elle s'écrit :

$$\frac{Q}{S} = -K \frac{H_1 - H_2}{L} \quad (1.1)$$

avec $Q [L^3.T^{-1}]$ le débit traversant la colonne, $(H_1 - H_2)[L]$ la différence de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne, S la section de passage et $K [LT^{-1}]$ la perméabilité ou la conductivité hydraulique.

Cette loi a été généralisée pour tenir compte du gradient de pression et de la gravité séparément. En plusieurs dimensions d'espace, elle s'écrit sous la forme suivante (Bear, 1979) :

$$\mathbf{q} = -\frac{\mathbf{k}}{\mu}(\nabla p + \rho g \nabla z) \quad (1.2)$$

avec $\mathbf{q}$: le vecteur vitesse de Darcy $[LT^{-1}]$;

p : la pression $[ML^{-1}T^{-2}]$;

z : la cote définie selon un axe vertical ascendant $[L]$;

$\mathbf{k}$: le tenseur de perméabilité intrinsèque dépendant uniquement du milieu $[L^2]$.

Dans le cas où la masse volumique est constante, l'équation (1.2) se simplifie sous la forme :

$$\mathbf{q} = -\mathbf{K} \nabla H \quad (1.3)$$

avec $H = \frac{p}{\rho g} + z = h + z$, la charge hydraulique $[L]$ et $\mathbf{K} = \frac{\mathbf{k} \rho g}{\mu}$ le tenseur de conductivité hydraulique qui dépend des propriétés du milieu poreux ainsi que de celles du fluide $[LT^{-1}]$. Dans le cas d'un milieu isotrope, la conductivité hydraulique se réduit à un scalaire $K [LT^{-1}]$.

1.2.1.2 L'équation de conservation de la masse

L'équation de conservation de la masse appliquée au fluide à l'échelle du VER est (Bear, 1979) :

$$\frac{\partial(\varepsilon \rho)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{q}) = \rho Q_s \quad (1.4)$$

avec $\varepsilon [-]$ la porosité et $\rho Q_s [ML^{-3}T^{-1}]$ le flux massique pompé ou injecté.

Dans le cas d'une densité constante, elle se simplifie sous la forme :

$$S_s \frac{\partial H}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{q} = Q_s \quad (1.5)$$

avec $S_s [L^{-1}]$ l'emmagasinement par unité de volume du milieu poreux dû à une variation d'une unité de charge.

1.2.2 L'écoulement en milieu poreux non saturé

Dans ce cas, les pores sont partiellement remplis par le liquide en circulation. Le milieu est donc formé par trois phases : la phase solide, la phase liquide (l'eau) et la phase gazeuse (l'air). La description de l'écoulement fait intervenir dans ce cas la notion de teneur en eau $\theta[-]$ dans le VER qui peut varier entre une valeur résiduelle θ_r et une valeur maximale à saturation θ_s . La pression capillaire $h[L]$ a des valeurs négatives et la conductivité hydraulique du milieu dépend de sa teneur en eau. Des relations empiriques (lois constitutives) permettent de relier la conductivité hydraulique K à la teneur en eau θ , ainsi que cette dernière à la pression capillaire h . Ces lois constitutives dépendent du sol considéré. En général, la diminution de la teneur en eau entraîne une baisse générale de la conductivité hydraulique.

1.2.2.1 La loi de Darcy

Dans le cas d'un milieu non saturé isotrope, la loi de Darcy s'écrit en fonction de la pression capillaire sous la forme (appelée équation de Darcy-Buckingham) :

$$\mathbf{q} = -K(\theta) \nabla (h + z) \quad (1.6)$$

avec $\theta[-]$, la teneur en eau définie par le rapport du volume d'eau dans le VER par le volume total.

1.2.2.2 L'équation de conservation de la masse

L'équation de conservation de la masse sur le VER s'écrit sous sa forme mixte :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + S_s S_w \frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{q} = Q_s \quad (1.7)$$

avec $S_w [-]$ la saturation relative de la phase aqueuse ($S_w = \theta / \theta_s$).

Cette équation est valable pour les écoulements dans la partie saturée ainsi que dans la partie non saturée du sol.

L'équation (1.7) peut être écrite sous forme de pression capillaire :

$$(c(h) + S_s S_w(h)) \frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{q} = Q_s \quad (1.8)$$

avec $c(h) = \frac{\partial \theta}{\partial h}$ la capacité capillaire $[L^{-1}]$.

L'équation de Richards, décrivant les écoulements en milieux poreux saturés et non saturés, est obtenue en combinant l'équation (1.7) avec l'équation de Darcy-Buckingham (1.6) :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + S_s S_w \frac{\partial h}{\partial t} - \nabla \cdot (K(\theta) \nabla (h + z)) = Q_s \quad (1.9)$$

La forme en pression de l'équation de Richards est obtenue en combinant l'équation (1.8) avec l'équation de Darcy-Buckingham (1.6) :

$$(c(h) + S_s S_w(h)) \frac{\partial h}{\partial t} - \nabla \cdot (K(h) \nabla (h + z)) = Q_s \quad (1.10)$$

1.2.2.3 Les relations constitutives

La résolution de l'équation de Richards requiert la définition des relations $K(\theta)$ et $\theta(h)$. Une variété de modèles est proposée dans la littérature pour définir ces relations. Le modèle de Brooks et Corey (1964) et le modèle de van Genuchten-Mualem (1980) sont les plus largement utilisés dans la littérature.

Modèle de Brooks et Corey (1964)

Il est parmi les premiers modèles proposés pour caractériser les paramètres hydrodynamiques d'un sol. La saturation effective $S_e[-]$ est exprimée par une fonction puissance de la pression capillaire ainsi que de la pression d'entrée d'air $h_a = -1/\alpha$.

$$S_e(h) = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \begin{cases} (1/|\alpha h|)^n & h < -1/\alpha \\ 1 & h > -1/\alpha \end{cases} \quad (1.11)$$

La conductivité hydraulique est approchée par :

$$K(S_e) = K_s \times S_e^{(2+L+2/n)} \quad (1.12)$$

où $\alpha[L^{-1}]$ est un paramètre lié à la pression d'entrée d'air, $n[-]$ un paramètre caractéristique de la distribution de la taille des pores, $L[-]$ un paramètre qui permet de tenir compte des corrélations entre les différents pores et de la tortuosité de l'écoulement.

Modèles de Van Genuchten-Mualem (1980)

C'est l'un des modèles analytiques les plus utilisés. La courbe de rétention $\theta(h)$ est approchée par :

$$S_e(h) = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \begin{cases} 1 / \left(1 + |\alpha h|^n\right)^{(1-1/n)} & h < 0 \\ 1 & h \geq 0 \end{cases} \quad (1.13)$$

avec $\alpha[L^{-1}]$ un paramètre de forme lié à la taille des pores et $n[-]$ un paramètre lié à la distribution de la taille des pores. Cette expression permet de mieux représenter la courbe de rétention car elle prend en considération le point d'inflexion sur les courbes $\theta(h)$ et le changement de pente autour de celui-ci.

La conductivité hydraulique est exprimée en fonction de la saturation effective ainsi que de la conductivité hydraulique à saturation par :

$$K(S_e) = \begin{cases} K_s \times S_e^{1/2} \left[1 - (1 - S_e^{1/m})^m\right]^2 & h < 0 \\ K_s & h \geq 0 \end{cases} \quad (1.14)$$

avec $m = 1 - 1/n$.

Une étude a été réalisée par Carsel et Parrish (1988) sur les douze plus importants types de sol suivant la classification de l'US Department of Agriculture (Tableau. 1.1). Cette étude démontre que, pour plusieurs types de sol, ce modèle fournit le meilleur ajustement et la meilleure performance.

Toutefois, les sols à texture fine peuvent être moins bien représentés par le modèle de van-Genuchten, particulièrement à proximité de la saturation. Des modifications ont été proposées par Vogel et al. (2001) en introduisant la notion de hauteur capillaire minimale h_s , qui est l'équivalent de la pression d'entrée d'air dans le modèle de Brooks et Corey, de sorte que la fonction de rétention devienne:

$$\theta = \begin{cases} \theta_r + (\theta_m - \theta_r) / \left(1 + |\alpha h|^n\right)^m & h < h_s \\ \theta_s & h \geq h_s \end{cases} \quad (1.15)$$

où θ_m est un paramètre fictif à estimer ($\theta_m \geq \theta_r$).

La conductivité hydraulique est alors définie par la relation suivante :

$$K(h) = \begin{cases} K_s \times S_e^{1/2} \left[\frac{1 - \left(1 - (S_E^* S_e)^{1/m}\right)^m}{1 - \left(1 - S_E^{*1/m}\right)^m} \right]^2 & S_e < S_E^* \\ K_s & S_e \geq S_E^* \end{cases} \quad (1.16)$$

Tableau 1.1 : Valeur moyenne des paramètres du modèle de van Genuchten pour 12 classes de sol.

Texture	θ_s	θ_r	α	n	K_s
	cm^{-1}				cm d^{-1}
Sand	0.43	0.045	0.145	2.68	712.8
Loamy sand	0.41	0.057	0.124	2.28	350.2
Sandy loam	0.41	0.065	0.075	1.89	106.1
Loam	0.43	0.078	0.036	1.56	24.96
Silt	0.46	0.034	0.016	1.37	6.00
Silt loam	0.45	0.067	0.020	1.41	10.80
Sandy clay loam	0.39	0.100	0.059	1.48	31.44
Clay loam	0.41	0.095	0.019	1.31	6.24
Silty clay loam	0.43	0.089	0.010	1.23	1.68
Sandy clay	0.38	0.100	0.027	1.23	2.88
Silty clay	0.36	0.070	0.005	1.09	0.48
Clay	0.38	0.068	0.008	1.09	4.80

1.3 Le transport de solutés en milieux poreux

1.3.1 La dispersion en milieu poreux

Le processus de dispersion est responsable de la formation d'une zone de mélange lors d'un déplacement de deux fluides miscibles en milieu poreux. Ce processus est le résultat de deux phénomènes : un phénomène physico-chimique (la diffusion moléculaire) et un phénomène purement mécanique (la dispersion cinématique).

1.3.1.1 La diffusion moléculaire

Considérons un fluide au repos où les seuls mouvements possibles se font à l'échelle moléculaire. Si la concentration du fluide n'est pas homogène, c'est-à-dire qu'il existe entre deux points du fluide une différence de concentration, le déplacement aléatoire dû à

l'agitation brownienne aura tendance à uniformiser la concentration dans le milieu. Il y aura donc un transfert de la matière des zones à forte concentration vers les zones à faible concentration. Ce transfert est modélisé par la loi de Fick :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_0 \Delta C \quad (1.17)$$

avec $D_0 [L^2 T^{-1}]$ le coefficient de diffusion moléculaire. Il dépend du soluté, de la température ainsi que du milieu poreux. En effet, dans les milieux poreux, la présence de la phase solide ralentit la diffusion car les espèces aqueuses font des chemins plus longs que dans les milieux libres. Le coefficient de diffusion moléculaire, dit effectif, D^* tient compte de ce phénomène. Ce coefficient est fonction du coefficient de diffusion D_0 et de la tortuosité τ du milieu (définie comme le rapport de la distance sinueuse réelle sur la distance apparente en ligne droite), tel que $D^* = \tau \cdot D_0$.

1.3.1.2 La dispersion cinématique

La dispersion cinématique est un phénomène physico-chimique essentiellement associée à l'hétérogénéité du champ de vitesse au sein du milieu poreux. Trois processus sont essentiellement à l'origine de ce phénomène :

- l'hétérogénéité intrinsèque des vitesses à l'intérieur des pores due au frottement engendré par la viscosité du fluide. Par conséquent, le profil des vitesses à l'intérieur du pore est parabolique.
- la variation des vitesses due à la variation des dimensions des pores.
- la direction de l'écoulement de pore à pore change par rapport à la direction principale de l'écoulement, engendrant ainsi des variations dans la direction des vitesses.

La dispersion cinématique est un phénomène anisotrope où l'étalement de la concentration se fait longitudinalement et transversalement autour de la direction de l'écoulement. La dispersion D_c s'exprime sous une forme tensorielle :

$$D_c = \|V\| (\alpha_l I + (\alpha_t - \alpha_l) E) \quad (1.18)$$

où,

α_l : la dispersivité longitudinale $[L]$;

α_t : la dispersivité transversale $[L]$;

$\|V\|$: la norme de V ;

I : la matrice identité ;

avec E , un tenseur qui dépend de V donné par :

$$E_{ij}(V) = \frac{v_i v_j}{\|V\|^2} \quad (1.19)$$

Généralement, les valeurs des dispersivités transversales sont d'un ordre de grandeur plus faible que celles des dispersivités longitudinales. Anderson (1979) et Klotz et al. (1980) montrent que le rapport α_t / α_l varie entre 6 et 20.

1.3.1.3 La dispersion hydrodynamique

Les phénomènes de diffusion moléculaire et de dispersion cinématique ont lieu simultanément. C'est pourquoi, les effets sont regroupés dans un même coefficient appelé coefficient de dispersion dynamique. Ce coefficient est un tenseur qui s'écrit comme suit :

$$D = D_c + D^* I \quad (1.20)$$

1.3.2 L'équation d'advection dispersion

Le transport conservatif (ou non réactif) d'un soluté en milieu poreux est régi par les processus d'advection (traduit l'entraînement du soluté sous la seule action de l'écoulement du fluide en mouvement) et de dispersion hydrodynamique. L'équation de conservation de la masse appliquée au soluté s'écrit (Bear, 1979) :

$$\frac{\partial(\varepsilon \rho C)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho q C) = \nabla \cdot (\rho \varepsilon D \nabla C) + \rho Q_s C^* \quad (1.21)$$

avec C^* la concentration à la source.

En utilisant (1.4), l'équation d'advection dispersion devient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + q \nabla C = \nabla \cdot (D \nabla C) + \frac{Q_s}{\varepsilon} (C^* - C) \quad (1.22)$$

1.4 Le transport réactif en milieu poreux

Dans le cas où le soluté subit des réactions chimiques ou biologiques durant son transport, l'équation de conservation du soluté s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + L(C) + R(C) = 0 \quad (1.23)$$

où $L(C)$ est l'opérateur de transport rassemblant les phénomènes d'advection et de dispersion et $R(C)$ l'opérateur de chimie qui prend en compte les différentes réactions (aqueuses, de sorption, de précipitation/dissolution,...)

Les processus chimiques et biologiques qui peuvent se produire sont généralement classés selon la vitesse de réaction.

Une réaction est dite à l'équilibre lorsque la vitesse de réaction est suffisamment rapide par rapport à la vitesse de transport. Dans ce cas, l'équilibre thermodynamique est atteint instantanément. Par contre, pour les réactions lentes, l'équilibre local ne peut pas être assuré, et des lois cinétiques sont nécessaires pour décrire la vitesse de réaction. On parle alors de réactions cinétiquement contrôlées. La modélisation des phénomènes chimiques à l'équilibre thermodynamique se fait par des équations algébriques non linéaires alors que la chimie cinétique est gouvernée par des équations différentielles ordinaires. Par conséquent, la résolution de ces deux types d'équations nécessite deux approches différentes (Fahs, 2007). Dans cette thèse, seules les réactions à l'équilibre thermodynamique sont considérées.

1.4.1 Formulation générale

1.4.1.1 Notion des espèces et des composants

L'utilisation de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique permet de simplifier la description des systèmes chimiques. A cet effet, plusieurs modélisateurs utilisent la définition des espèces et des composants pour décrire le système chimique multiespèces. Une espèce chimique est une entité chimique supposée exister réellement dans la solution. Les composants chimiques sont des entités chimiques permettant une description complète de la stœchiométrie d'un système chimique.

Considérons un système chimique formé par N_c espèces aqueuses C_i , N_s espèces de sorption S_i , et N_p espèces de précipitation C_{p_i} . Parmi les espèces C_i (resp, S_i), nous choisissons judicieusement N_x composants aqueux X_j (resp, N_ξ composants de sorption ξ_j), de sorte que nous formons une base de composants linéairement indépendants. Cette base permet d'exprimer toutes les espèces du système comme une combinaison linéaire de tous les composants et ce selon une formule stœchiométrique unique pour chaque espèce. On peut alors écrire les réactions chimiques sous la forme suivante :

Les réactions aqueuses :

$$\sum_{j=1}^{N_x} a_{ij} X_j \rightleftharpoons C_i \quad i = N_x + 1, \dots, N_c \quad (1.24)$$

Les réactions de sorption :

$$\sum_{j=1}^{N_x} a s_{ij} X_j + \sum_{j=1}^{N_x} a \xi_{ij} \xi_j + \rightleftharpoons S_i \quad i = N_\xi + 1, \dots, N_s \quad (1.25)$$

Les réactions de précipitation/dissolution :

$$\sum_{j=1}^{N_x} a p_{ij} X_j \rightleftharpoons C_{p_i} \quad i = 1, \dots, N_p \quad (1.26)$$

avec a_{ij} , $a s_{ij}$, $a \xi_{ij}$ et $a p_{ij}$ les coefficients stœchiométriques. Le nombre de composants servant à décrire un système chimique est égal à la différence entre le nombre d'espèces et le nombre de réactions.

Les systèmes chimiques sont gouvernés par des lois de conservation de la masse et d'action de la masse.

1.4.1.2 Loi de conservation de la masse

La loi de conservation de la masse indique que la concentration totale de chaque composant se conserve tout au long de la réaction. Elle permet de calculer la concentration totale pour chaque composant. Cette concentration est définie comme étant la somme des concentrations de toutes les espèces qui contiennent ce composant. La forme généralisée de la concentration totale d'un composant aqueux X_j est donnée par :

$$Total(X_j) = [X_j] + \sum_{i=N_x+1}^{N_c} a_{ij} [C_i] + \sum_{i=N_\xi+1}^{N_s} a s_{ij} [S_i] + \sum_{i=1}^{N_p} a p_{ij} [C_{p_i}] \quad (1.27)$$

Pour un composant de sorption ξ_j , la concentration totale est donnée par :

$$Total(\xi_j) = [\xi_j] + \sum_{i=N_\xi+1}^{N_s} a_{ij} [S_i] \quad (1.28)$$

La concentration totale d'un composant aqueux est décomposée en concentration totale dissoute (Td) qui résulte des réactions aqueuses et la concentration totale fixée (Tf) qui résulte des réactions de sorption et de précipitation/dissolution.

$$T_j = Total(X_j) = Td_j + Tf_j \quad (1.29)$$

où,

$$Td_j = [X_j] + \sum_{i=N_x+1}^{N_c} a_{ij} [C_i]$$

$$Tf_j = \sum_{i=N_\xi+1}^{N_s} a_{ij} [S_i] + \sum_{i=1}^{N_p} a_{pj} [C_{p_i}]$$

$[X_j], [C_i], [\xi_j], [S_i], [C_{p_i}]$ représentent respectivement les concentrations des composants et des espèces suivants : X_j, C_i, ξ_j, S_i et C_{p_i} .

1.4.1.3 Loi d'action de la masse

La loi d'action de la masse énoncée par Guldberg et Waage en 1864, permet de relier les concentrations des espèces intervenant dans les réactions à l'équilibre thermodynamique.

La loi d'action de la masse pour l'espèce aqueuse C_i est la suivante :

$$\{C_i\} = \Gamma_i \cdot \prod_{j=1}^{N_x} \{X_j\}^{a_{ij}} \quad (1.30)$$

avec $\{C_i\}$, l'activité de l'espèce i et $\{X_j\}$, l'activité du composant j . Γ_i est la constante d'équilibre thermodynamique de l'espèce i qui dépend de l'enthalpie libre ΔG^0 du système chimique, de la pression P , de la température T^0 et de la constante des gaz parfaits R selon :

$$\Gamma_i = \exp\left(-\frac{\Delta G^0(P, T^0)}{RT^0}\right) \quad (1.31)$$

L'activité d'une espèce ou d'un composant est fonction de sa concentration et fait intervenir un coefficient d'activité γ .

$$\{X_k\} = \gamma_k \cdot [X_k] \text{ et } \{C_i\} = \gamma_i \cdot [C_i] \quad (1.32)$$

Ainsi, en remplaçant (1.32) dans (1.30), on obtient une relation entre les concentrations des espèces et les composants :

$$[C_i] = \frac{\Gamma_i}{\gamma_i} \prod_{j=1}^{N_x} (\gamma_j [X_j])^{a_{ij}} \quad i = N_x + 1, \dots, N_c \quad (1.33)$$

Soit $K_i = \frac{\Gamma_i}{\gamma_i} \prod_{j=1}^{N_x} (\gamma_j)^{a_{ij}}$: la constante d'équilibre pour la réaction de formation de l'espèce

C_i , la loi d'action de masse pour les réactions aqueuses devient alors :

$$[C_i] = K_i \cdot \prod_{j=1}^{N_x} [X_j]^{a_{ij}} \quad i = N_x + 1, \dots, N_c \quad (1.34)$$

Pour les réactions de sorption, nous obtenons :

$$[S_i] = K_{S_i} \cdot \prod_{j=1}^{N_x} [X_j]^{a_{S_{ij}}} \cdot \prod_{j=1}^{N_\xi} [\xi_j]^{a_{S_{ij}}^\xi} \quad i = N_\xi + 1, \dots, N_s \quad (1.35)$$

et pour les réactions de précipitation/dissolution :

$$1 = K_{p_i} \cdot \prod_{j=1}^{N_x} [X_j]^{a_{p_{ij}}} \quad i = 1, \dots, N_p \quad (1.36)$$

où, K_{S_i} est la constante d'équilibre pour la réaction de formation de l'espèce S_i et K_{p_i} le produit de solubilité.

1.4.2 Cas des réactions de sorption avec isotherme

Lorsque la réaction de sorption est considérée comme instantanée, la concentration de soluté sorbée S et la concentration de soluté en solution C sont en équilibre et peuvent être reliées par une isotherme, déterminée à une température fixée.

1.4.2.1 Isotherme linéaire

C'est le modèle le plus simple permettant de décrire un phénomène de sorption en équilibre. Il est valable dans les cas de très faibles concentrations :

$$S = K_d C \quad (1.37)$$

Le coefficient K_d est un coefficient de distribution. Cette isotherme est adaptée pour les phénomènes dans lesquels les énergies de sorption sont uniformes quand la concentration augmente et la charge du sorbant est faible.

1.4.2.2 Isotherme non linéaire de Langmuir

Ce modèle est valable sous l'hypothèse que la surface solide possède un nombre fini de sites d'adsorption et possédant la même énergie d'adsorption. Quand tous les sites sont remplis, la surface ne peut plus absorber de solutés. Considérons la réaction de sorption suivante :



La loi d'action de la masse pour cette réaction s'écrit comme suit :

$$K_L = \frac{[SA]}{[A][S]} \quad (1.39)$$

La quantité d'adsorption maximale s'écrit comme suit :

$$S_{\max} = [SA] + [S] \quad (1.40)$$

En remplaçant l'équation (1.39) dans (1.40), on obtient :

$$S_{\max} = [SA] \left(1 + \frac{1}{K_L [A]} \right) \quad (1.41)$$

Soit la relation :

$$[SA] = \frac{S_{\max} K_L [A]}{(1 + K_L [A])} \quad (1.42)$$

La forme de l'isotherme de Langmuir est donc la suivante :

$$S = \frac{S_{\max} K_L C}{(1 + K_L C)} \quad (1.43)$$

1.4.2.3 Isotherme non linéaire de Freundlich

L'isotherme de Freundlich est largement utilisée en hydrogéologie. En effet, elle est très intéressante dans les milieux à faible concentration, ce qui est souvent le cas dans les milieux naturels. Ce modèle a été développé avec l'hypothèse que le nombre de sites d'adsorption est largement supérieur à la quantité de soluté. La relation non linéaire entre C et S s'écrit alors :

$$S = K_f C^{n_f} \quad (1.44)$$

avec K_f une constante positive qui indique la capacité de sorption et n_f le coefficient de Freundlich se rapportant à l'intensité de la sorption. Cette isotherme est utilisée pour décrire la sorption de nombreux métaux et composés organiques notamment les pesticides.

1.5 Résolution numérique

Sauf cas très particuliers, les modèles mathématiques décrits précédemment ne possèdent pas de solution analytique. Il faut donc chercher une solution approchée à ces EDP. Le calcul de cette solution est fait à l'aide de codes de calcul existants au laboratoire et utilisant des méthodes numériques adaptées à chaque type d'équation.

- Les problèmes d'écoulement en milieu poreux hétérogènes sont résolus avec la méthode des Eléments Finis Mixtes (EFM) sur des maillages triangulaires ou quadrangulaire. Cette méthode est bien adaptée pour les milieux fortement hétérogènes et permet d'avoir un champ de vitesse précis avec une composante normale continue entre deux éléments adjacents (Younes et al., 2010).
- Les problèmes bidimensionnels de transport linéaire sont résolus sur des maillages triangulaires non structurés avec la méthode Eulerian Lagrangian Localized Adjoint Method (ELLAM) (Younes et al., 2006). En effet cette méthode permet d'éviter les problèmes de diffusion numérique et d'oscillations non physiques rencontrés avec les méthodes Eulériennes classiques pour le transport à advection dominante. La méthode ELLAM est très efficace car elle s'affranchit du critère CFL (Courant Friedrich Levy) et peut donc utiliser des très grands pas de temps. De plus, la formulation ELLAM développée dans Younes et al. (2006) utilise des points d'intégration numérique à des positions stratégiques et nécessite par conséquent un nombre de points d'intégration très limité.

- Les problèmes de transport réactif monodimensionnel sont résolus en utilisant une combinaison des méthodes Eléments Finis Discontinus de Galerkin (DG) et Volume Finis (FV). La méthode DG est utilisée pour la discrétisation de l'équation d'advection avec une discrétisation explicite en temps. Cette méthode nécessite un strict respect du critère de courant (CFL), mais permet d'avoir des solutions précises pour les problèmes de transport avec front raide (Shuangzhang and Shahrouz , 2005). La méthode FV est utilisée pour la discrétisation de la partie dispersion de l'équation de transport. Le terme réactif non linéaire est résolu à l'aide de la méthode de Newton-Raphson.

1.6 Conclusion

Dans le cadre de ce travail de thèse, les problèmes abordés de transfert en milieu poreux hétérogène concernent aussi bien l'écoulement dans la partie saturée et non saturée du sol, le transport de masse par advection dispersion ainsi que le transport réactif multi espèces. Dans ce chapitre nous avons rappelé les différents modèles mathématiques qui servent à la modélisation de ces phénomènes de transferts en milieux poreux hétérogènes. Nous avons également discuté des méthodes numériques adaptées à la résolution de ces modèles mathématiques. Dans le prochain chapitre, nous allons développer et discuter de l'intérêt de la méthode d'analyse de sensibilité globale pour les transferts en milieu poreux.

Chapitre 2

Analyse de sensibilité des modèles

2.1	Introduction
2.2	Analyse d'incertitude
2.2.1	<i>Différentes sources d'incertitude</i>
2.2.1.1	<i>L'incertitude structurelle</i>
2.2.1.2	<i>L'incertitude numérique</i>
2.2.1.3	<i>L'incertitude paramétrique</i>
2.2.2	<i>La propagation des incertitudes</i>
2.2.3	<i>Méthodes pour la propagation d'incertitude</i>
2.2.3.1	<i>Méthode des moments</i>
2.2.3.2	<i>Les méthodes d'échantillonnage</i>
2.2.3.3	<i>La méthode de surface de réponse</i>
2.3	Analyse de sensibilité
2.3.1	<i>Contexte</i>
2.3.2	<i>Les indices de Sobol</i>
2.3.3	<i>Les indicateurs basés sur la dérivée</i>
2.3.3.1	<i>Indicateur de Morris</i>
2.3.3.2	<i>Indicateur de DGSM</i>
2.4	Estimation des indices de sensibilité de Sobol
2.4.1	<i>La méthode de Sobol</i>
2.4.2	<i>La méthode FAST</i>
2.5	Quelques méthodes basées sur l'émulation
2.5.1	<i>Principe et intérêt</i>
2.5.2	<i>Le processus Gaussien</i>
2.5.2.1	<i>Représentation d'un processus Gaussien</i>
2.5.2.2	<i>Estimation des paramètres du krigeage</i>
2.5.2.3	<i>Prédiction du krigeage</i>
2.5.3	<i>Polynômes de chaos</i>
2.5.3.1	<i>Développement du chaos polynomial</i>
2.5.3.2	<i>Méthode de projection</i>
2.5.3.3	<i>Méthode de régression</i>
2.5.3.4	<i>Généralisation des Polynômes de Chaos</i>
2.5.3.5	<i>Erreur d'estimation</i>

2.5.3.6 *Chaos polynomial creux et adaptatif*

2.6 Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media

2.1 Introduction

De nos jours, les modèles numériques sont largement utilisés pour l'étude des systèmes complexes que ce soit en ingénierie, en science environnementale ou en science économique. Ces modèles, censés représenter fidèlement le système étudié, sont généralement décomposés en sous-modèles. Ils peuvent être phénoménologiques (empiriques) et/ou basés sur les lois de la Physique (lois de conservation). Par exemple, les équations de transfert d'eau et de soluté reposent respectivement sur des lois de conservation de la quantité de mouvement et de la masse alors que l'écoulement en milieu poreux non-saturé nécessite des modèles empiriques pour la rétention d'eau (tels que les modèles de Van-Genuchten ou de Brooks and Corey). La simulation numérique requiert la connaissance et la définition préalables des entrées nécessaires à chaque simulation. Ces dernières caractérisent le système étudié (par exemple, les paramètres physiques comme la conductivité, dispersivité, ...), les sollicitations appliquées (souvent les conditions limites) et impliquent même le choix des sous-modèles. Cependant, les entrées sont sujettes à des incertitudes plus ou moins grandes pouvant rendre la simulation numérique peu utile. Par conséquent, la modélisation doit tenir compte, autant que faire se peut, de la méconnaissance à priori du système étudié. Des prédictions doivent donc être entreprises dans un cadre probabiliste, autrement dit, à toute prédiction doit être associée une incertitude (densité de probabilité, intervalle de confiance, ...). C'est l'objet de l'analyse d'incertitude des modèles. En sortie, l'incertitude ne doit pas être trop large pour que les simulations soient utiles. Elle ne doit pas non plus être trop petite pour que les résultats restent plausibles et proches de la réalité (Leamer, 1990). Un compromis doit donc s'opérer lors de la caractérisation à priori des incertitudes en entrée ce qui peut nécessiter plusieurs études successives afin d'obtenir des résultats utiles.

2.2 Analyse d'incertitude

2.2.1 Différentes sources d'incertitude

Les différentes sources d'incertitude peuvent être classées en trois catégories :

2.2.1.1 *L'incertitude structurelle*

Cette incertitude surgit au moment du passage du phénomène réel au modèle mathématique. En effet, les modèles mathématiques sont une approximation de la réalité. Cette approximation est basée sur plusieurs hypothèses simplificatrices qui constituent des sources d'incertitude. A titre d'exemple, l'équation de Richards, utilisée pour décrire l'écoulement dans la partie non saturée du sol, suppose que la phase air est infiniment mobile.

2.2.1.2 *L'incertitude numérique*

En physique des milieux poreux, comme dans plusieurs autres disciplines, les modèles mathématiques sont souvent décrits par des équations aux dérivées partielles traduisant la variation dans le temps et/ou dans l'espace des échanges de quantité de mouvement, de masse ou d'énergie. Pour ces modèles, il n'existe généralement pas de solution analytique et nous avons recours à des solutions numériques. Ces solutions contiennent des imprécisions inhérentes à toute simulation numérique. Ces imprécisions sont dues au fait que nous approchons un système continu par un autre discret (dans l'espace et/ou dans le temps). Ces sources d'incertitude ne peuvent être éliminées complètement, mais seulement réduites en utilisant des discrétisations spatiales et temporelles définies à plus petites échelles. Notons que pour les transferts en milieux poreux, l'échelle de discrétisation spatiale ne doit pas descendre en dessous de l'échelle de validité des équations (échelle du VER). D'autres sources d'incertitudes viennent se rajouter à celles dues à la discrétisation telles que les incertitudes liées aux erreurs de séparation d'opérateurs ou aux erreurs de résolution des systèmes non linéaires.

2.2.1.3 *L'incertitude paramétrique*

Les modèles contiennent souvent un nombre important de paramètres présentant des incertitudes importantes liées à leur estimation, tels que les constantes physiques, les valeurs initiales, les conditions aux limites, la géométrie initiale,... On distingue alors l'incertitude aléatoire de l'incertitude épistémique. L'incertitude aléatoire provient de la variabilité naturelle des paramètres d'entrée du modèle. On l'explique parfois par l'incertitude responsable de l'obtention de résultats différents lorsque l'on répète plusieurs fois dans des conditions identiques une expérience. Alors que l'incertitude épistémique découle du manque de connaissance, telle que l'estimation des paramètres par le biais d'un échantillon ne contenant pas assez de mesures, ou un échantillon non représentatif. Cette incertitude peut être réduite en recueillant des informations supplémentaires.

Les modèles d'écoulement et de transport dans les milieux poreux sont souvent caractérisés par une forte variabilité spatiale et temporelle des processus et des incertitudes sur les paramètres d'entrée. Connaître l'influence des différents paramètres d'entrée et

quantifier l'impact de leur incertitude sur la réponse du modèle constitue alors l'objet de la "propagation des incertitudes" (Saltelli et al., 2006).

2.2.2 La propagation des incertitudes

Une fois les différentes sources d'incertitude identifiées et caractérisées, elles doivent être propagées dans le modèle numérique, afin d'évaluer leur impact sur la variabilité de la sortie du modèle. Pour ce faire, il est nécessaire de choisir une méthode pour explorer le modèle numérique. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux approches probabilistes où les paramètres incertains sont représentés par des variables aléatoires ou des champs stochastiques (Sobol, 1967 ; McKay et al., 1979 ; Faure, 1982). Ces approches ont reçu un intérêt particulier depuis les années 70 et ont été largement utilisées dans la littérature. Avec ces approches, les incertitudes liées aux entrées sont décrites par des distributions de probabilité. L'analyse d'incertitude comporte deux étapes:

1. La détermination des densités de probabilité des paramètres d'entrée : Ceci est accompli à l'aide des techniques d'estimation statistique ou à partir de jugements d'experts. Les techniques d'estimation statistique permettent l'estimation des distributions de probabilité à partir des données disponibles ou par le biais d'un échantillon informatif. Dans les cas où les données disponibles sont limitées et /ou bien non informative, un jugement d'expert fournit les informations sur la distribution de probabilité d'entrée. Ainsi, par exemple, une distribution uniforme est sélectionnée si une seule gamme de valeurs possibles pour une entrée est disponible, mais qu'aucune valeur préférentielle susceptible de se produire n'est favorisée.
2. La propagation de l'incertitude à travers le modèle : il s'agit de propager l'incertitude des paramètres dans le modèle et de caractériser la variabilité induite de la sortie du modèle. Cette dernière sera donc caractérisée par une densité de probabilité qui est dépendante de la variabilité des paramètres d'entrée.

2.2.3 Méthodes pour la propagation d'incertitude

Plusieurs méthodes de propagation d'incertitude ont été proposées dans la littérature. Elles font généralement partie des trois grandes classes de méthodes rappelées ci-dessous. Nous considérons la sortie scalaire Y d'un modèle représentée par une fonction mathématique $f(x)$ où les entrées scalaires $x = \{x_1, \dots, x_n\}$ sont définies sur l'hypercube unité $\Omega_n = [0,1]^n$.

2.2.3.1 Méthode des moments

L'objectif est d'obtenir la moyenne et la variance de $Y = f(x)$ à partir de la connaissance de l'incertitude sur les paramètres d'entrée. Si toutes les variables sont continues, les deux premiers moments sont définis comme suit:

$$\begin{aligned}\mu_Y &= E[f(x)] = \int_{\Omega_n} f(x) p_x(x) dx \\ \sigma_Y^2 &= E[(f(x) - \mu_Y)^2] = \int_{\Omega_n} (f(x) - \mu_Y)^2 p_x(x) dx\end{aligned}\tag{2.1}$$

Ici p_x est la fonction de probabilité conjointe correspondant aux distributions des paramètres d'entrée. Ces deux moments peuvent être évalués à l'aide de plusieurs méthodes comme par exemple la méthode de quadrature ou la méthode de perturbation.

1. La méthode de quadrature : la valeur numérique des intégrales est approchée par une somme pondérée prise en un certain nombre de points du domaine d'intégration judicieusement choisis.
2. La méthode de perturbation : elle est utilisée dans de nombreuses applications de transfert en milieux poreux. Elle est basée sur un développement tronqué en série de Taylor de la réponse du modèle au voisinage des valeurs moyennes des paramètres. Dans la pratique, ce développement est tronqué au second ordre car le calcul des termes d'ordre supérieur est une tâche assez complexe.

Le développement en série de Taylor en second ordre du model $Y = f(x)$ au voisinage d'une valeur moyenne x_0 s'exprime de la façon suivante :

$$\begin{aligned}f(x) &= f(x_0) + \sum_{i=1}^n \left. \frac{\partial f}{\partial x_i} \right|_{x=x_0} (x_i - x_{0,i}) + \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \left. \frac{\partial^2 f}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{x=x_0} (x_i - x_{0,i})(x_j - x_{0,j}) + o(\|x - x_0\|^2)\end{aligned}\tag{2.2}$$

Sous l'hypothèse de l'indépendance des paramètres, la moyenne et la variance de la sortie s'écrivent sous la forme suivante :

$$E[Y] \approx f(x_0) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \left. \frac{\partial^2 f}{\partial x_i^2} \right|_{x=x_0} \sigma_{x_i}^2\tag{2.3}$$

$$Var[Y] \approx \sum_{i=1}^n \left(\left. \frac{\partial f}{\partial x_i} \right|_{x=x_0} \right)^2 \sigma_{x_i}^2\tag{2.4}$$

La méthode de perturbation est mal adaptée pour des problèmes fortement non linéaires où des dérivées d'ordre supérieur sont nécessaires pour trouver des résultats précis. Par

ailleurs, la méthode est d'autant moins précise que les intervalles d'incertitude des paramètres sont larges.

2.2.3.2 Les méthodes d'échantillonnage

La méthode de Monte Carlo

Dans la littérature, la méthode de Monte Carlo (MC) existe sous la forme déterministe (calcul d'intégrale) ainsi que sous la forme probabiliste (Calcul de densité de probabilité). Dans ce rapport, nous nous focalisons sur la forme probabiliste. La méthode de MC a été largement utilisée dans l'analyse d'incertitude depuis les années 1940. Pour un problème contenant n paramètres incertains $(x_1, \dots, x_n)$, le principe de base de la méthode est le suivant :

1. générer un échantillon de N réalisations du vecteur $(x_1, \dots, x_n)$ à partir de leur densité de probabilité jointe ;
3. calculer la sortie du modèle déterministe pour chaque jeu de paramètre d'entrée ;
4. calculer les statistiques de la distribution de la sortie : moyenne, variance, densité de probabilité, ...

Ainsi, Il est possible d'estimer l'espérance et la variance de la sortie Y en utilisant les expressions suivantes :

$$E[Y] \approx \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(x^i) \quad (2.5)$$

$$Var[Y] \approx \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N \left(f(x^i) - E(x) \right)^2 \quad (2.6)$$

La méthode de MC est facile à mettre en œuvre, puisqu'elle se sert du modèle direct comme une boîte noire et ne nécessite aucune modification du code de calcul. Elle est généralement applicable à tous les problèmes d'analyse d'incertitude. L'inconvénient majeur de la méthode est qu'elle est très gourmande en temps de calcul car elle nécessite un nombre important d'échantillons pour garantir une estimation précise des statistiques du modèle.

Plusieurs autres techniques d'échantillonnage, utilisant un nombre d'échantillons moindre que celui requis par la méthode MC, ont été développées dans la littérature. La technique du Latin Hypercube Sampling (LHS), développée par McKay et al. (1979), est l'une des techniques largement utilisée dans la littérature (Dubus et al., 2000 et McMahon et al., 2001).

Latin Hypercube Sampling

Cette technique permet de générer des échantillons avec une meilleure couverture (plus uniforme) du domaine de variation des paramètres que la méthode MC. En effet, les échantillons générés par la méthode MC ont tendance à se regrouper autour de la région de plus forte probabilité et très peu de points seront échantillonnés dans des régions à faible probabilité.

La technique LHS utilise un schéma de simulation par stratification pour balayer tout l'espace des entrées aléatoires du modèle. La technique a été décrite par McKay et al, dans les années 1970 et a, depuis, été utilisée dans différents domaines par de nombreux chercheurs. Le principe de la méthode est le suivant :

1. Diviser la fonction de répartition de chaque variable aléatoire d'entrée en N intervalles équidistants, avec N la taille de l'échantillon fixée à priori. Ainsi, le domaine de variation de chaque paramètre est stratifié en intervalles disjoints et équiprobables.
2. Pour chaque paramètre d'entrée, on échantillonne aléatoirement une seule fois dans chacun de ses sous-intervalles, de tel sorte que toute la gamme de variation du paramètre est explorée. On obtient ainsi, N valeurs pour chaque paramètre, affectée d'un nombre qui correspond au numéro du sous-intervalle. Ces numéros sont ensuite permutés aléatoirement pour donner un nouvel ordre de l'échantillon.
3. Les valeurs ainsi obtenues pour chaque variable sont alors associés dans l'ordre pour obtenir N n -uplets de valeurs.

De cette façon, aucun échantillon ne peut prendre la même valeur pour un même paramètre. Cela donne un échantillon qui est bien réparti sur toute la gamme de variation de chaque entrée, ce qui peut donner une distribution de probabilité plus précise de la sortie. McKay et al. (1979) ont comparé l'échantillonnage de LHS avec un échantillonnage MC et ont constaté que LHS offre de meilleures estimations des statistiques de la sortie.

La méthode LHS suppose que l'échantillonnage est effectué d'une façon indépendante pour chaque paramètre. Une procédure permettant d'imposer des corrélations sur les valeurs de l'échantillon a également été développée dans Iman et Conover (1982) et Iman et Davenport (1982).

2.2.3.3 La méthode de surface de réponse

Les méthodes basées sur l'échantillonnage requièrent souvent un grand nombre de simulations. Ces méthodes sont donc très gourmandes en temps de calcul surtout si une seule simulation avec le modèle direct nécessite plusieurs heures de calcul. Par conséquent,

des alternatives ont été développées en utilisant des méta-modèles ou des modèles de substitution.

Parmi ces alternatives, la méthode de surface de réponse cherche à caractériser la relation entre les paramètres incertains d'entrée et la sortie du modèle. L'idée est de décomposer la sortie en composantes déterministes et composantes stochastiques sous la forme :

$$f(x) = \sum_{i=1}^P f_i \psi_i(x) \quad (2.7)$$

Il s'agit ensuite de :

- Construire un plan d'expérience (plusieurs jeux de paramètres d'entrée) ;
- Evaluer le modèle direct pour ces jeux de paramètres ;
- Ajuster le métamodèle avec les données du modèle direct.

Le métamodèle ainsi construit est ensuite utilisé pour remplacer le modèle direct et toutes les statistiques liées à l'analyse d'incertitude sont calculées à l'aide du métamodèle. Cette méthode a été utilisée dans plusieurs domaines tels que les problèmes de gestion des déchets radioactifs ou les problèmes d'érosion. Les inconvénients de cette approche incluent la difficulté à construire une bonne approximation de la surface de réponse en présence de discontinuités et/ou de non-linéarités.

2.3 Analyse de sensibilité

2.3.1 Contexte

La question majeure qui se pose en effectuant l'analyse d'incertitude est : quelles sont les entrées qui contribuent le plus à l'incertitude en sortie. Autrement dit, si l'on souhaite réduire l'incertitude sur la sortie, quelles sont les entrées qu'il faudrait en priorité mieux caractériser? L'analyse de sensibilité permet de répondre à ces interrogations.

Pour mener à bien une telle analyse, il est primordial d'utiliser un indicateur d'importance fiable et qui soit indépendant de la nature du modèle. Un tel indicateur doit être global, facile à interpréter et si possible peu coûteux à estimer. Dans la suite de ce chapitre, nous allons présenter quelques indices de sensibilité globaux. En particulier, nous nous focaliserons sur les indices basés sur la variance qui sont aussi appelés indices de Sobol. Quelques méthodes d'estimation de ces indices seront développées afin de justifier notre choix pour les applications dans le domaine des transferts en milieu poreux.

Dans ce qui suit, nous considérons sans pertes de généralité que nous nous intéressons à la sortie scalaire d'un modèle représentée par une fonction mathématique $f(x)$ où les

entrées scalaires $x = \{x_1, \dots, x_n\}$ sont définies sur l'hypercube unité $\Omega_n = [0, 1]^n$. Nous ferons l'hypothèse que $f(x)$ est de carré sommable ($f(x) \in L^2$) et que les entrées sont indépendantes. La première hypothèse implique que les prédictions du modèle sont à valeurs finies. La seconde hypothèse, plus forte, suppose qu'a priori le jugement expert exclut les corrélations possibles entre les entrées. Une telle hypothèse peut se justifier lors d'une approche inverse dans le cadre d'une démarche bayésienne où le modélisateur impose un à priori non informatif et peu restrictif sur les entrées à déterminer, limitant ainsi tout biais lors de l'inversion (une telle démarche est entreprise dans le chapitre III). Ceci bien que les résultats de l'inversion puissent à posteriori révéler des corrélations.

Par convenance, nous admettons que les entrées sont uniformément distribuées sur l'hypercube unité. Notons qu'une sortie spatialement et/ou temporellement distribuée ne remet pas en question les développements qui suivent. Les indices de sensibilité dépendront alors de l'espace et/ou du temps. Dans la même logique, le fait que $x \in \Omega_n$, ne particularise pas non plus l'exposé suivant. La transformation isoprobabiliste de Rosenblatt, (1952) permet de se ramener à l'hypercube unité (équation(2.8)). En effet, soit F_i la fonction de répartition de la variable aléatoire x_i , sous l'hypothèse de l'indépendance des variables, la transformation de Rosenblatt s'écrit :

$$\begin{cases} x_1 = F_1(x_1) \\ \vdots \\ x_n = F_n(x_n) \end{cases} \quad (2.8)$$

Enfin, pour l'analyse de sensibilité nous ne considérons que des entrées scalaires (communément appelées paramètres) bien que le dernier chapitre est dédié à l'approche inverse quand les inconnues sont des champs stochastiques (typiquement un champ de conductivité hydraulique).

2.3.2 Les indices de Sobol

La condition $f(x) \in L^2$ implique que f peut toujours se décomposer en une somme de fonctions de dimension croissante :

$$f(x) = f_0 + \sum_{i=1}^n f_i(x_i) + \sum_{j>i}^n f_{ij}(x_i, x_j) + \dots + f_{1\dots n}(x_1, \dots, x_n) \quad (2.9)$$

Cette décomposition est unique si on impose l'une des deux conditions équivalentes suivantes (Sobol 1993, Sobol 2001) :

$$\int_0^1 f_{i_1, \dots, i_s}(x) dx_k = 0, \text{ si } k \in \{i_1, \dots, i_s\} \quad (2.10)$$

$$E\left(f_{i_1 \dots i_s}(x_{i_1}, \dots, x_{i_s}) \times f_{j_1 \dots j_r}(x_{j_1}, \dots, x_{j_r})\right) = 0, \text{ si } \{i_1, \dots, i_s\} \neq \{j_1, \dots, j_r\} \quad (2.11)$$

où $E(\cdot) = \int_{\Omega_n} (\cdot) dx$ est l'espérance mathématique.

L'équation (2.11) traduit l'orthogonalité des fonctions définies dans l'équation (2.9). Une telle décomposition est dénommée ANOVA (acronyme de ANalysis Of VAriance).

Des propriétés précédentes, il est facile de montrer la relation de Parseval suivante :

$$Var(f(x)) = E\left(E(f^2(x)) - f_0^2\right) = V = \sum_{i=1}^n V_i + \sum_{j>i}^n V_{ij} + \dots + V_{1\dots n} \quad (2.12)$$

Où $f_0 = E(f(x))$, Var est l'opérateur variance, V est la variance totale et $V_{i_1 \dots i_s} = Var\left(f_{i_1 \dots i_s}(x_{i_1}, \dots, x_{i_s})\right) = E\left(f_{i_1 \dots i_s}^2(x_{i_1}, \dots, x_{i_s})\right)$ est la variance partielle. D'où la définition des indices de sensibilité basés sur la variance, encore appelés indices de sensibilité de Sobol :

$$1 = \sum_{i=1}^n S_i + \sum_{j>i}^n S_{ij} + \dots + S_{1\dots n}, \quad (2.13)$$

où, l'indice de sensibilité d'ordre s , $S_{i_1 \dots i_s} = \frac{V_{i_1 \dots i_s}}{V} \in [0, 1]$, mesure la part de la variance de f due à l'interaction entre $\{x_{i_1}, \dots, x_{i_s}\}$. Ainsi, 2^{n-1} indices de sensibilités sont définis. En particulier, $S_i = \frac{V_i}{V}$ est l'indice de sensibilité du premier ordre qui mesure la part de la variance due à x_i seul. Cependant, si $S_i = 0$ cela ne signifie pas forcément que x_i n'est pas influent, il peut contribuer à la variance de f par interaction avec les autres entrées. Ce constat a conduit Homme et Saltelli, (1996) à définir l'indice de sensibilité totale :

$$S_i^{tot} = \frac{\sum_{i \in \{i_1 \dots i_s\}} V_{i_1 \dots i_s}}{V} \quad (2.14)$$

Cet indice mesure toutes contributions relatives de x_i à la variance de f . C'est cet indice qui permet en général de conclure si une variable est influente ou pas par rapport aux autres variables. Il peut arriver toutefois que S_i suffise à mesurer l'importance relative de x_i lorsque f est additif. Rappelons qu'une fonction est dite additive si :

$$f(x) \simeq f_0 + \sum_{i=1}^n f_i(x_i) \quad (2.15)$$

$$\Leftrightarrow \sum_{i=1}^n S_i \simeq 1 \quad (2.16)$$

C'est le cas par exemple des fonctions linéaires. On comprend alors le lien entre le coefficient de corrélation et l'indice du premier ordre de Sobol. Le coefficient de corrélation de Pearson mesure la relation linéaire entre θ_i et f . Il est défini par

$\rho_i = \frac{2\sqrt{3}\text{Cov}(x_i, f)}{\sqrt{V}}$, ou Cov est l'opérateur covariance, mesure la relation linéaire entre x_i et f . Aussi pour une fonction linéaire, $S_i = \rho_i^2$ (Iooss, 2011 ; Saltelli et al., 2006).

La décomposition ANOVA (équation(2.9)) offre un cadre rigoureux afin de définir de manière univoque des indicateurs mesurant l'influence relative des entrées. Elle est indépendante de la fonction considérée (hormis l'hypothèse $E(f^2(x)) < +\infty$) et de la nature des entrées (exception faite de leur indépendance). Ainsi, une telle décomposition est possible pour des groupes de variables. Par exemple si $x = (y, z)$ alors il est possible d'écrire :

$$f(\theta) = f_0 + f_y(y) + f_z(z) \quad (2.17)$$

et de définir les indices de sensibilité associés. Cette dernière relation nous amène à introduire la notation bayésienne de l'indice du premier ordre et de l'indice total qu'il est également possible de rencontrer dans la littérature,

$$S_y = \frac{\text{Var}\left(E\left(\frac{f(x)}{y}\right)\right)}{\text{Var}(f(x))} \quad (2.18)$$

$$S_z^{tot} = \frac{E\left(\text{Var}\left(\frac{f(x)}{y}\right)\right)}{\text{Var}(f(x))}, \quad (2.19)$$

Où $E(\cdot)$ désigne l'espérance conditionnelle.

2.3.3 Les indicateurs basés sur la dérivée

La dérivée partielle de la fonction $f(x)$ par rapport à la variable x_i en x^* , un point de l'hypercube unité, est une mesure de la sensibilité locale de x_i . Nous la notons $d_i = \left. \frac{\partial f}{\partial x_i} \right|_{x^*}$.

Elle renseigne sur l'importance de l'effet de x_i sur $f(x)$ au voisinage de x^* . Ainsi, l'évaluation des dérivées partielles (la Jacobienne) en différents points de Ω^n devrait fournir une information globale sur l'influence de chaque entrée. Mais comment résumer

fidèlement les informations contenues dans la Jacobienne de manière à obtenir un indicateur global de la sensibilité. Dans Sobol et Kucherenko (2009) et Sobol et Kucherenko (2010) un début de réponse est fourni par l'introduction du DGSM (acronyme pour Derivative-based Global Sensitivity Measures) pour des variables indépendantes uniformément et normalement distribuées. Par la suite, la démonstration a été généralisée par Lamboni et al., (2013) qui se sont basés sur l'inégalité de Poincaré pour exprimer la relation entre le DGSM et l'indice de sensibilité total (2.14).

Dans Sobol et Kucherenko (2009), le DGSM est présenté comme une justification de la pertinence de la méthode de Morris (Morris, 1991) pour l'analyse de sensibilité globale qui repose sur l'approximation suivante de la dérivée partielle :

$$d_i = \frac{f(x_1^*, \dots, x_i^*, \dots) - f(x_1^*, \dots, x_i^* + \Delta_i, x_{i+1}^*, \dots)}{\Delta_i} \quad \text{en différents points de l'espace des}$$

paramètres.

Nous présentons les indicateurs de sensibilité associés à ces deux méthodes dans l'ordre chronologique.

2.3.3.1 Indicateur de Morris

La méthode de Morris (1991) évalue les sensibilités locales par la méthode des différences finies. L'idée est de mesurer le degré de non linéarité de la relation entre la sortie et les entrées. Afin d'assurer une bonne couverture de l'espace des facteurs d'entrée, la méthodologie consiste dans un premier temps à associer à chaque facteur un ensemble de $k \in 3, 5$ valeurs correspondant au k -ième quantile (si $k = 5$, les valeurs sont $\{0, 0.25, 0.5, 0.75, 1\}$). Ensuite, une combinaison de facteurs est générée parmi ses valeurs θ^* ainsi que n autres combinaisons en modifiant un facteur à la fois ($\theta^{(*,i)} = \{\theta_1^*, \dots, \theta_i^{**}, \dots, \theta_n^*\}, i = 1, \dots, n$). La sensibilité locale est alors évaluée de la manière suivante :

$$d_i = \frac{f(x^{(*)}) - f(x^{(*,i)})}{\Delta_i} \quad (2.20)$$

où, $\Delta_i = (x_i^{(**)} - x_i^{(*)})$ peut-être grand. La procédure est répétée r fois. Une telle approche nécessite alors $N = r(n+1)$ évaluations du modèle. On obtient alors la matrice de sensibilité de dimensions $(r \times n)$:

$$\begin{pmatrix} d_1^{(1)} & \dots & d_i^{(1)} & \dots & d_n^{(1)} \\ \vdots & & \dots & & \vdots \\ d_1^{(k)} & \dots & d_i^{(k)} & \dots & d_n^{(k)} \\ \vdots & & \dots & & \vdots \\ d_1^{(N)} & \dots & d_i^{(N)} & \dots & d_n^{(N)} \end{pmatrix}$$

où $d_i^{(k)}$ est le coefficient calculé avec le k -ième jeu de valeurs.

Ensuite, pour chaque entrée, sont calculées les statistiques suivantes :

$$\mu_i = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N d_i^{(k)} \quad (2.21)$$

$$\sigma_i^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{k=1}^N \left(d_i^{(k)} - \mu_i \right)^2 \quad (2.22)$$

Ces deux statistiques suffisent à résumer l'importance globale d'une entrée sur f . L'analyse peut se faire graphiquement dans le plan de Morris (μ, σ) où un facteur sera jugé peu influent par rapport aux autres s'il est localisé proche de l'origine (cf. Figure 2.1). Elle peut aussi se faire quantitativement en calculant l'indicateur d'importance suivant :

$$\hat{v}_i = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \left(d_i^{(k)} \right)^2 \quad (2.23)$$

Dans deux articles récents, Campolongo et al. (2007) et Campolongo et al. (2011) proposent des améliorations à la méthode originale de Morris. En particulier, l'indice μ_i^* (Equation (2.24)) est conseillé à la place de μ_i . De plus, dans le second article, les auteurs montrent qu'échantillonner les variables avec la méthode LP_τ (Sobol, 1998 ; Bratley et al., 1992 ; Joe et Kuo, 2008) permet non seulement d'améliorer les performances de la méthode de Morris mais également de l'étendre à la détermination des indices de sensibilité totaux (Equation (2.14)).

$$\mu_i^* = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \left| d_i^{(k)} \right| \quad (2.24)$$

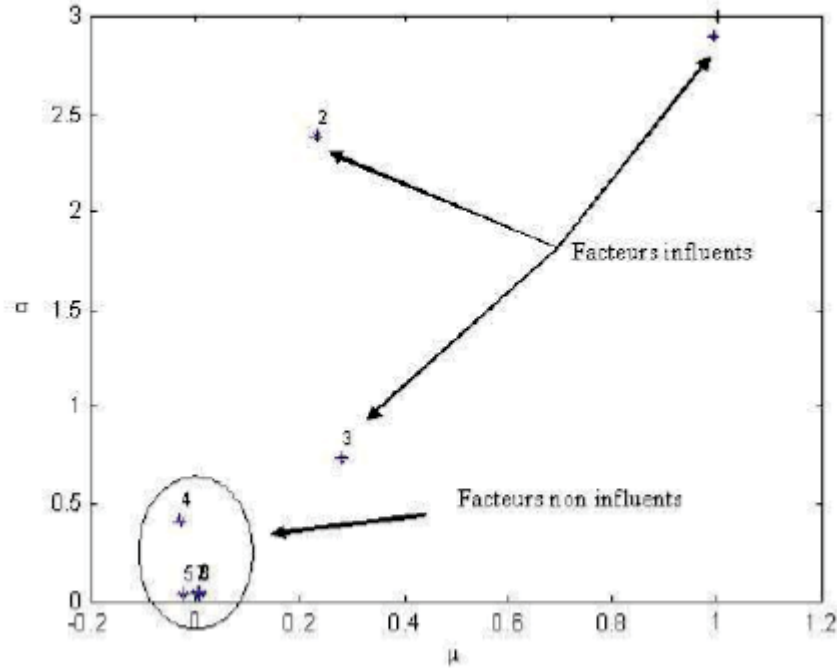


Figure 2.1 – Exemple de graphe de Morris. Les facteurs influents sont localisés loin de l'origine.

2.3.3.2 Indicateur de DGSM

Jusqu'en 2009, avant la parution de l'article de Sobol et Kucherenko (2009), la méthode de Morris était admise comme une méthode fiable pour estimer l'indice d'influence globale d'un facteur. En effet, les tests effectués jusque là sur des benchmarks ont produit des résultats comparables aux méthodes basées sur le calcul des indices de sensibilité totaux (Equation (2.14)). Remarquons que (2.23) est une approximation de l'intégrale suivante :

$$v_i = \int_{\Omega^n} \left(\frac{\partial f(x)}{\partial x_i} \right)^2 dx \quad (2.25)$$

Dans Sobol et Kucherenko (2009), les auteurs prouvent l'inégalité suivante :

$$S_i^{tot} \leq 4C_i \frac{v_i}{V}, \quad (2.26)$$

où, $C_i = \frac{1}{4\pi^2}$. La démonstration complète de cette inégalité est proposée dans Lamboni et al., (2013). De l'inégalité (2.26), on peut conclure que x_i n'est pas une entrée influente si $v_i \approx 0$ prouvant ainsi que la méthode de Morris est utile pour déterminer les entrées non influentes. Les expériences numériques montrent que l'analyse de sensibilité basée sur v_i ne permet pas de ranger les entrées par ordre d'importance. C'est la raison pour laquelle ces méthodes sont dites de criblage. Cependant, elles sont peu coûteuses en temps-calcul comparées aux méthodes permettant de calculer les effets totaux.

2.4 Estimation des indices de sensibilité de Sobol

Plusieurs méthodes existent pour estimer les indices de sensibilité de Sobol (Eqs. (2.13), (2.14)). On peut les classer: *i*) les méthodes basées sur l'échantillonnage, *ii*) les méthodes basées sur l'émulation du modèle. Toutefois, une méthode se situe à la frontière de ces deux classes de méthodes : la méthode FAST (acronyme pour Fourier Amplitude Sensitivity Test). En effet, cette méthode repose sur la décomposition spectrale d'un signal (pseudo) périodique et fait appel à la relation de Parseval-Plancherel pour décomposer la variance du signal. Ainsi, la série de Fourier (tronquée) qui en découle peut être assimilée à un émulateur. Dans la pratique, à notre connaissance, aucun auteur n'utilise la méthode FAST à cette fin. Elle n'est utilisée que pour estimer des intégrales, ce qui est le propre même des méthodes basées sur l'échantillonnage. Dans ce manuscrit, nous faisons donc le choix de ranger FAST dans cette classe de méthodes.

2.4.1 La méthode de Sobol

Considérons à nouveau la décomposition ANOVA,

$$f(x) = f_0 + \sum_{i=1}^n f_i(x_i) + \sum_{j>i}^n f_{ij}(x_i, x_j) + \dots + f_{1\dots n}(x_1, \dots, x_n) \quad (2.27)$$

$$\int_0^1 f_{i_1, \dots, i_s}(x) dx_k = 0, \text{ si } k \in \{i_1, \dots, i_s\} \quad (2.28)$$

et désignons par $x = (y, z)$ et $x' = (y', z')$ deux vecteurs aléatoires indépendamment et uniformément distribués sur Ω_n avec $y = \{x_{i_1}, \dots, x_{i_s}\}$. Alors, compte tenu de cette indépendance, nous avons les résultats suivants,

$$E(f(x) \times f(x')) = f_0^2 \quad (2.29)$$

$$E(f(y, z) \times f(y, z')) = f_0^2 + V_y \quad (2.30)$$

$$E(f^2(x)) - E(f(y, z) \times f(y, z')) = V_z^{tot} \quad (2.31)$$

si on se réfère à l'Equation (2.29), l'Equation (2.30) s'écrit :

$$E(f(y, z) \times f(y, z')) - f_0^2 = \int_{\Omega_s} dy \int_{\Omega_{2n-2s}} f(x) \times f(y, z') - \int_{\Omega_{2n}} f(x) \times f(x') dx dx'$$

$$\Leftrightarrow V_y = \int_{\Omega_s} dy \int_{\Omega_{2n}} f(x) \times (f(y, z') - f(y', z')) dz dy' dz' \quad (2.32)$$

L'Equation (2.31) s'écrit également :

$$\begin{aligned} E(f^2(x)) - E(f(y, z) \times f(y, z')) &= \int_{\Omega_n} f^2(x) dx - \int_{\Omega_s} dy \int_{\Omega_{2n-2s}} f(x) \times f(y, z') dz dz' \\ \Leftrightarrow V_z^{tot} &= \frac{1}{2} \left[\int_{\Omega_n} f^2(x) dx + \int_{\Omega_n} f^2(y, z') dy dz' - 2 \int_{\Omega_s} dy \int_{\Omega_{2n-2s}} f(x) \times f(y, z') dz dz' \right] \\ \Leftrightarrow V_z^{tot} &= \frac{1}{2} \left[\int_{\Omega_{2s}} dy dy' \int_{\Omega_{2n-2s}} (f(x) - f(y, z'))^2 dz dz' \right] \end{aligned} \quad (2.33)$$

La méthode de Sobol pour le calcul des indices de sensibilité globale consiste à estimer les différentes intégrales par intégration Monte-Carlo. Les équations ((2.29), (2.32), (2.33)) sont estimées à partir des trois sommes suivantes :

$$f_0^2 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N f(x^{(k)}) \times f(x'^{(k)}) \quad (2.34)$$

$$V_y = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N f(x^{(k)}) \times (f(y^{(k)}, z'^{(k)}) - f(x'^{(k)})) \quad (2.35)$$

$$V_z^{tot} = \frac{1}{2N} \sum_{k=1}^N (f(x^{(k)}) - f(y^{(k)}, z'^{(k)}))^2 \quad (2.36)$$

où, $x^{(k)}$, $y^{(k)}$, $z'^{(k)}$ et $x'^{(k)}$ sont les k -ème jeux de valeurs issus de trois échantillons aléatoires distincts de taille N (~ 100). L'échantillonnage quasi-Monte Carlo LP_τ (Sobol, 1998 ; Bratley et al., 1992 ; Joe et Kuo, 2008) est souvent conseillé car offrant la meilleure vitesse de convergence. Ainsi, pour calculer les indices de sensibilité totale et d'ordre 1 d'une entrée (ou d'un groupe d'entrées), trois échantillons sont nécessaires. Pour n entrées, $(n+2)$ échantillons sont nécessaires si la stratégie de Saltelli, (2002) est employée. Soit, un coût total de $N \times (n+2)$ ce qui est relativement élevé.

2.4.2 La méthode FAST

FAST (acronyme de Fourier Amplitude Sensitivity Test) a été introduit pour la première fois dans les années 70's au travers d'une série de publications (Cukier et al., 1973 ; Schaibly et Shuler, 1973 ; Cukier et al., 1975 ; Cukier et al., 1978). La méthode a été initialement développée pour étudier la cinétique des réactions chimiques. Depuis, cette méthode a été très employée dans d'autres domaines (citons le nucléaire (Lu et Mohanty,

2001), la thermique du bâtiment (Mara et Tarantola, 2008), la biologie marine (Marino et al., 2008) et a subi différentes évolutions. Les plus notables sont l'extension de la méthode à l'estimation de l'effet total d'un facteur (EFAST, (Saltelli et al., 1999)) et le couplage avec une technique de randomization dénommée RBD (acronyme pour Random Balance Design, Tarantola et al., 2006 ; Xu et Gertner, 2008; Mara, 2009). FAST appartient à la famille de méthodes d'analyse de sensibilité basée sur la variance. La méthode FAST nécessite de rendre $f(\theta)$ périodique. Pour ce faire, les entrées sont échantillonnées selon une fonction périodique. On pose donc,

$$\theta_i = \frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \arcsin(\sin(\omega_i s)), s \in [-\pi, \pi], \quad (2.37)$$

où $\omega_i \in \mathbb{N}^*$ est la fréquence associée à θ_i . L'équation (2.37) assure que $x_i \sim U(0,1)$. Le modèle est alors évalué $f(x_1(s), \dots, x_n(s))$ et les coefficients de Fourier déduits comme suit,

$$c(\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi}^{\pi} f(x(s)) e^{-i\omega s} ds, \omega \in \mathbb{N} \quad (2.38)$$

La relation de Parseval stipule que :

$$V = 2 \sum_{\omega=1}^{+\infty} |c(\omega)|^2 \quad (2.39)$$

Or, dans Cukier et al., (1973), il a été démontré que :

$$V_i = 2 \sum_{k=1}^{+\infty} |c(k\omega_i)|^2 \quad (2.40)$$

D'où l'expression de l'indice de sensibilité du premier-ordre,

$$S_i = \frac{V_i}{V} \quad (2.41)$$

En pratique, la méthode FAST originale est sujette à quelques difficultés d'emploi. D'abord la somme est tronquée jusqu'à un certain ordre fournissant les approximations suivantes :

$$\hat{c}_\omega = \frac{2}{N} \sum_{k=0}^N f(x(s_k)) e^{-2i\pi\omega k/N}, \quad (2.42)$$

$$V = 2 \sum_{\omega=1}^{N/2} |\hat{c}_\omega|^2 \quad (2.43)$$

$$V_i = 2 \sum_{k=1}^M \left| \hat{c}_{k\omega_i} \right|^2 \quad (2.44)$$

$$S_i = \frac{V_i}{V} \quad (2.45)$$

où $M \in 4,6$ est appelé facteur d'interférence. L'avantage de la méthode FAST est qu'elle ne nécessite que N évaluations de la fonction f pour le calcul de tous les indices du premier ordre. Le nombre de simulations N doit respecter le critère de Shannon à savoir, $N \geq 2(M \max(\omega)) + 1$ ce qui rend le coût de la méthode proportionnel à la dimension du problème. De plus le choix des fréquences est délicat car il faut éviter les interférences (par exemple que $k_{1\omega_i} = k_{2\omega_j}$). Ceci a conduit Tarantola et al. (2006) à introduire la technique RBD (acronyme de Random Balance Design (Satterthwaite, 1959)) qui permet de surmonter les difficultés précédentes. Résidait toutefois un problème de biais dans l'estimation de S_i qui a été récemment corrigé par certains auteurs (Tissot et Prieur, 2012 ; Plischke, 2010). Mentionnons que FAST et RBD-FAST ont été étendues au calcul des effets totaux (le lecteur intéressé se référera à Saltelli et al. (1999) et Mara, (2009) mais que le coût pour estimer l'ensemble des effets totaux est de $n \times N$.

2.5 Quelques méthodes basées sur l'émulation

2.5.1 Principe et intérêt

Un émulateur (aussi appelé métamodèle) est un modèle de substitution d'un modèle numérique complexe et dont la vitesse d'exécution est beaucoup plus rapide. Il est construit à partir du modèle originale à l'aide d'un plan d'expériences (i.e. échantillon). Souvent, cet échantillon est scindé en deux sous-échantillons, l'un formant la base d'apprentissage et l'autre la base de validation. Il existe un grand nombre d'émulateurs dans la littérature, citons les réseaux de neurones, les interpolateurs polynomiaux, le processus gaussien (connu aussi sous le nom de krigeage), les polynômes du chaos, les machines à support de vecteur,...

Un émulateur étant supposé être une fidèle approximation du modèle original mais en plus rapide, les méthodes décrites dans la section précédente peuvent être employées dans une seconde étape pour l'analyse de sensibilité globale. Au préalable, des simulations du modèle numérique original sont nécessaires afin de construire l'émulateur. Aussi, l'emploi

d'un émulateur pour l'analyse de sensibilité globale ne présente d'intérêt que si la phase préliminaire est peu coûteuse en temps-calcul. C'est la raison pour laquelle, dans cette section, nous nous intéressons à deux types d'émulateur : l'émulateur gaussien et les polynômes du chaos. En effet, ces derniers sont souvent construits à partir de plans d'expérience de taille raisonnable (Oakley et O'Hagan, 2004 ; Sudret, 2008).

2.5.2 Le processus Gaussien

Le processus Gaussien connu aussi sous le nom de krigeage est une méthode d'interpolation qui a été initialement développée dans le domaine des géosciences pour l'estimation de certaines propriétés du sous-sol telles que la porosité, la perméabilité ou la teneur en minerais. Cette méthode est connue aussi sous le nom de Processus Gaussien. Elle a été largement utilisée en ingénierie de réservoir pour la construction de surface de réponse. En effet, cette technique est connue pour sa robustesse et sa capacité à modéliser avec précision des comportements non linéaires. Le but du processus Gaussien est de prédire les valeurs d'un modèle physique en un point donné à partir d'un ensemble de données au voisinage de ce point. Le principe de base du processus Gaussien n'est pas très différent des méthodes de régression traditionnelles, comme la régression linéaire, à ceci près qu'un tel émulateur est capable d'associer un intervalle d'incertitude à ses prédictions.

2.5.2.1 Représentation d'un processus Gaussien

Le processus Gaussien considère la réponse déterministe $f(x)$ du modèle physique comme la réalisation d'une variable aléatoire $Y(x)$ défini comme suit :

$$Y(x) = \mu(x) + Z(x) \quad (2.46)$$

$$\mu(x) = \sum_{j=1}^p \beta_j \phi_j(x) \quad (2.47)$$

où $\phi_j(x)$ est un vecteur de fonction de régression (linéaire ou non-linéaire par rapport à x), β_j sont des coefficients de régression à déterminer, et $Z(x)$ est un processus Gaussien stochastique centré caractérisé par une variance σ^2 et une matrice de corrélation $\rho(x, x')$. La matrice de corrélation est souvent modélisée par une fonction de type (Sacks et al., 1989) :

$$\rho(x, x') = \exp \left(- \sum_{l=1}^n \gamma_l (x_l - x'_l)^{p_l} \right), \gamma_l > 0, p_l \in (0, 2] \quad (2.48)$$

où les paramètres (γ, p) peuvent être fixés ou sont aussi à déterminer.

2.5.2.2 Estimation des paramètres du krigeage

Soit $x = (x^{(1)}, \dots, x^{(N)})$ un plan d'expériences pour lequel le modèle $f(x)$ a été évalué. On dispose donc d'un vecteur réponse $y = (y^{(1)}, \dots, y^{(N)})$ qui d'après l'hypothèse (2.37) suit la loi $N(\mu(x), \sigma^2 R)$, où, $R_{ij} = \rho(x^{(i)}, x^{(j)})$.

La fonction de vraisemblance, compte tenu des hypothèses, est,

$$p(y|x, \sigma, \beta, R) \propto \frac{1}{\sigma^N \sqrt{\det(R)}} = \exp\left(-\frac{1}{2\sigma^2} (y - \mu(x))^T R^{-1} (y - \mu(x))\right) \quad (2.49)$$

Le jeu de paramètres optimal au sens du maximum de vraisemblance $(\hat{\sigma}, \hat{\beta}, \gamma, \hat{p})$ est celui qui maximise la vraisemblance où le log-vraisemblance qui s'écrit :

$$\ln p(y|x, \sigma, \beta, R) = C - \frac{1}{2} \ln(\det(R)) - \frac{N}{2} \ln(\sigma^2) - \frac{(y - \mu(x))^T R^{-1} (y - \mu(x))}{2\sigma^2} \quad (2.50)$$

Le jeu de paramètres optimal vérifie donc :

$$\begin{cases} \hat{\beta} = (\phi^T(x) R^{-1} \phi(x)^{-1}) (\phi^T(x) R^{-1} y) \\ \hat{\mu}(x) = \sum_{j=1}^p \hat{\beta}_j \phi_j(x) \\ \hat{\sigma}^2 = (y - \hat{\mu}(x))^T R^{-1} (y - \hat{\mu}(x)) \end{cases} \quad (2.51)$$

Etant supposé que R est donné, autrement dit (γ, p) , ce qui n'est généralement pas le cas. Aussi, la détermination de $(\hat{\gamma}, \hat{p})$ s'effectue en remplaçant $(\hat{\mu}, \hat{\sigma})$ dans (2.42), ce qui donne :

$$\ln p(y|x, \sigma, \beta, R) = C - \frac{1}{2} \ln(\det(R)) - \frac{N}{2} \ln(\sigma^2) \quad (2.52)$$

$$\Leftrightarrow (\hat{\gamma}, \hat{p}) = \arg \min \left(\hat{\sigma}^2 \det(R)^{\frac{1}{N}} \right) \quad (2.53)$$

2.5.2.3 Prédiction du krigeage

On montre que la meilleure prédiction du processus Gaussien y^* pour un nouveau jeu de valeurs d'entrée x^* est (Jones, 2001) :

$$y^* = \mu(x^*) + r^T R^{-1} (y - \mu(x^*)) \quad (2.54)$$

$$\text{où, } r_i = \exp \left(- \sum_{l=1}^n \gamma_l (x_l^{(i)} - x_l^*)^{p_l} \right)$$

L'incertitude associée est caractérisée par la variance,

$$s^2(x^*) = \sigma^2 \left(1 - r^T R^{-1} r + \frac{1 - r^T R^{-1} r}{1^T R^{-1} 1} \right) \quad (2.55)$$

Le krigeage est une méthode très utilisée pour l'émulation (Kennedy et O'Hagan, 2001 ; Bayarri et al., 2007 ; Higdon et al., 2008). Il offre aussi l'avantage de choisir judicieusement le plan d'expériences (Oakley et O'Hagan, 2004). En effet, le fait de disposer de l'incertitude sur la prédiction, permet de déterminer les régions de l'espace de paramètres où la prédiction est très incertaine. Ainsi, en évaluant le modèle en ces points et en re-calibrant le processus Gaussien on obtient un émulateur plus fiable. Notons cependant que le processus Gaussien est délicat à employer quand le modèle est fortement non linéaire. Une autre limitation est le choix de la fonction de corrélation. En effet, pour des problèmes à grande dimension et si les données disponibles ne sont pas suffisantes, ce choix devient délicat.

2.5.3 Polynômes de chaos

2.5.3.1 Développement du chaos polynomial

Le développement en polynôme de chaos (PCE) est une méthode probabiliste qui consiste à développer une fonction de carré sommable sur une base de polynômes deux à deux orthogonaux (polynômes d'Hermite, de Legendre, . . .). Ce développement est basé sur la théorie du Chaos Homogène introduit par Wiener, (1938) et sur les travaux de Cameron et Martin, (1947). L'utilisation des polynômes du chaos (PC) dans la simulation numérique des processus stochastiques a été remise au goût du jour par Ghanem et Spanos, 1991.

Dans ce qui suit, nous considérons que les entrées du modèle étudié x sont des variables aléatoires indépendantes, normales, centrées et réduites. Pour des variables indépendantes quelconques, cela suppose qu'elles ont subi la transformation de Nataf, (1962), à savoir :

$$\begin{cases} x_1 = \phi^{-1}(F_1(X_1)) \\ \vdots \\ x_n = \phi^{-1}(F_n(X_n)) \end{cases} \quad (2.56)$$

où ϕ^{-1} désigne la fonction erreur inverse. On désignera par Ω^n l'espace des paramètres.

Cameron et Martin, (1947) montre que les PC forment une base orthonormale complète pour l'espace des fonctions de carré sommable (L^2) . Aussi, toute fonction $f(x) \in L^2$ admet la décomposition suivante :

$$f(x) = \sum_{j=0}^{\infty} f_j \psi_j(x) \quad (2.57)$$

Où $\{f_j\}_{j=0}^{\infty}$ est l'ensemble des coefficients du PC et $\psi_j(x)$ désigne un polynôme multi-varié de degrés j .

En pratique, la série (2.57) est tronquée jusqu'à un degré polynomial p . Le nombre total de termes dans le développement polynomial est fonction du nombre des variables et du degré p souhaité du PC. Il est donné par la formule suivante :

$$P = \frac{(n+p)!}{n! p!} \quad (2.58)$$

L'équation (2.57) devient alors :

$$f(x) = \sum_{j=0}^p f_j \psi_j(x) + \varepsilon_p \quad (2.59)$$

Le développement sur le chaos polynomial (2.57) est similaire à la décomposition ANOVA (2.27) puisque les $\psi_j(x)$ sont orthonormaux pour la mesure Gaussienne. Aussi, le calcul des indices de sensibilité de Sobol se déduit directement des coefficients du PCE. L'estimation des indices de sensibilité se ramène donc à l'estimation des coefficients du PCE tronqué $\{f_j\}_{j=0}^p$.

Plusieurs approches ont été développées pour estimer les coefficients du PCE que l'on peut classer comme intrusives (Le Maitre et al., 2002, Matthies et Keese, 2005) ou non intrusives (Tatang et al. 1998., Li et Zhang, 2007 ; Huang et al., 2007 ; Sudret, 2008; Blatman et Sudret, 2010). Une approche intrusive consiste à introduire le calcul des coefficients du PCE directement dans le modèle numérique. Ce qui a pour avantage de déterminer les coefficients en une seule exécution du modèle numérique. Cette approche est très délicate à mettre en œuvre et pose des difficultés pour les modèles fortement non linéaires (Berveiller, 2005). Par opposition, l'approche non intrusive ne nécessite pas de modifier le modèle numérique mais considère celui-ci comme une boîte noire. Les coefficients du PCE sont déterminés après avoir évalué le modèle numérique en différents points de l'espace des paramètres, ce qui nécessite un plan d'expériences. Cependant, trouver une méthode non intrusive précise et raisonnable en termes d'évaluations du modèle est un défi. Dans ce travail de thèse nous nous sommes intéressés aux approches non intrusives. Parmi les approches non intrusives, nous citons: la méthode de projection et la méthode de régression qui sont détaillées par la suite.

2.5.3.2 Méthode de projection

Cette méthode consiste à projeter la réponse du modèle sur la base du chaos polynomial. La projection de l'équation (2.59) sur $\psi_j(x)$ donne :

$$E[f\psi_j] = E\left[\sum_{i=1}^p f_i \psi_i \psi_j\right] = \sum_{i=1}^p f_i E(\psi_i \psi_j), \quad (2.60)$$

où, $E[\cdot] = \int_{\Omega'} (\cdot) d\phi(x)$.

En utilisant l'orthogonalité des polynômes du chaos ($E[\psi_i \psi_j] = 0$ si $i \neq j$), on obtient :

$$E[f\psi_j] = f_j E[\psi_j^2] \quad (2.61)$$

Le coefficient du PCE f_j s'obtient alors à l'aide de la formule suivante :

$$f_j = \frac{E[f(x)\psi_j(x)]}{E[\psi_j^2(x)]} \quad (2.62)$$

Dans cette expression, le dénominateur est connu d'une façon analytique alors que le numérateur nous ramène à un calcul d'intégrale :

$$E[f\psi_j] = \int_{\Omega_n} f\psi_j(x) d\phi(x) \quad (2.63)$$

Ce dernier peut être estimé par une méthode de type Monte Carlo ou Quasi-Monte Carlo. Cependant, pour une bonne précision, le nombre de points nécessaires est très important. Une alternative est d'employer une méthode de quadrature bien qu'elle puisse être délicate quand la dimension du problème est grande.

2.5.3.3 Méthode de régression

Cette méthode permet de calculer les coefficients de la décomposition en polynômes du chaos à l'aide d'une minimisation au sens des moindres carrés. Supposons que $f(x)$ s'écrive sous la forme suivante :

$$f(x) = f(x) + \varepsilon \quad (2.64)$$

avec $f(x) = \sum_{j=0}^P f_j \psi_j(x)$ et ε l'erreur de moyenne nulle.

Supposons toujours que l'on dispose d'un échantillon $Y = \{y^i, i = 1, \dots, N\}$ de la réponse du modèle $f(x)$ pour un plan d'expérience de taille N (N réalisations du vecteur $X = \{x^i, i = 1, \dots, N\}$). Dans la démarche de la méthode de régression, on cherche à minimiser la variance de l'erreur ε . La minimisation au sens des moindres carrés se ramène à la résolution de l'équation suivante :

$$\varphi = \arg \min \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left\{ f(x^i) - \sum_{j=1}^P f_j \psi_j(x^i) \right\}^2 \quad (2.65)$$

où l'argmin est une fonction qui renvoie les valeurs de f_j pour lesquelles la fonction en question est minimale.

En notant ψ la matrice définie par $\psi = \{\psi_{ij} = \psi_j(x^i), i = 1, \dots, N; j = 1, \dots, P\}$, et $f = \{f_0, \dots, f_P\}^t$, la solution de l'équation (2.65) s'écrit comme suit :

$$f = (\psi^T \psi)^{-1} \psi^T Y \quad (2.66)$$

Dans ce contexte, la matrice $\psi^T \psi$ est appelée matrice de Fisher. L'équation (2.66) est généralement résolue à l'aide d'une méthode numérique robuste telle que la décomposition en valeurs singulières (Sudret, 2008).

Il est à noter que cette méthode est fortement dépendante du choix du plan d'expérience (Sudret, 2008). Un plan d'expérience inadéquat peut conduire à une matrice de Fisher singulière ou mal conditionnée et donc pas inversible. Le plan d'expérience peut être construit en utilisant les techniques d'échantillonnage à savoir Monte Carlo, Latin Hypercube, pseudo Monte Carlo. Il peut également être défini à partir des racines de Gauss (Isukapalli, 1999; Berveiller, 2005).

2.5.3.4 Généralisation des Polynômes de Chaos

Le développement en chaos polynomial, appelée également développement de Wiener-Hermite, permet d'exprimer les variables aléatoires indépendants sur une base de polynômes d'Hermite multivariées. La convergence de ce développement, démontrée par Cameron-Martin, est optimale lorsque les variables aléatoires suivent une loi normale centrée réduite. Mais, qu'en est-il si les variables aléatoires ont une densité non gaussienne. Dans ce contexte, Xiu et Karniadakis, (2003) ont montré que la convergence rapide du développement dans la base du chaos polynomial dépend des densités de probabilités des variables aléatoires standards définissant l'espace des probabilités, (Xiu et Karniadakis, 2003). En effet, des correspondances optimales entre des familles de lois de probabilité et des familles de polynômes orthogonaux ont été établies. La décomposition en PC s'étend au cas général de variables aléatoires $x = \{x_1, \dots, x_n\}$ indépendantes suivant des densités de probabilités connues. Le tableau 2.1 donne quelques correspondances entre les variables et les familles de polynômes univariés associés pour la construction du chaos polynomial.

Tableau 2.1 : Polynômes associés à chaque type de variable (extrait de Tryoen, 2011)

	Distribution ξ	Polynômes $\Phi_\alpha(\xi)$	Support
VA continue	Gaussienne	Hermite	$(-\infty, +\infty)$
	γ	Laguerre	$[0, +\infty)$
	β	Jacobi	$[a, b]$
	Uniforme	Legendre	$[a, b]$
VA discrète	Poisson	Charlier	$\{0, 1, 2, \dots\}$
	Binomiale	Krawtchouk	$\{0, 1, 2, \dots, n\}$
	Binomiale négative	Meixner	$\{0, 1, 2, \dots\}$
	Hypergéométrique	Hahn	$\{0, 1, 2, \dots, n\}$

2.5.3.5 Erreur d'estimation

L'erreur d'approximation du PC est quantifiée par le coefficient de détermination R^2 . Ce coefficient dépend de la somme des carrés des écarts entre la "vraie" réponse du modèle et le PC :

$$R^2 = 1 - \frac{1}{N} \frac{\sum_{i=1}^N (f(x^i) - f^{CP}(x^i))^2}{V(Y)} \quad (2.67)$$

où la variance est $V(Y) = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (y^{(i)} - E[Y])^2$ avec $E[Y] = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N y^{(i)}$

Ainsi, $R^2 = 1$ indique un ajustement parfait entre le modèle physique et le PC, alors que $R^2 = 0$ correspond à une très mauvaise approximation. Cependant l'utilisation de R^2 peut être trompeuse car ce coefficient tend systématiquement vers 1, si N tend vers P . En effet, si $N = P$, $R^2 = 1$ puisque le PC interpole les réalisations du modèle. Ce phénomène est connu sous le nom de sur-apprentissage. Comme alternative, il est possible d'utiliser le *coefficient de détermination ajusté* R_{ajust}^2 défini par:

$$R_{ajust}^2 = 1 - \frac{N-1}{N-P-1} (1 - R^2) \quad (2.68)$$

Toutefois, le R_{ajust}^2 est pénalisé quand P augmente à savoir lorsque des termes supplémentaires sont inclus dans le métamodèle. D'après Blatman et Sudret, (2010), ce coefficient surestime encore l'erreur d'approximation.

Une méthode d'estimation de l'erreur d'approximation, basée sur une technique de validation croisée dite (leave-one-out), peut être utilisée. Il s'agit de diviser le plan d'expériences en deux sous échantillons. Le PC est alors construit à partir du premier sous échantillon, appelé ensemble d'apprentissage. La performance de l'approximation est évaluée en calculant l'écart par rapport au deuxième sous échantillon, appelé échantillon de validation. Pour tout point du plan d'expériences $x^{(i)}$, on calcule l'écart entre le métamodèle et l'observation :

$$\Delta^{(i)} = f(x^{(i)}) - f_{X|x^{(i)}}^{CP}(x^{(i)}) \quad (2.69)$$

avec $f_{X|x^{(i)}}^{CP}$ le PC construit à partir du plan d'expériences $X|x^{(i)}$ obtenu en retirant le point $x^{(i)}$ de X . Le coefficient Q^2 est alors défini comme suit :

$$Q^2 = 1 - \frac{1/N \sum_{i=1}^N \Delta^{(i)^2}}{V(Y)} \quad (2.70)$$

2.5.3.6 Chaos polynomial creux et adaptatif

Reprenons l'expansion en PC de la réponse du modèle :

$$Y = f(x) = \sum_{\alpha \in A} f_{\alpha} \psi_{\alpha}(x) \quad (2.71)$$

L'ensemble A est appelé l'ensemble de troncature pour la base de polynômes défini comme suit :

$$A = \left\{ \alpha \in \mathbb{N}^n : \|\alpha\|_1 \equiv \sum_{i=1}^n \alpha_i \leq p \right\} \quad (2.72)$$

Le nombre de coefficients du polynôme est $P = (n+p)! / (n! p!)$. Notons d'emblée que le nombre de coefficients augmente fortement avec le nombre n des variables et l'ordre p du polynôme, c'est ce qu'on appelle le fléau de la dimension.

Stratégie de troncature du chaos polynomial

Selon le principe de hiérarchie des effets, les modèles dépendent principalement des effets principaux et des interactions d'ordre faible. Blatman et Sudret, (2010) ont développé une stratégie en accord avec ce principe qui permet de réduire le nombre des coefficients dans le polynôme en gardant seulement ceux qui ont une contribution significative sur le modèle. Considérons ainsi des ensembles de troncatures à partir de normes q , $0 < q < 1$:

$$A_q = \left\{ \alpha \in \mathbb{N}^n : \|\alpha\|_q \equiv \left(\sum_{i=1}^n \alpha_i^q \right)^{1/q} \leq p \right\} \quad (2.73)$$

Pour $q=1$, on obtient le schéma de troncature usuel présenté dans la section précédente. Plus q est faible, plus les interactions d'ordre élevé seront pénalisées. Dans ce cas, on parle d'un schéma isotrope de troncature.

Il est également possible d'utiliser un schéma de troncature anisotrope qui introduit les indices de sensibilités afin de réduire davantage le coût de calcul puisque toutes les variables d'entrée du modèle n'ont pas le même impact sur la réponse. Dans ce cas, le schéma de troncature favorise les variables d'entrée qui correspondent aux indices de sensibilités totaux les plus importants. On définit alors l'ensemble des poids :

$$w_i = \frac{\sum_{j=1}^n S_j^T + \max_{1 \leq k \leq n} S_k^T - S_i^T}{\sum_{j=1}^n S_j^T}, \quad i = 1, n \quad (2.74)$$

La stratégie de troncature du chaos polynomial sera alors effectuée sur la base des ensembles de troncatures suivants :

$$A_{q,w} = \left\{ \alpha \in \mathbb{N}^n : \|\alpha\|_q \equiv \left(\sum_{i=1}^n |w_i \alpha_i|^q \right)^{1/q} \leq p \right\} \quad (2.75)$$

Chaos polynomial creux adaptatif

L'idée ici est de construire un polynôme de chaos creux adaptatif en tenant compte de l'erreur d'approximation. Il s'agit dans un premier temps de se donner un plan d'expérience initial X basé sur des suites de nombres quasi-aléatoire, et de stocker les évaluations correspondantes du modèle dans Y . Ensuite, on construit un PC d'ordre 0, c'est-à-dire $A = \{0\}$ et on calcule les coefficients (R^2, Q^2) . Puis, on ajoute des termes candidat à la base A , de nome q croissante, c'est-à-dire pour chaque $p = 1, \dots, p_{\max}$ et $j = 1, \dots, j_{\max}$, on distingue alors deux étapes :

- Une étape ascendante : on ajoute les termes candidat à la base courante un par un et on calcule à chaque fois le coefficient R^2 . On retient les termes qui conduisent à une augmentation significative de R^2 (c'est-à-dire : $R^2 > \varepsilon_1$).
- Une étape descendante : on enlève finalement tous les termes qui conduisent à une diminution insignifiante de R^2 (c'est-à-dire : $R^2 < \varepsilon_2$).

Les seuils ε_1 et ε_2 sont des paramètres de l'algorithme.

Au cours des itérations, la matrice de Fisher peut devenir mal conditionnée puisque le nombre de termes retenus s'approche au fur et à mesure de la taille du plan d'expérience. Pour remédier à ce problème, Blatman et Sudret, (2010) enrichissent systématiquement le plan d'expérience de sorte à satisfaire la règle heuristique $N > 2P$. Des techniques d'échantillonnage séquentiel, basée sur l'échantillonnage quasi aléatoire ou l'échantillonnage Latin Hypercube, sont alors utilisées. Finalement, l'algorithme s'arrête dès que $Q^2 \geq Q^2_{\text{cible}}$.

Si la stratégie de troncature adoptée est anisotrope, alors on initialise les poids comme suit : $w = \{1, \dots, 1\}$, on calcule au cours des itérations les indices de sensibilité et on actualise les poids. Dans ce cas, l'enrichissement de la base se fait selon la norme (q, w) croissante. La procédure est schématisée sur la figure 2.2 :

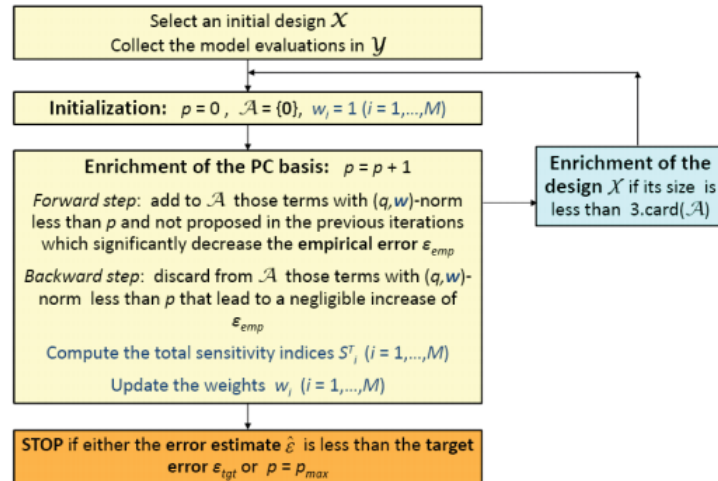


Figure 2.2 – Procédure itérative pour construire un PC creux (extraite de Blatman, 2009)

Une autre stratégie a été développée pour construire des PC creux. Cette méthode est basée sur la technique de sélection des variables, appelée Least Angle Regression (LAR) (Efron et al., 2004). La méthode LAR fournit une suite de solutions (dans ce cas, des polynômes de chaos creux) de moins en moins creux qui reproduit au mieux la réponse du modèle. Pour sélectionner la meilleure solution, un critère basé sur la méthode de validation croisée est souvent utilisé. Ce schéma de validation est relativement coûteux en temps de calcul puisqu'il requiert plusieurs appels de la procédure LAR. Pour surmonter cette difficulté, une autre alternative dite méthode de validation croisée a été proposée par Blatman et Sudret, (2011), et qui ne nécessite qu'un seul appel de la procédure LAR. L'algorithme du PC creux est schématisé dans la figure 2.3.

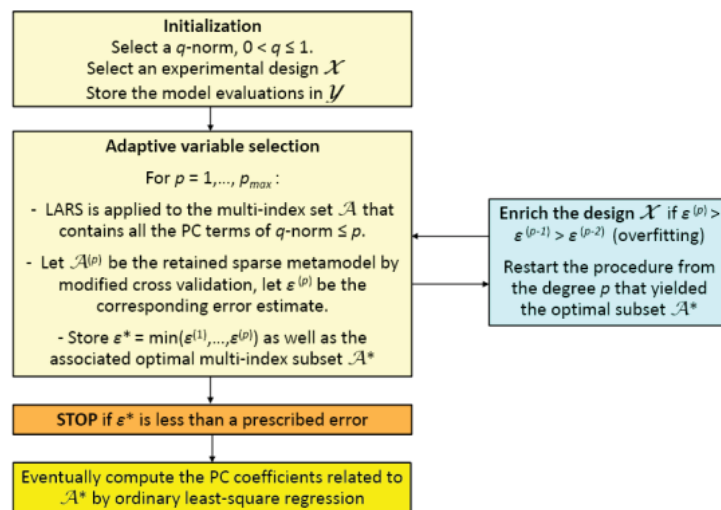


Figure 2.3 – Procédure LAR pour construire un PC creux (extraite de Blatman, 2009).

2.6 Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media

Dans cet article nous appliquons l'analyse de sensibilité globale pour la modélisation de deux expériences de laboratoires (Katz et al., 2010 ; Konz et al., 2009). L'analyse de sensibilité globale est utilisée dans le but de déterminer les paramètres sensibles ainsi que l'endroit le temps où les observations permettent une bonne identification des paramètres. Cette information est particulièrement utile pour l'expérience avec mesure par caméra infrarouge de Konz et al. (2009). En outre, l'utilisation des polynômes du chaos construits à partir du plan optimal proposé par Sudret (2008) offre l'avantage de disposer d'un émulateur très rapide à inverser.

Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media

Noura Fajraoui,¹ Fanilo Ramasomanana,¹ Anis Younes,¹ Thierry Alex Mara,² Philippe Ackerer,¹ and Alberto Guadagnini³

Received 8 June 2010; revised 8 October 2010; accepted 22 October 2010; published 15 February 2011.

[1] In this work, we show how the use of global sensitivity analysis (GSA) in conjunction with the polynomial chaos expansion (PCE) methodology can provide relevant information for the interpretation of transport experiments in laboratory-scale heterogeneous porous media. We perform GSA by calculating the Sobol indices, which provide a variance-based importance measure of the effects of uncertain parameters on the output of a chosen interpretive transport model. The choice of PCE has the following two benefits: (1) it provides the global sensitivity indices in a straightforward manner, and (2) PCE can serve as a surrogate model for the calibration of parameters. The coefficients of the PCE are computed by probabilistic collocation. The methodology is applied to two nonreactive transport experiments available in the literature, while considering both transient and pseudo steady state transport regimes. This method allows a rigorous investigation of the relative effects and importance of different uncertain quantities, which include boundary conditions as well as porous medium hydraulic and dispersive parameters. The parameters that are most relevant to depicting the system's behavior can then be evaluated. In addition, one can assess the space-time distribution of measurement points, which is the most influential factor for the identifiability of parameters. Our work indicates that these methods can be valuable tools in the proper design of model-based transport experiments.

Citation: Fajraoui, N., F. Ramasomanana, A. Younes, T. A. Mara, P. Ackerer, and A. Guadagnini (2011), Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media, *Water Resour. Res.*, 47, W02521, doi:10.1029/2010WR009639.

1. Introduction

[2] Laboratory-scale flow cells are commonly used to examine the interplay between processes affecting solute transport through porous media under controlled conditions. One advantage of flow cells is their suitability for relatively fast and reliable experiments. Measuring the spatial distributions of a state variable (i.e., the solutes' concentrations) within the cell is often difficult. Generally, fluid is sampled only at the flow cell outlet or at a set of predefined locations within the system. In this context, colorimetric techniques based on high-resolution image analysis are becoming increasingly popular [e.g., Gramling *et al.*, 2002; Cirpka *et al.*, 2006; Oates and Harvey, 2006; Konz *et al.*, 2009a, 2009b] as they allow the obtainment of the complete map of the space-time evolution of solute concentrations for certain types of porous media and substances.

[3] Interpretations of transport experiments are typically performed on the basis of models based on, for example, the advection-dispersion equation (ADE), multirate mass transfer concepts, or the continuous time random walk framework [e.g., Berkowitz *et al.*, 2006, and references therein]. Regardless of the underlying complexity, the key parameters of the model adopted are calibrated against the observed state variable at (space-time) locations which are chosen during the design phase of the experiment.

[4] Several sources of uncertainty need to be quantified and controlled in order to obtain a data set that allows the key features of the observed processes during a model-based interpretive phase to be understood. These features typically include boundary conditions (e.g., the fluid flow-rate adopted in the experiment), the spatial distribution of the hydraulic parameters of the system (i.e., the hydraulic conductivity and porosity of the materials used to fill the flow cell), and transport-related parameters (e.g., dispersivities when an ADE-based model is employed).

[5] The number of parameters associated with conservative transport laboratory experiments is not as large as in field-scale applications, which involve complex and highly heterogeneous systems. A simple and robust analysis technique can then be used to detect sensitivities and interactions between parameters. A rigorous global sensitivity analysis has been shown to provide high-quality information for

¹Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg, Université de Strasbourg, EOST, CNRS, Strasbourg, France.

²Department de Physique, PIMENT, Université de La Réunion, Moufia, La Réunion.

³Dipartimento di Ingegneria Idraulica, Ambientale, Infrastrutture Viarie e Rilevamento, Politecnico di Milano, Milan, Italy.

identifying the main parameters controlling the variability of a model's output, and for serving as an effective precursor to optimal experiment design. The methodology has found applications in the assessment of laboratory experiments in system biology [e.g., *Kontoravdi et al.*, 2005; *van Riel*, 2006; *Kiparissides et al.*, 2009, and references therein], reliability engineering [e.g., *Frey and Patil*, 2002; *Marrel et al.*, 2009], and within practices of risk assessment of ground-water pollution [e.g., *Volkova et al.*, 2008].

[6] Here we use variance-based sensitivity indices [*Sobol*, 1993, 2001; *Homma and Saltelli*, 1996] for the global sensitivity analysis (GSA) of an ADE-based model of nonreactive transport in laboratory-scale reconstructed heterogeneous porous media. Variance-based sensitivity indices are known to be good descriptors of the sensitivity of the model to its inputs because they do not rely on any assumptions regarding the linearity or monotonous behavior of the model [*Saltelli et al.*, 2006]. However, depending on the sampling scheme adopted, the computation of these indices might require a large number of model evaluations. This situation can be unacceptable for time-consuming transport computer codes, on the basis of which parameter calibration is also performed, according to the results of the sensitivity analysis. Here we present the use of a general methodology for sensitivity analysis and parameter estimation that can be adopted in this context. The method we present includes the extraction of a surrogate model that mimics the main characteristics of the complete process model selected.

[7] Among different alternatives, we explore the use of polynomial chaos expansion (PCE) for depicting conservative transport experiments. The PCE is derived from the process model itself, and it typically allows the required sensitivity indices to be estimated with acceptable computational time and accuracy. The polynomial chaos theory was originally developed by *Wiener* [1938], and it has been extensively used in various engineering fields [e.g., *Ghanem and Spanos*, 1991; *Xiu and Karniadakis*, 2003; *Acharjee and Zabaras*, 2007]. The PCE has been used for uncertainty or risk analysis of flow in saturated [*Li and Zhang*, 2007] and unsaturated zones [*Li et al.*, 2009], and for multiphase flow [*Li and Zhang*, 2009].

[8] One of the key advantages of building a surrogate model with PCE is that it allows for computation of the variance-based indices analytically via a simple postprocessing

of the PCE coefficients [*Sudret*, 2008]. Therefore, the computational cost of the complete set of sensitivity indices is reduced to that of estimating the PCE coefficients. We show in this work how the use of the GSA method in conjunction with the PCE technique can provide valuable information in the analysis of two laboratory experiments involving the transport of nonreactive solutes in heterogeneous flow cells. The results are assessed in terms of the potential of the methodology to provide (1) relevant parameters and their region of influence; (2) guidance in a model-based design of transport experiments in laboratory-scale porous media; and (3) a surrogate model for parameter calibration.

2. Overview of the Experiments and Data Sets

[9] We focus on the transport experiments presented by *Katz et al.* [2010] and *Konz et al.* [2009a, 2009b]. In both cases, the movement of a nonreactive solute is monitored within a flow cell where a block-heterogeneity is reconstructed by packing the system with two different materials. The flow conditions are steady state and spatially nonuniform in both cases. While the experiment of *Katz et al.* [2010] is focused on pseudo steady state transport conditions, that of *Konz et al.* [2009a, 2009b] aims at depicting the transient features of transport. As such, the experiments are characterized by different sets of controlling parameters and potential design strategies of the space-time collocation of sampling points. The salient features of the experiments are presented in the following.

[10] The experimental setup described by *Katz et al.* [2010] consisted of a 25 cm × 10 cm laboratory flow cell filled with porous media, saturated with an initial aqueous solution of sodium chloride. The packing of the cell was performed by embedding a trapezoidal-shaped region filled with sand material (average grain size of 0.532 mm; estimated average permeability $K_0 = 1.47 \times 10^{-10} \text{ m}^2$; estimated average porosity of 0.32) within a background matrix constituted by 1-mm glass beads (measured porosity of 0.375; estimated permeability $K_0 = 1.12 \times 10^{-9} \text{ m}^2$). The inlet face was split crosswise to create two separate inlets, side-by-side, each with a length of 5 cm. A 5 mm diameter hole was placed approximately in the middle of the outlet face, to create strongly nonuniform flow conditions. The structure of the flow cell and the setup for the experiments are illustrated in Figure 1.

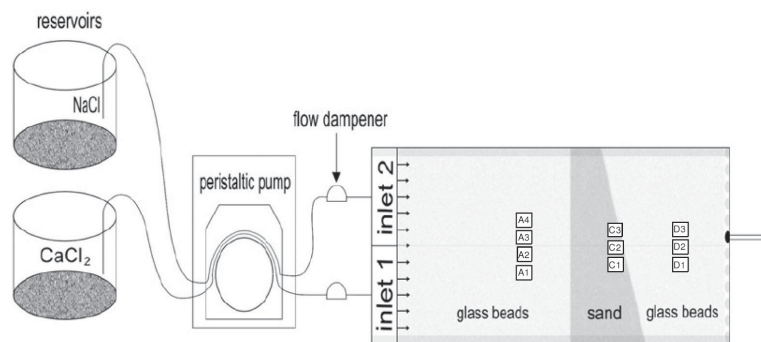


Figure 1. Sketch of the experimental setup adopted by *Katz et al.* [2010], including the locations of measurement ports.

[11] Calcium chloride and the initial sodium chloride solutions entered the cell through inlets 1 and 2 of Figure 1, respectively. Ten sampling ports were created on the top face of the cell. Their location is shown in Figure 1. BD microfne syringes were used to sample water from the inside of the flow cell through the ports. The calcium concentration was then measured in the samples. The analytical measurement error (a Cary 100 UV-vis spectrophotometer was used) was considered to be negligible relative to the scale of the concentrations detected in the experiment. Repeatability was investigated in the context of the experiments. The measurements collected were representative of pseudo steady state transport conditions. Additional details regarding the preparation of the solutions, the duration of the experiment, and the sampling and measuring techniques are reported by *Katz et al.* [2010].

[12] *Katz et al.* [2010] interpreted the transport experiments on the basis of the ADE model, using the code Retraso Code Bright (RCB) [*Saaltink et al.*, 2004]. According to the observed pseudo steady state conditions, the authors considered the transverse dispersivities of the glass beads and sand materials to be the only calibration parameters. These parameters were estimated by a best fit of the numerical simulations against concentrations measured at the ports within the cell during the experiments. During the calibration procedure, a ratio of 2:1 was maintained between the dispersivities of the glass beads and the sand, respectively. Due to limitations in the code, the authors could not use a very fine grid discretization, and they obtained transverse dispersivities of 0.8 mm and 0.4 mm, respectively, for the glass beads and the sand. These dispersivity values were deemed suitable to provide an adequate overall interpretation of the observed data.

[13] The setup described by *Konz et al.* [2009a] consisted of an experimental flow tank of 158 cm $\times$ 98 cm $\times$ 4 cm constructed of Plexiglas panes. This tank facilitated the optical observation of dyed plumes. Figure 2 displays a sketch of the experimental system. Two glass beads types (SiLi-beads GmbH) were used to pack the heterogeneous porous system. The diameters of the fine and coarse beads were 0.6 mm and 2 mm, respectively. The photometrical concentration measurement method was described by *Konz et al.* [2009b]. Time-lapse photography was applied to monitor the progress of the experiments using a digital camera (Nikon D70). A red

food dye (Cochineal Red A, E124) marked the contaminant. The intensity distribution of the dye was converted to concentrations using a nonlinear relation of reflected intensity and dye concentration. This relationship was determined for each image pixel specifically by calibration experiments, and it was described by a second-order exponential function. The measurement error was estimated to be about 1% for the measured intensities [*Konz et al.*, 2009b].

[14] A flow from the lower left side to the lower right side was induced in the experiment. A constant flow rate (mean value 29.0 cm²/min per unit thickness) was imposed by means of a peristaltic pump.

[15] The hydraulic parameters of the coarse and fine beads were determined in situ in the flow tank using pressure and flow measurements. Permeability values ranging between 2.6×10^{-10} and 4.0×10^{-10} m² were found for the fine beads zone. These values are consistent with those derived by *Konz et al.* [2009a], who provided an estimated permeability of 3.4×10^{-10} m² on the basis of a tracer experiment performed in a homogeneous medium packed with the same beads. Permeabilities ranging between 25×10^{-10} and 40×10^{-10} m² were found for the coarse beads zone. The Kozeny-Carman equation also suggested these values of permeability for the coarse beads zone to be 1 order of magnitude larger than those of the fine beads zone. The porosity was determined as 0.375 for both zones on the basis of volumetric and gravimetric measurements. The reader is referred to *Konz et al.* [2009a, 2009b] for additional details. The boundaries of the low-permeability block were digitized to accurately describe the geometrical pattern of the interface between the fine beads block and the high-permeability zone.

3. Polynomial Chaos Expansion for Sensitivity Analysis

3.1. Variance-Based Sensitivity Indices

[16] Let us consider a mathematical model associated with the M -independent random parameters $\zeta = \{\zeta_1, \zeta_2, \dots, \zeta_M\}$ that leads to a random response $f(\zeta)$ at a given space-time location. *Sobol* [1993] showed that if $f(\zeta)$ belongs to the space of square integrable functions, L_2 , then it can be expanded as

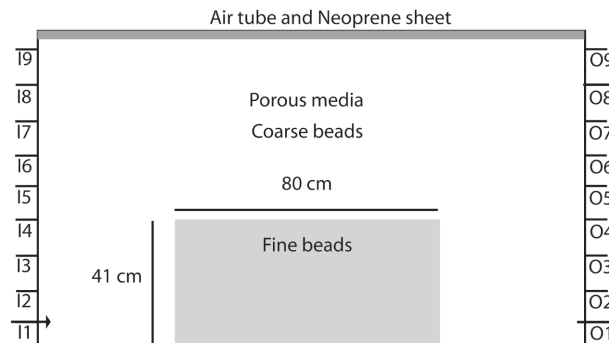


Figure 2. Experimental setup with boundary conditions adopted by *Konz et al.* [2009a, 2009b]. Arrows indicate the inflow and outflow sections.

$$f(\boldsymbol{\zeta}) = f_0 + \sum_{i=1}^M f_i(\zeta_i) + \sum_{j>1}^M f_{ij}(\zeta_i, \zeta_j) + \dots + f_{1\dots M}(\zeta_1, \dots, \zeta_M), \quad (1)$$

where f_0 is the expected value of $f(\boldsymbol{\zeta})$, and $f_{i_1\dots i_s}$ ($\{i_1, \dots, i_s\} \subseteq \{1, \dots, M\}$) are orthogonal functions. This representation is typically denoted analysis of variance (ANOVA) decomposition. Indeed, squaring (1) and taking the expectation leads to the variance decomposition of $f(\boldsymbol{\zeta})$,

$$V = \sum_{i=1}^M V_i + \sum_{j>1}^M V_{ij} + \dots + V_{1\dots M}, \quad (2)$$

where V denotes the total variance of $f(\boldsymbol{\zeta})$, V_i is the partial variance due to the input ζ_i alone, and $V_{i_1\dots i_s}$ is the partial variance due to the interactions of the inputs belonging to the parameters' subset $\{\zeta_{i_1}, \dots, \zeta_{i_s}\}$. The variance-based sensitivity indices of Sobol are then defined by

$$S_{i_1\dots i_s} = \frac{V_{i_1\dots i_s}}{V}. \quad (3)$$

[17] The sensitivity indices measure the contribution of an input to the output variance either solely or by interactions with the other inputs. One can define $2^M - 1$ sensitivity indices from (2). The first-order sensitivity index (also named the main effect of ζ_i) is defined by

$$S_i = \frac{V_i}{V}, \quad (4)$$

and it measures the expected amount by which the variance of $f(\boldsymbol{\zeta})$ is reduced when the true value of ζ_i is known and is associated with the identifiability of the parameter ζ_i , i.e., a high value of S_i (i.e., $S_i \approx 1$) indicates that the parameter ζ_i can be accurately estimated. In this work, all of the sensitivity indices are calculated by means of the polynomial chaos expansion (PCE) technique with a nonintrusive sampling strategy.

3.2. Polynomial Chaos Expansion

[18] We start by noting that any square integral random response admits the following chaos representation [Soize and Ghanem, 2004],

$$f(\boldsymbol{\zeta}) = \sum_{\alpha \in \mathbb{N}^M} s_\alpha \Psi_\alpha(\boldsymbol{\zeta}) = s_0 \psi_0 + \sum_{i=1}^M s_i \psi_1(\zeta_i) + \sum_{j>i}^M s_{ij} \psi_2(\zeta_i, \zeta_j) + \dots + \sum_{k \geq j}^M s_{ijk} \psi_3(\zeta_i, \zeta_j, \zeta_k) + \dots \quad (5)$$

where ψ_α is a α th-order multivariate orthogonal polynomial, $\boldsymbol{\zeta}$ is the input vector formed by M -independent and identically distributed random variables, and the $S_{i_1\dots i_s}$'s are the polynomial coefficients. The orthogonal polynomial family depends on the joint probability distribution function of $\boldsymbol{\zeta}$ [e.g., Xiu and Karniadakis, 2002]. Because of the orthogonality of the polynomials, (5) is an ANOVA decomposition similar to (1). Thus, PCE can be seen as an approximation of the summands in (1) by orthogonal polynomials. For computational purposes, the series in (5) is truncated to polynomials of degree not exceeding p ,

$$f(\boldsymbol{\zeta}) \approx \sum_{|\alpha| \leq p} s_\alpha \Psi_\alpha(\boldsymbol{\zeta}), \quad (6)$$

where $|\alpha| = \sum_{i=1}^M \alpha_i$ and the number of polynomial coefficients is $N_p = (M + p)! / (M! p!)$. The computation of the Sobol indices is straightforward once the vector of polynomial chaos coefficients $\mathbf{S} = [s_0, s_1, \dots, s_p]^T$ are known. The sampling strategy adopted to compute $\mathbf{S}$ is discussed in section 3.3.

3.3. Probabilistic Collocation

[19] There are several nonintrusive computational approaches to computing the polynomial chaos (PC) coefficients. The term nonintrusive indicates that the PC coefficients are investigated through several evaluations of the function of interest by sampling the input values (the collocation points). For example, one can employ Monte Carlo or quasi-Monte Carlo sampling. It has been shown [Sudret, 2008; Zhang et al., 2010] that probabilistic collocation methods perform better, in terms of convergence property, especially when M is small (i.e., less than 8).

[20] Let us assume that an M -variate Hermite polynomial of degree p is investigated. One can rewrite the truncated PC expansion using vector notation as

$$f(\boldsymbol{\zeta}) = \boldsymbol{\Psi}(\boldsymbol{\zeta}) \mathbf{S}. \quad (7)$$

[21] Probabilistic collocation assigns the values of the roots of monodimensional Hermite polynomials of degree $(p + 1)$ to each input [Tatang et al., 1997]. The size of the full sampling design, then, is $(p + 1)^M$. As a consequence, one has to select a number $N \geq N_p$ of collocation points among all possible combinations so that the information matrix $\mathbf{A} = (\boldsymbol{\Psi}^T \boldsymbol{\Psi})$ defined by

$$A_{ij} = \sum_{k=1}^N \psi_i(\boldsymbol{\zeta}^k) \psi_j(\boldsymbol{\zeta}^k) \quad (8)$$

is invertible and well-conditioned. We denote by $\mathbf{F}$ the vector of function evaluations at the different collocation points, that is, $F_k = f(\boldsymbol{\zeta}^k)$ ($k = 1, \dots, N$), where $\boldsymbol{\zeta}^k$ is the k th collocation point. The PC coefficients can then be computed by least squares regression as

$$\mathbf{S} = (\boldsymbol{\Psi}^T \boldsymbol{\Psi})^{-1} \boldsymbol{\Psi}^T \mathbf{F}. \quad (9)$$

[22] Regression-based methods often select the collocation points closest to the origin of the sampling space [Huang et al., 2007; Li and Zhang, 2007; Sudret 2008]. We note that the minimal sample size is $N = N_p$. Since setting $N = N_p$ may lead to an ill-conditioned matrix, an algorithm based on singular value decomposition should be used. In this work, we use the technique suggested by Sudret [2008], which alleviates the problem of having an ill-conditioned matrix but requires a sample size $N > N_p$.

4. Modeling Procedure

[23] The experiments described in section 2 are modeled by means of a standard ADE. Very fine meshes (around

17,000 elements for the first experiment and 30,000 for the second) are used. Because several simulations are required, an efficient and accurate simulator for the solution of the ADE is needed. Moreover, the analyzed transport experiments are advection dominated, so that standard Eulerian methods such as finite elements or finite differences are not well-suited for the modeling task because these may generate solutions with artificial diffusion and/or unphysical oscillations. In this work, we solve the ADE by means of the Eulerian-Lagrangian localized adjoint method (ELLAM) [Younes and Ackerer, 2005; Younes et al., 2006]. This method can use large time steps because the advection term is approximated accurately without any Courant Friedrich Levy (CFL) restriction. The ELLAM formulation developed by Younes et al. [2006] for unstructured triangular meshes uses only strategic numerical integration points and, therefore, requires a limited number of integration points (usually one per element). To avoid numerical dispersion due to interpolation, when several time steps are used, the method uses a continuous tracking of characteristics, and only changes due to dispersion are interpolated at each time step. Note that accurate calculations of fluxes at element edges are required to track the particles. In this work, the flow equation is solved with the mixed finite element approximation detailed by Younes et al., [2008]. With this formulation, the velocity is defined everywhere in the field, and its normal component is continuous across the interelement boundaries. Therefore, accurate analytical characteristic tracking can be obtained using the mixed velocity field.

[24] Sensitivity analysis of the random transport process is performed under conditions corresponding to those for which experimental data have been collected, i.e., pseudo steady state and transient transport for the experiments of Katz et al. [2010] and Konz et al. [2009a, 2009b], respectively. The flow is steady state in both cases. This approach allows, on the one hand, an assessment of the sampling choice performed by Katz et al. [2010] and, on the other hand, an extraction of measurements with high information content from the wide database of Konz et al. [2009a, 2009b].

4.1. Sensitivity Analysis of the Experiment of Katz et al. [2010]

[25] The experiment of Katz et al. [2010] is analyzed by considering that randomness of model outputs is associated

with only four random input parameters, as described in the following. We set $Q_{up} = Q_0(1 + \varepsilon_Q)$ and $Q_{low} = Q_0(1 - \varepsilon_Q)$. Q_{up} and Q_{low} are the flow rates across inlets 1 and 2 of Figure 1, respectively, while $2 Q_0$ is the total inlet flowrate provided by Katz et al. [2010]. In this sense, the random parameter ε_Q accounts for a nonuniform distribution of the inlet flow rate, $2 Q_0$, between the upper and lower halves of the flow cell. We then define the average permeability of the sand region as $K^s = \varepsilon_K K_0^s$, K_0^s being the permeability value adopted by Katz et al. [2010]. Finally, we set the transverse dispersivities of the glass (α_T^b) and sand (α_T^s) materials to $\alpha_T^b = \varepsilon_b^b \alpha_T^{b,0}$ and $\alpha_T^s = \varepsilon_\alpha^s \alpha_T^{s,0}$. Here ε_b^b and ε_α^s are random calibration parameters, and $\alpha_T^{b,0} = 0.2$ mm is the dispersivity value obtained by Katz et al. [2010] by means of a conservative transport experiment performed upon filling the cell with glass beads only. Following Katz et al. [2010], we then assume that $\alpha_T^{s,0} = \alpha_T^{b,0}/2$. For illustration purposes, and without loss of generality, we consider the initial and inlet solutes' concentrations, the average porosities of the two media, and the hydraulic conductivity of the glass beads' background matrix as deterministically given, and we set their values to those provided by Katz et al. [2010]. Longitudinal dispersivities are excluded from the set of random model parameters as the data of Katz et al. [2010] corresponds to pseudo steady state conditions.

[26] The range of variability of the random parameters considered is prescribed on the basis of considerations about the magnitude of the measurement/interpretation errors (for hydraulic conductivities and inlet flux) and the physically plausible intervals of the parameters' variability (for dispersivities). Therefore, we assume that $0 \leq \varepsilon_Q \leq 0.06$, $0.5 \leq \varepsilon_K \leq 2$, $0.5 \leq \varepsilon_b^b \leq 2$, and $0.5 \leq \varepsilon_\alpha^s \leq 2$. A uniform distribution is assumed for each random parameter so that Legendre polynomials are employed for the PCE. The coefficients of the PCE are evaluated for all of the nodes of the mesh according to the methodology described in section 3.3.

[27] Figure 3 illustrates the spatial distribution of the mean normalized calcium concentrations obtained on the basis of a PCE of order $p = 4$ after 2 hours, from the beginning of the simulated experiments, when the pseudo steady state conditions were attained at all sampling ports (note that the total duration of the experiment reported by Katz

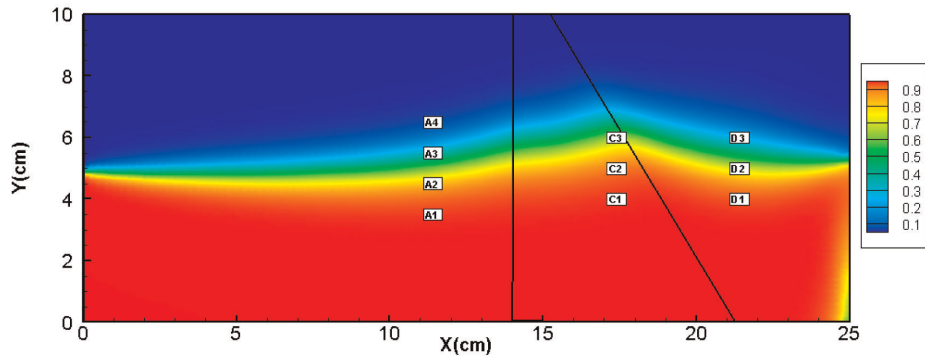


Figure 3. Spatial distribution of the pseudo-state mean normalized calcium concentrations obtained on the basis of a PCE of order $p = 4$ after 2 hours from the beginning of the experiment of Katz et al. [2010].

et al. [2010] is 4 hours). The corresponding depictions for the concentration variance are shown in Figure 4. These were obtained on the basis of PC sampling from 122 runs of the ADE, and they are considered sufficiently accurate in comparison with those obtained by means of 2500 numerical simulations of the ADE (not shown) performed by standard Monte Carlo sampling of the random parameters space. We note that pseudo steady state conditions were attained in the domain, with the sole exception of a small region corresponding to a stagnation area in the bottom right corner. This small region is located at some distance from all of the measurement ports, and it does not influence the sampled concentrations.

[28] The sensitivity of the concentration field to the variability of the random input parameters can be assessed by means of spatial maps of the Sobol indices. Inspection of the sensitivity indices showed that the interactions between the parameters chosen were not significant (not shown). Consequently, we focus on the parameters' main effects. Figure 5 shows the spatial distribution of the main effects due to uncertainty in (a) the inlet flux distribution, S_1 ; (b) the sand's average permeability, S_2 ; and (c) the transverse dispersivity of the glass beads' medium, S_3 . As one should jointly assess the extent of the region where the parameters' sensitivity is significant and the spatial distribution of the global concentration variance, we juxtapose in Figure 5 the boundary of the region within which the coefficient of variation, CV , of the calculated normalized concentration is larger than 5%.

[29] The main effect due to the transverse dispersivity of the sand is not shown because its maximum calculated value inside the domain is less than 10^{-3} , implying that the concentration variance is not sensitive to α_T^s . This finding is likely associated with the short residence time of the solute within the sand inclusion. It follows that the transverse dispersivity of the sand is not an influential parameter for the experimental conditions analyzed, and within the selected range of variability, i.e., it could be set at any nominal value within the selected interval without producing any significant effect on the model output. Consequently, this parameter should not be used in an inverse modeling procedure based on this experimental setup, and the number of parameters to calibrate is reduced. This implies that the experimental design and the sampling scheme of *Katz*

et al. [2010] are not conducive to a reliable estimate of α_T^s . We note that the interval of values we chose for constraining the variability of transverse dispersivity is consistent with the observation that dispersivity is correlated to grain size [Dullien, 1979].

[30] We also note that the results of the transport model are highly sensitive to the inlet flux distribution (embedded in the parameter ε_Q) at locations close to the upstream boundary and in the proximity of the locations of the flow lines associated with the 0.5 normalized average calcium concentrations. In contrast, the model has a very low sensitivity to the transverse dispersivity of the glass beads' medium at locations close to the flow line dividing the upper from the lower part of the cell. The sensitivity to this parameter increases with the distance from this region. This result is consistent with the physics embedded in the adopted process model based on the ADE.

[31] The effect of the sand's permeability is not confined solely within the low-permeability inclusion. It is seen to also extend upstream and downstream from the region packed with sand. This suggests that the calibration of K^s could benefit from pseudo steady state concentration data collected at points that are spread around the inclusion. Two areas are identified where a sensitivity to ε_K larger than 0.9 is calculated. One of these areas is mostly confined within the trapezoidal inclusion, while the other comprises a region close to the bottom corner of the flow cell downstream from the inclusion. The latter corresponds to a stagnation area in the system, the extent of which is mainly driven by the slope of the sand inclusion. This result highlights the power of an appropriate and robust model-driven experimental design. In this particular case, though, the values of CV are not negligible only in a limited portion of the domain within this sensitive area, which might complicate the installation of effective measuring ports within this region. We note that the detection of this sensitive region is associated with the concentration field failing to reach the pseudo steady state in this area for the simulation time considered.

[32] The assessment of the interactions among the parameters is computed in a straightforward manner upon relying on the PCE coefficients. We found small interactions between (1) ε_Q and ε_K , and (2) ε_K and ε_a^b . The interactions between ε_Q and ε_K are localized within areas of

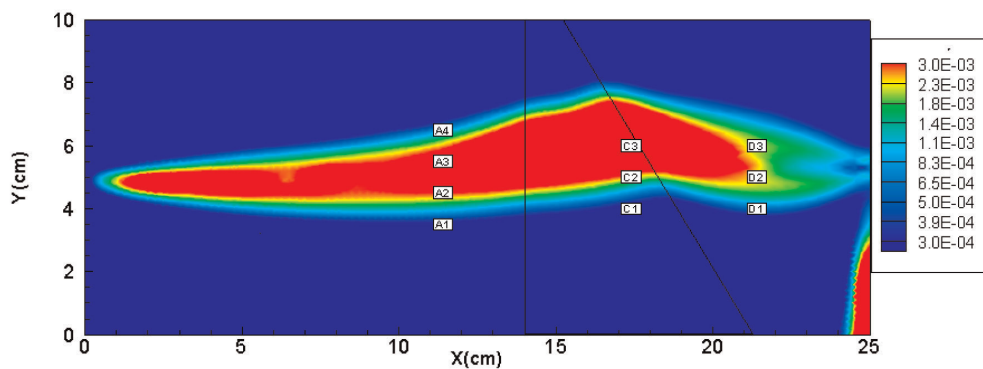


Figure 4. Spatial distribution of the variance of the normalized calcium concentrations obtained on the basis of a PCE of order $p = 4$, after 2 hours from the beginning of the experiment of *Katz et al.* [2010].

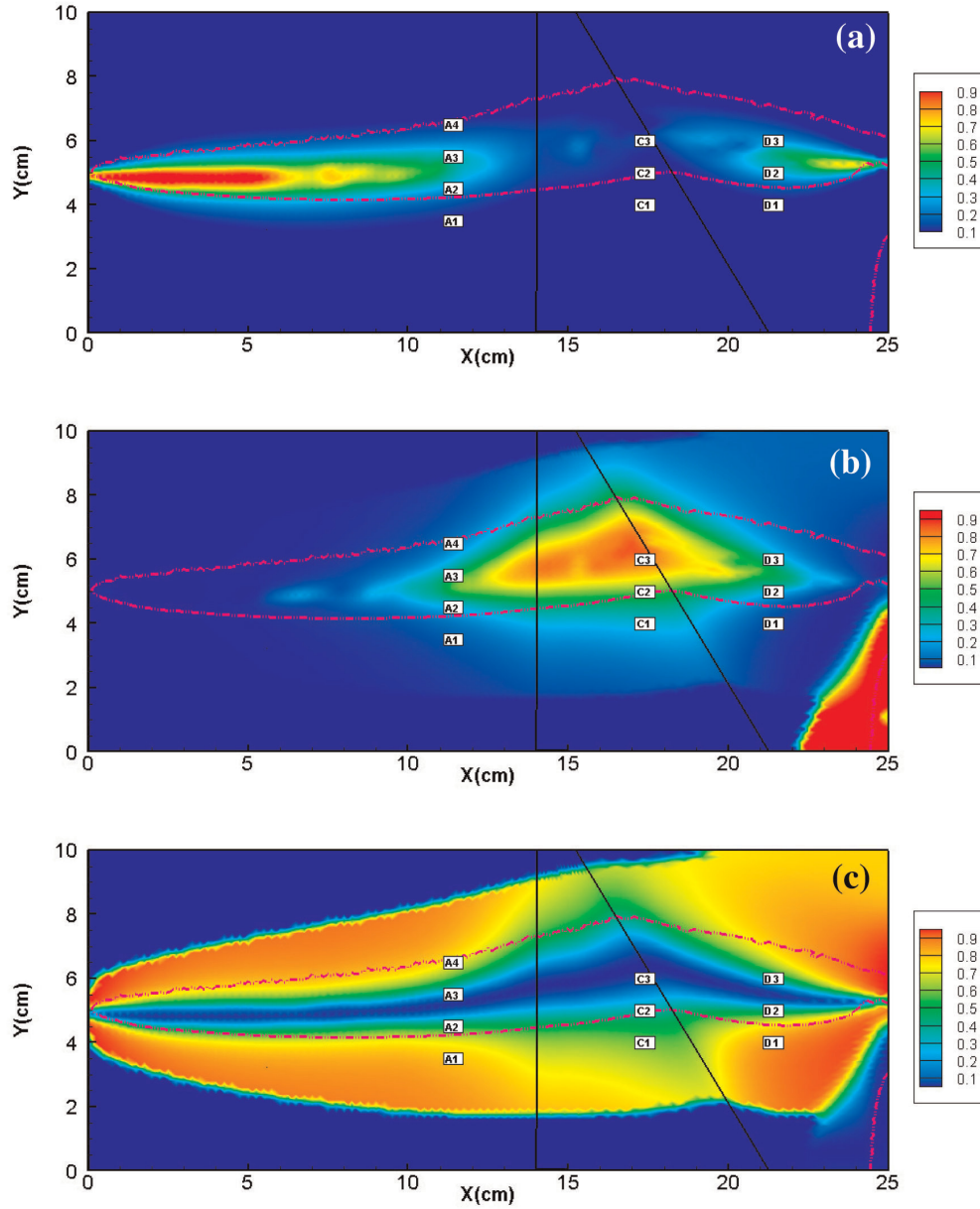


Figure 5. Spatial distribution for the experiment of Katz *et al.* [2010] of the main effects due to uncertainty in (a) the inlet flux distribution, S_1 ; (b) the sand average permeability, S_2 ; and (c) the transverse dispersivity of the glass beads medium, S_3 . Dashed lines denote the boundary of the region within which the coefficient of variation, CV , of the calculated normalized concentration is larger than 5%.

large concentration variance. The opposite is noted for the interactions between ε_K and ε_α^b , suggesting that the experimental conditions adopted by Katz *et al.* [2010] are not influenced by this effect.

[33] The calibration of the most sensitive parameters can then be performed. We start by recalling that Katz *et al.* [2010] performed their calibration of the ADE by considering α_T^b as the only adjustable parameter, and they obtained significant differences between the experimental and simulated results at some of the measurement ports (their Figure 9). Here we perform an inverse modeling of the ADE, and

we calibrate the inlet flux, K^s , and α_T^b (in terms of ε_Q , ε_K , and ε_α^b) within their interval of variation, while setting $\alpha_T^s = \alpha_T^b/2$, as in the work of Katz *et al.* [2010]. To this end, we use the genetic algorithm (GA) method [Haupt and Haupt, 2004]. The GA starts from an initial population, which is randomly generated within the range of variability of the parameters. The population then progresses throughout the generation process by using three genetic operators, i.e., (1) selection (determine the best individuals of the population); (2) crossover (combine two parents to generate two other individuals); and (3) mutation (modify an

individual to diversify the population) until convergence is reached. To evaluate the quality of the solution, we use the objective function

$$O = \frac{1}{N} \sqrt{\sum_{i=1}^N [w_i (C_{\text{mes}}^i - C_{\text{sim}}^i)]^2}. \quad (10)$$

[34] Here, C_{mes}^i and C_{sim}^i are the experimental and simulated pseudo steady state concentrations, respectively; N is the number of ports where the concentrations are measured, and w_i is the weight associated with C_{mes}^i . The values of the target concentrations C_{mes}^i are calculated as the average values of the concentrations measured during the pseudo steady state phase of the transport process at port i . The weight w_i is calculated as the inverse of the standard deviation of the pseudo steady state concentrations measured at port i and of the different replicates of the experiment.

[35] In this study, the simulated concentrations are obtained using the surrogate model, i.e., the PCE of order $p = 4$ presented in section 3 at the 10 measurement ports. We note that the PCE surrogate model is obtained for all of the nodes of the mesh using 122 runs of the ADE, as mentioned above. In this case, the convergence of the GA is obtained by means of 183 evaluations of the PCE, and it renders $O = 8.81 \times 10^{-5}$, requiring less than 1 s CPU time. The values of the calibrated parameters are $\varepsilon_Q = 0.058$, $\varepsilon_K = 1.57$ ($K^s = 2.31 \times 10^{-10} \text{ m}^2$), and $\varepsilon_\alpha^b = 0.7$ ($\alpha_T^b = 0.14 \text{ mm}$). As a term of comparison, *Katz et al.* [2010] adopted $\varepsilon = 0$ and $K^s = 1.47 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ (obtained from the application of the Kozeny-Carman equation on the basis of measured porosity and characteristic particle size measurements), and they manually calibrated α_T^b to a value of 0.8 mm. *Katz et al.* [2010] pointed out their inability to analyze values of $\alpha_T^b \leq 0.2 \text{ mm}$, due to the lack of convergence of the numerical code.

[36] As an example of the quality of our results, Figure 6 shows the calibration results for ports A1, A2, D1, D2, and D3. We obtained results of similar quality (not shown) in terms of estimated concentrations and parameters by employing the GA sampling scheme in conjunction with the numerical solution of the ADE by ELLAM. In this

case, 550 evaluations of the ADE model (to be compared against the 122 runs needed to obtain the PCE surrogate model for all nodes in the mesh) led to $O = 8.72 \times 10^{-5}$.

4.2. Sensitivity Analysis of the Experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b]

[37] We analyzed the experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b] by considering that the uncertainty of the model output is associated with six random input parameters: (1) the inlet flowrate, Q ; (2) the average permeability of the region packed with coarse glass beads, K_{CB} ; and (3) the longitudinal (α_L^j) and transverse (α_T^j) dispersivities of the two zones depicted in Figure 2 ($j = 1$ and 2 for the coarse and fine beads regions, respectively). The permeability value for the fine beads system, K_{FB} , is fixed to $3.4 \times 10^{-10} \text{ m}^2$, which is an average value for this packing [*Konz et al.*, 2009a, 2009b]. This choice is based on the ratio K_{CB}/K_{FB} being the relevant factor for the given setup and boundary conditions. The sensitivity analysis was performed by constraining the parameters within the following ranges of variability: (1) $Q = Q_0(1 + \varepsilon_Q)$, with $Q_0 = 29 \text{ cm}^3/\text{min}$ and $-0.05 \leq \varepsilon_Q \leq 0.05$; $K_{CB} = \varepsilon_K K_{CB}^0$, with $K_{CB}^0 = 25 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ and $1 \leq \varepsilon_K \leq 1.6$; $1.0 \text{ mm} \leq \alpha_L^1 \leq 10.0 \text{ mm}$; $0.1 \text{ mm} \leq \alpha_L^2 \leq 0.6 \text{ mm}$; $0.3 \text{ mm} \leq \alpha_L^2 \leq 3.0 \text{ mm}$; and $0.03 \text{ mm} \leq \alpha_T^2 \leq 0.3 \text{ mm}$. Similar to the procedure we adopted in section 4.1, the ranges of variability were chosen on the basis of the works of *Konz et al.* [2009a, 2009b] and according to physical considerations about the nature of the parameters selected.

[38] The flow was considered to be steady state. A transport experiment of 288 min was simulated by using 240 time steps with a regular time interval of $\Delta t = 1.2 \text{ min}$. A PCE of the order $p = 4$, requiring 478 runs of the transport model, allowed us to obtain sufficiently accurate results, i.e., no significant differences were detected by comparison against a PCE of order $p = 5$. Note that in this case, a PCE needs to be constructed for each node of the mesh and at each time step.

[39] As an example of the type of results obtained, Figure 7a depicts the spatial distribution of the mean dye concentration in the system after 120 min from the beginning of the simulation. The corresponding depiction of the distribution of the concentration variance due to the randomness

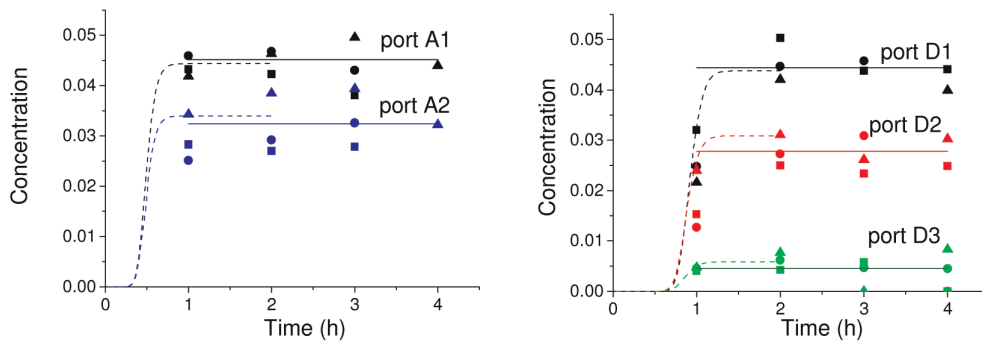


Figure 6. Calibration results for ports A1, A2, D1, D2, and D3 of *Katz et al.* [2010]; the symbols represent measurements performed during different replicates of the experiment; the dashed curves and solid lines correspond, respectively, to our simulation results and the experimentally based pseudo steady state concentrations at the ports.

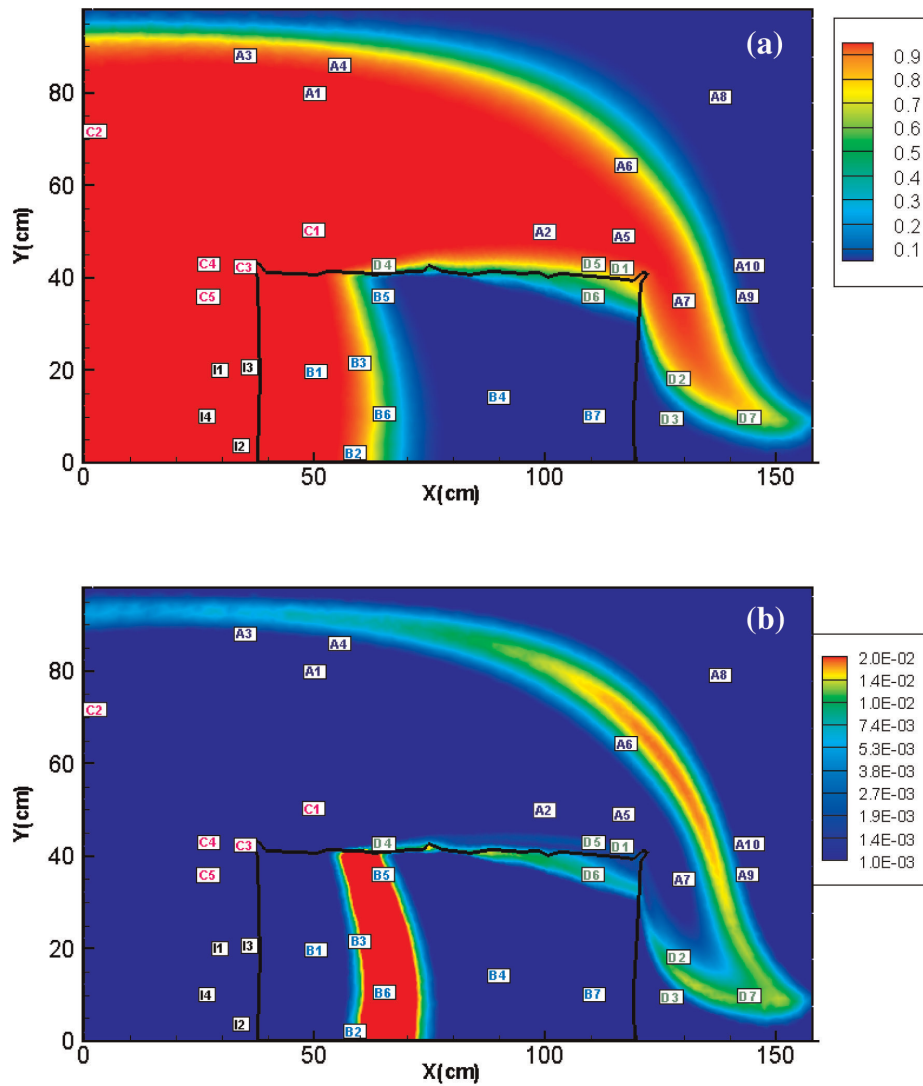


Figure 7. Spatial distribution of the (a) mean and (b) variance of the dye concentration in the system after 120 min from the beginning of the simulation of the experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b]. Sampling locations identified as A1–A10, B1–B7, C1–C5, D1–D7, and I1–I4 are representative of the different groups of sampling locations and are characterized by the different relative importance of the contributions of the random input parameters to the total concentration variance.

of input parameters is presented in Figure 7b. As a general comment, we note that the concentration variance is nonnegligible at locations close to the front of the advancing tracer. The largest variance values are mainly found around the solute advancing front within the low-permeability region. Based on the results of the sensitivity analysis, the sampling points can be classified into five groups. Each of these groups is characterized by a different and clearly distinguishable behavior in terms of the relative strength of the contributions of the random input parameters to the total concentration variance. Therefore, we present in detail the results of the sensitivity analysis only for a few selected points, which we consider as representative of the above-mentioned groups. Figure 7 depicts some of these sampling locations, which we have identified with the symbols A1–A10, B1–B7, C1–C5, D1–D7, and I1–I4, according to

the grouping scheme we adopted. The parameter calibration was then performed upon selecting only a few of the sampling points reported in Figure 7.

[40] Figures 8–12 show examples of the temporal distribution of the concentration variance at selected representative sampling locations together with the relative contributions associated with the chosen random input parameters. The shaded area under the variance curve includes the partial marginal contributions of the random input parameters as well as the contribution of their interactions. An inspection of the results reveals that the occurrence of the variance peak at a given location depends on the travel time of the advancing front of the solute. The temporal distributions of the observed variances, including their values, depend on the observation point, consistent with the migration processes embedded in the numerical transport model adopted. At locations close to

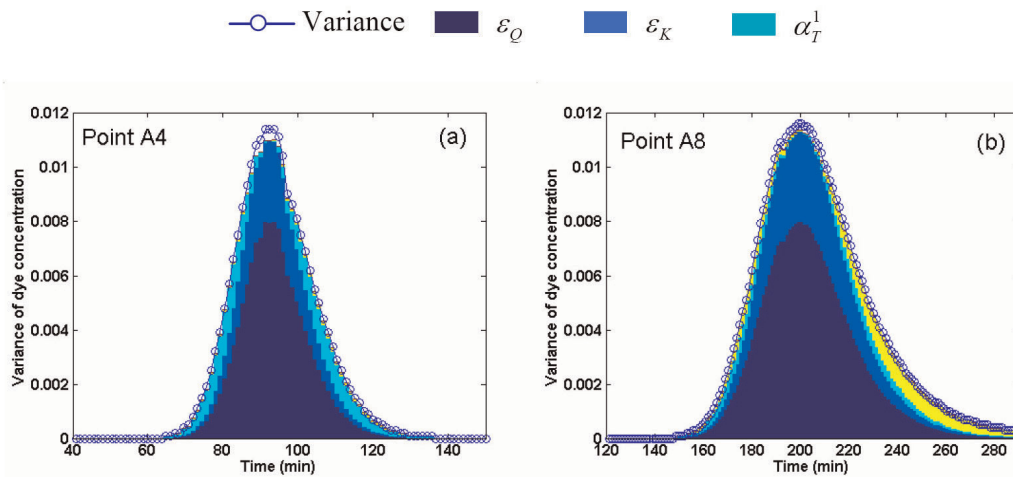


Figure 8. Time distribution of the concentration variance at selected sampling locations belonging to group A of the observation points (see Figure 7). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random input parameters; the contribution of interactions between parameters is included in the blank region between the shaded area and the variance curve.

the upper interface between the two conductivity regions, a double peak of concentration variance can occur (see also Figure 11, sampling point D4). This occurrence is mainly related to the differential diffusion/dispersion of the solute between the two regions filled with different glass beads and to the effect of the advective component due to its proximity to the outlet section.

[41] As seen in Figure 8, the concentration variance at points located well inside the coarse beads region and in the upper half of the cell (group A of sampling points) is mainly driven by uncertainties in the inlet flux, Q , and, to some extent, K_{CB} . Of the remaining parameters, only the longitudinal dispersivity α_L^1 has some additional impact,

depending on the location of the detection point in the system.

[42] A different behavior is associated with the sampling points located within the low-conductivity inclusion and belonging to group B (Figure 9). Here the concentration variance is chiefly governed by the contrast between the hydraulic conductivities of the two regions, which is consistent with the physics of the process. Only a very limited contribution is provided by Q , while the remaining parameters do not play any role in the process.

[43] The sensitivity to the transverse dispersivity, α_T^1 , of the highly conductive region is largest in the region where the sampling points belonging to group C of Figure 7 are

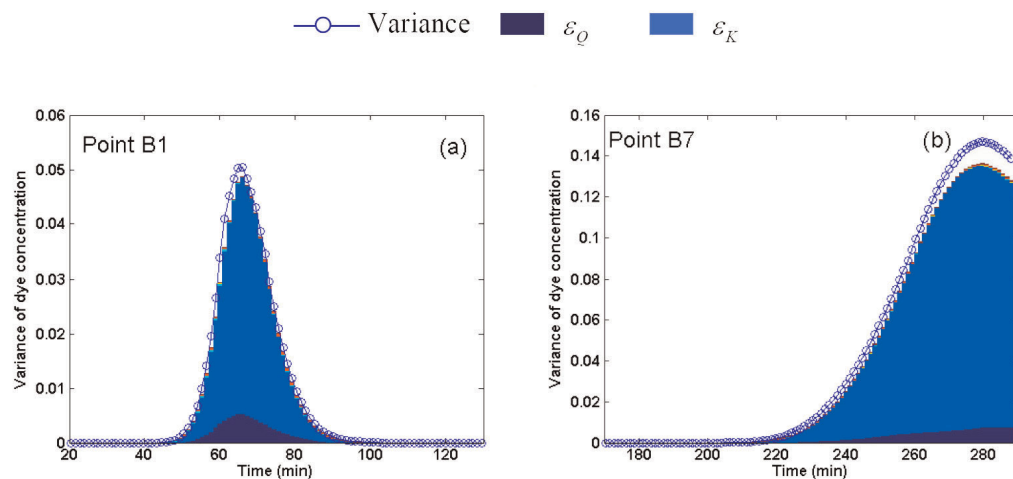


Figure 9. Time distribution of the concentration variance at selected sampling locations belonging to group B of the observation points in the experiment of Konz *et al.* [2009a, 2009b] (see Figure 7). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random input parameters; the contribution of interactions between parameters is included in the blank region between the shaded area and the variance curve.

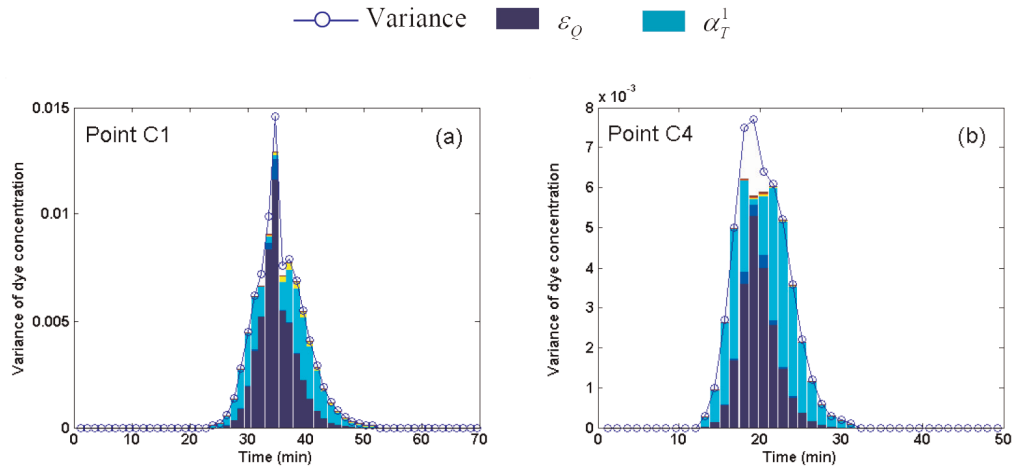


Figure 10. Time distribution of the concentration variance at selected sampling locations belonging to group C of the observation points in the experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b] (see Figure 7). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random input parameters; the contribution of interactions between parameters is included in the blank region between the shaded area and the variance curve.

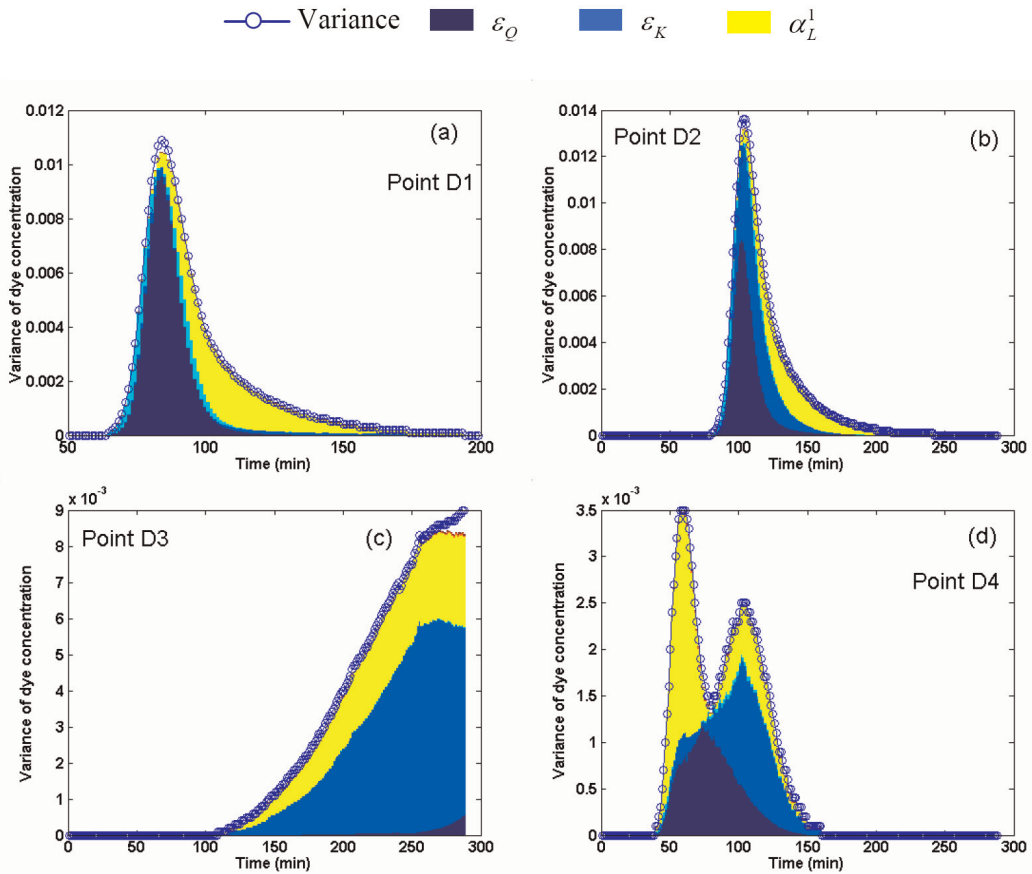


Figure 11. Time distribution of the concentration variance at selected sampling locations belonging to group D of the observation points in the experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b] (see Figure 7). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random input parameters; the contribution of interactions between parameters is included in the blank region between the shaded area and the variance curve.

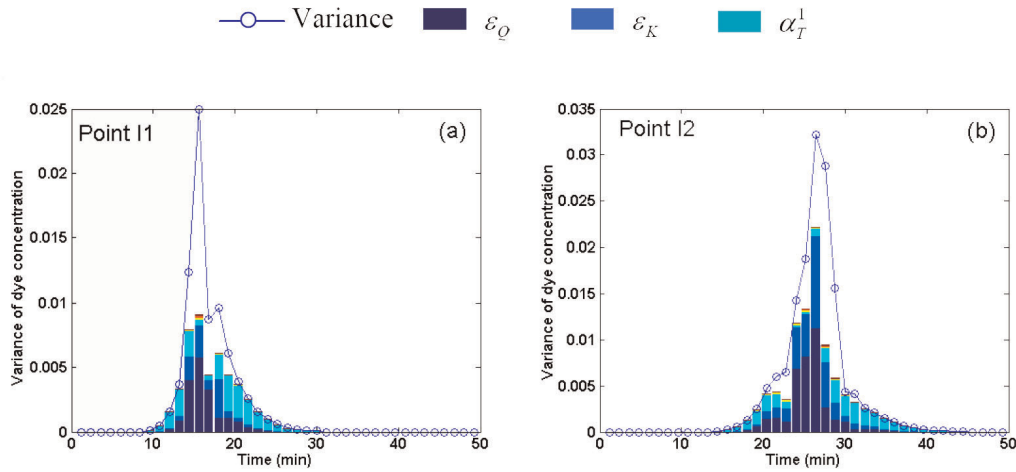


Figure 12. Time distribution of the concentration variance at selected sampling locations belonging to group I of the observation points in the experiment of *Konz et al.* [2009a, 2009b] (see Figure 7). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random input parameters; the contribution of interactions between parameters is included in the blank region between the shaded area and the variance curve.

located. These locations are relatively close to the inlet, and significant sensitivities occur at relatively short observation times, consistent with the local displacement of the resident fluid. The other key controlling parameter in this area is Q , as the sampling points are located relatively close to the inlet section (Figure 10).

[44] The longitudinal dispersivity of the high conductivity region, α_L^1 , has a relatively significant impact on the concentration variance at observation points located close to the horizontal interface between the high and low conductivity media, as well as in the low-velocity region downstream from the low-permeability inclusion. This result is detailed in Figure 11, where the results observed at selected points belonging to group D are reported. A contribution of Q can be detected at points relatively close to the inlet and outlet sections of the system (points D1, D4, and D2), while Q has a negligible effect at point D3 (Figure 11c), which is located in the low-velocity region downstream from the low-permeability inclusion. The effect of ε_K , representing the ratio between the permeabilities of the two subdomains, can be noted at some of these locations, and with various degrees of strength.

[45] Our results suggest that the concentration variance at the sampling points located upstream of the low-permeability inclusion and close to the bottom of the flow cell is strongly driven by interaction effects (Figure 12). These effects are mainly due to the combined effect of Q and K_{CB} . This behavior is opposite of that noted at all other locations in the system (Figures 8–11), where interactions are virtually absent or are associated with very low effects at all observation times.

[46] The analysis suggests that dye concentrations should be measured at points located within the four distinct regions identified as representative of the different sensitivities of the model response to the parameters. This approach allows the salient features of the system to be captured, and it is conducive to identifying the sensitive parameters during a calibration process. Finally, we note that our results indicate that the dispersivities of the low-permeability

inclusion do not affect the solute pattern in the system, which suggests that the adopted experimental setup is not conducive to a reliable estimate of these parameters.

[47] We calibrate the model parameters on the basis of a few measurement points that insured that all of the identified groups of the sampling locations were represented. For demonstration purposes, we selected nine sampling points, i.e., A9, A10, B5, B6, C4, C5, D4, D5, and D6 (see Figure 7 for their location). The calibration was performed on the basis of the objective function reported in (10) upon setting N to the total number of time-varying concentration values (C_{mes}^i) measured at the above mentioned nine locations. The weights w_i were set to unity because only one replicate of the experiment was available for each observation time, and the measurement errors were the same at all points. The simulated concentrations were obtained using the surrogate model, i.e., the PCE of order $p = 4$ mentioned above. The parameters' space was searched by means of the same GA adopted in section 4.1. The convergence was attained with a CPU time of less than 4 s. The values of the calibrated parameters were $\varepsilon_Q = -1.9 \times 10^{-2}$ ($Q = 28.45 \text{ cm}^2/\text{min}$), $\varepsilon_K = 1.25$ ($K_{CB} = 31.25 \times 10^{-10} \text{ m}^2$), $\alpha_L^1 = 0.15 \text{ cm}$, and $\alpha_T^1 = 0.015 \text{ cm}$. Note that on the basis of our results, the parameters to which the process is chiefly sensitive are only ε_Q and ε_K , while the system displays a moderate sensitivity to α_L^1 and α_T^1 (Figures 10 and 11). Consequently, the optimal values of α_L^2 and α_T^2 were not investigated in the calibration procedure.

[48] As an example of the quality of our results, Figure 13 shows the calibration results at points A9, D5, D6, B7, D7, and I4. Note that measurements at points B7, D7, and I4 were not used in the calibration procedure. It can be seen that the observed behavior of the system was reproduced to a high degree of accuracy by the calibrated model. Our results are consistent with those provided by *Konz et al.* [2009a, 2009b], who performed a preliminary sensitivity study by considering a few selected values of some of the indicated parameters.

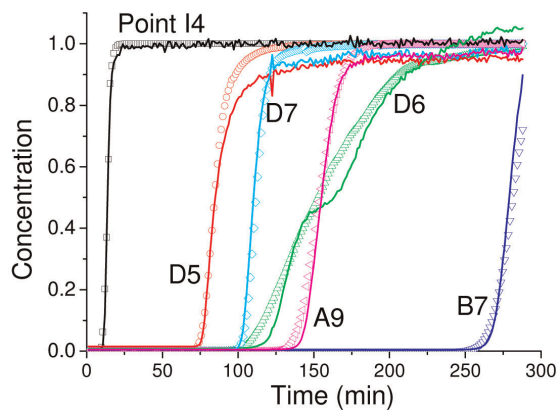


Figure 13. Calibration results for selected measurement points (see Figure 7 for their locations in the domain) in the experiment of Konz *et al.* [2009a, 2009b]; symbols and continuous lines represent computed and measured concentrations, respectively.

5. Conclusions

[49] Our work leads to the following key conclusions:

[50] 1. The use of global sensitivity analysis (GSA) based on the Sobol indices applied to a conservative transport model allows quantification of the influence of the model input parameters on the distribution of solute concentrations within a heterogeneous laboratory-scale porous medium. At the same time, adopting a surrogate model (or metamodel) to depict transport on the basis of the polynomial chaos expansion (PCE) theory allows a considerable reduction of the computation time required to predict the system response and is conducive to a straightforward estimation of the Sobol indices.

[51] 2. The methodology was employed to analyze two nonreactive transport experiments available in the literature. In both cases, and for demonstration purposes, we selected only a limited number of uncertain parameters. These parameters included quantities that can be affected by measurement uncertainty (e.g., model boundary conditions), and the hydraulic and dispersive parameters of the porous medium. The two experiments were associated with different transport regimes (pseudo steady state or transient) and with different information (measurement) availability. Our analysis allowed us to analyze in detail the sampling design adopted in one of the experiments. It has proved to be an effective tool for extracting space-time distributions of measurements with high information content from the wide database available in the other experiment analyzed.

[52] 3. The acquired knowledge of the input-output relationships provides valuable information for experiment design and characterization. This information can help with defining, for example, effective sampling or measurement planning, and with determining more precisely the values of sensitive parameters describing the system on the basis of the interpretive transport model adopted. Extending the methodology to deal with stochastic spatial distributions of flow (and possibly transport) parameters could be an interesting development in view of applications targeted toward

risk analysis of large-scale contaminated aquifers and performance assessments of aquifer remediation schemes.

[53] **Acknowledgments.** This project was supported by CNRS and the Research Group GNR MoMaS (Modélisations Mathématiques et Simulations numériques liées aux problèmes de gestion des déchets nucléaires). Part of the work was developed while A. Guadagnini was “Professeur Invité” at the University of Strasbourg.

References

- Acharjee, S., and N. Zabarar (2007), A non-intrusive stochastic Galerkin approach for modeling uncertainty propagation in deformation processes, *Comput. Struct.*, **85**, 244–254.
- Berkowitz, B., A. Cortis, M. Dentz, and H. Scher (2006), Modeling non-Fickian transport in geological formations as a continuous time random walk, *Rev. Geophys.*, **44**, RG2003, doi:10.1029/2005RG000178.
- Cirpka, O. A., A. Olsson, Q. Ju, M. D. A. Rahman, and P. Grathwohl (2006), Determination of transverse dispersion coefficients from reactive plume lengths, *Ground Water*, **44**, 212–221.
- Dullien, F. A. L. (1979), *Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure*, Academic, New York.
- Frey, C. H., and S. R. Patil (2002), Identification and review of sensitivity analysis methods, *Risk Anal.*, **22**, 553–578.
- Ghanem, R. G., and P. D. Spanos (1991), *Stochastic Finite Elements—A Spectral Approach*, Springer, Berlin.
- Gramling, C. C. F. Harvey, and L. Meigs (2002), Reactive transport in porous media: A comparison of model prediction with laboratory visualization, *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 2508–2514.
- Haupt, R. L., and S. E. Haupt (2004), *Practical Genetic Algorithms*, 2nd ed., Wiley, New York.
- Homma, T., and A. Saltelli (1996), Importance measures in global sensitivity analysis of nonlinear models, *Reliab. Eng. Syst. Safety*, **52**, 1–17.
- Huang, S. P., S. Mahadevan, and R. Rebba (2007), Collocation-based stochastic finite element analysis for random field problems, *Probab. Eng. Mech.*, **22**, 194–205.
- Katz, G. E., B. Berkowitz, A. Guadagnini, and M. W. Saaltink (2010), Experimental and modeling investigation of multicomponent reactive transport in porous media, *J. Contam. Hydrol.*, doi:10.1016/j.jconhyd.2009.11.002, in press.
- Kiparissides, A., S. S. Kucherenko, A. Mantalaris, and E. N. Pistikopoulos (2009), Global sensitivity analysis challenges in biological systems modeling, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **48**, 7168–7180.
- Kontoravdi, C., S. P. Asprey, E. N. Pistikopoulos, and A. Mantalaris (2005), Application of global sensitivity analysis to determine goals for design of experiments: An example study on antibody-producing cell cultures, *Biotechnol. Prog.*, **21**, 1128–1135.
- Konz, M., P. Ackerer, A. Younes, P. Huggenberger, and E. Zechner (2009a), Two-dimensional stable-layered laboratory-scale experiments for testing density-coupled flow models, *Water Resour. Res.*, **45**, W02404, doi:10.1029/2008WR007118.
- Konz, M., P. Ackerer, P. Huggenberger, and C. Veit (2009b), Comparison of light transmission and reflection techniques to determine concentrations in flow tank experiments, *Exp. Fluids*, **47**, 85–93.
- Li, H., and D. Zhang (2007), Probabilistic collocation method for flow in porous media: Comparisons with other stochastic methods, *Water Resour. Res.*, **43**, W09409, doi:10.1029/2006WR005673.
- Li, H., and D. Zhang (2009), Efficient and accurate quantification of uncertainty for multiphase flow with probabilistic collocation method, *SPE J.*, **14**, 665–679, doi:10.2118/114802-PA.
- Li, W., Z. Lu, and D. Zhang (2009), Stochastic analysis of unsaturated flow with probabilistic collocation method, *Water Resour. Res.*, **45**, W08425, doi:10.1029/2008WR007530.
- Marrel, A., B. Iooss, B. Laurent, and O. Roustant (2009), Calculations of Sobol indices for the Gaussian process metamodel, *Reliab. Eng. Syst. Safety*, **94**, 742–751.
- Oates, P. M., and C. F. Harvey (2006), A colorimetric reaction to quantify fluid mixing, *Exp. Fluids*, **41**, 673–683.
- Saaltink, M. W., F. Battle, C. Ayora, J. Carrera, and S. Olivella (2004), RETRASO, a code for modeling reactive transport in saturated and unsaturated porous media, *Geol. Acta*, **2**(3), 235–251.
- Saltelli, A., M. Ratto, S. Tarantola, and F. Campolongo (2006), Sensitivity analysis practices: Strategies for model-based inference, *Reliab. Eng. Syst. Safety*, **91**, 1109–1125.
- Sobol, I. M. (1993), Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models, *Math. Model. Comput.*, **1**, 407–414.

- Sobol, I. M. (2001), Global sensitivity indices for nonlinear mathematical models and their Monte Carlo estimates, *Math. Comput. Simul.*, 55, 271–280.
- Soize, C., and R. Ghanem (2004), Physical systems with random uncertainties: Chaos representations with arbitrary probability measure, *SIAM J. Sci. Comput.*, 26, 395–410.
- Sudret, B. (2008), Global sensitivity analysis using polynomial chaos expansions, *Reliab. Eng. Syst. Safety*, 93, 964–979.
- Tatang, M. A., W. W. Pan, R. G. Prin, and G. J. McRae (1997), An efficient method for parametric uncertainty analysis of numerical geophysical models, *J. Geophys. Res.*, 102, 21925–21932.
- van Riel, N. A. W. (2006), Dynamic modelling and analysis of biochemical networks: Mechanism-based models and model-based experiments, *Brief. Bioinform.*, 7, 364–374.
- Volkova, E., B. Iooss, and F. Van Dorpe (2008), Global sensitivity analysis for a numerical model of radionuclide migration from the RRC “Kurchatov Institute” radwaste disposal site, *Stoch. Environ. Res. Risk Assess.*, 22, 17–31.
- Wiener, N. (1938), The homogeneous chaos, *Am. J. Math.*, 60, 897–936.
- Xiu, D., and G. E. Karniadakis (2002), The Weiner-Askey Polynomial Chaos for stochastic differential equations, *SIAM J. Sci. Comput.*, 24(2), 619–644, doi:10.1137/S1064827501387826.
- Xiu, D., and G. E. Karniadakis (2003), A new stochastic approach to transient heat conduction modeling with uncertainty, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 46, 4681–4693.
- Younes, A., and P. Ackerer (2005), Solving the advection-diffusion equation with the Eulerian-Lagrangian localized adjoint method on unstructured meshes and non uniform time stepping, *J. Comput. Phys.*, 208, 384–402.
- Younes, A., P. Ackerer, and F. Lehman (2006), A new efficient Eulerian-Lagrangian localized adjoint method for solving the advection-dispersion equation on unstructured meshes, *Adv. Water. Resour.*, 29, 1056–1074.
- Younes, A., M. Fahs, and P. Ackerer (2008), A new approach to avoid excessive numerical diffusion in Eulerian-Lagrangian methods, *Comm. Numer. Methods Eng.*, 24, 897–910.
- Zhang, D., L. Shi, H. Chang, and J. Yang (2010), A comparative study of numerical approaches to risk assessment of contaminant transport, *Stoch. Environ. Res. Risk Assess.*, in press.

P. Ackerer, N. Fajraoui, F. Ramasomanana, and A. Younes, Laboratoire d’Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg, Université de Strasbourg, EOST, CNRS, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg, France.

A. Guadagnini, Dipartimento Ingegneria Idraulica, Ambientale, Infrastrutture Viarie, e Rilevamento, Politecnico di Milano, Piazza L. Da Vinci 32, I-20133 Milan, Italy. (alberto.guadagnini@polimi.it)

T. A. Mara, Department de Physique, PIMENT, Université de La Réunion, 15 Av. René Cassin, BP 7151, 97715 Moufia, La Réunion.

Chapitre 3

L'estimation des paramètres en milieu poreux

- 3.1 Introduction**
- 3.2 L'optimisation**
 - 3.2.1 *Le critère quadratique*
 - 3.2.2 *Le maximum de vraisemblance*
 - 3.2.3 *Le maximum à posteriori*
- 3.3 Sur les algorithmes d'optimisation**
- 3.4 Les algorithmes génétiques**
 - 3.4.1 *Principe général de fonctionnement*
 - 3.4.2 *Description détaillée*
 - 3.4.2.1 *Le codage des paramètres*
 - 3.4.2.2 *La sélection*
 - 3.4.2.3 *Le croisement*
 - 3.4.2.4 *La mutation*
- 3.5 Les chaines de Markov**
 - 3.5.1 *Echantillonnage de type Monte Carlo*
 - 3.5.2 *Algorithme de Gibbs*
 - 3.5.3 *Algorithme de Metropolis-Hastings*
 - 3.5.4 *MCMC adaptatif*
 - 3.5.5 *Diagnostics de convergence d'une chaine de Markov*
- 3.6 Applications à l'inversion de modèle en milieux poreux**
 - 3.6.1 *Reactive Transport Parameter Estimation and Global Sensitivity Analysis Using Sparse Polynomial Chaos Expansion*
 - 3.6.2 *Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters*

3.1 Introduction

Le problème de l'estimation des paramètres par approche inverse se pose avec acuité dans de nombreuses disciplines scientifiques telles que la physique, la biologie ou l'économie. En hydrogéologie, cette problématique est d'autant plus prégnante que l'incertitude sur les caractéristiques hydrauliques d'un sol est souvent méconnue. Or, la connaissance des paramètres est capitale pour espérer prédire le devenir des polluants dans les sols ou la réserve en eau dans les nappes phréatiques.

Dans le chapitre 2, nous avons vu comment prendre en compte les incertitudes en entrée sur les prédictions d'un modèle numérique. Nous avons également expliqué comment déterminer les entrées les plus influentes du modèle pour une sortie donnée. Cependant, s'il s'avère que la prédiction est très incertaine (incertitude importante) alors, il est primordial d'affiner nos connaissances sur les paramètres (à priori les plus influents) afin d'obtenir des prédictions plus fiables. Ceci passe par la confrontation du modèle aux observations aussi appelé étape de validation. Dans ce chapitre, nous étudions quelques approches pour inverser un modèle c'est-à-dire : déterminer le jeu de valeurs de paramètres (ou l'ensemble des jeux de valeurs) conduisant à des prédictions en accord avec les observations.

Les problèmes inverses sont généralement difficiles à résoudre. Ils sont souvent mal posés au sens mathématique de Hadamard (Hadamard, 1952). Un problème est dit bien posé s'il satisfait aux trois critères suivants :

- Existence de solutions ;
- Unicité de la solution ;
- Stabilité de la solution, c'est-à-dire que de petites variations sur les observations conduisent à de petites variations des valeurs estimées.

D'autres difficultés affectent le problème inverse et sont liées à la notion d'identifiabilité des paramètres. Par exemples, (i) la non-identifiabilité liée à l'insensibilité de la sortie par rapport aux paramètres qui implique la non unicité de la solution ou (ii) la non-identifiabilité due au manque d'information dans les mesures pour assurer une bonne estimation des paramètres (Iskrev 2010 ; Vrugt et al., 2001). D'une manière générale, le problème inverse se ramène à un problème d'optimisation (minimisation ou maximisation). Cela passe par (i) la définition préalable de la fonction à optimiser, qui dépend du type de problème considéré, et (ii) le choix d'une méthode numérique adéquate pour l'inversion.

3.2 L'optimisation

3.2.1 Le critère quadratique

Soit un ensemble de N_{obs} données $d = \{d_1, \dots, d_{N_{obs}}\}$ d'un système complexe modélisé par une fonction $f(\theta)$ de n paramètres $\theta = \{\theta_1, \dots, \theta_n\}$ (à déterminer). On dispose d'une approximation numérique $f(\theta)$ (modèle numérique) de ce modèle. Une des étapes importantes de la formulation du problème inverse est le choix du critère (ou fonction objectif) servant à mesurer la qualité de l'estimation par rapport aux valeurs mesurées. Plusieurs approches peuvent être utilisées pour définir le critère d'optimisation. Le critère quadratique est largement utilisé à cause de son caractère intuitif (Carrera et Neuman, 1986 ; Tarantola, 2005). Ce critère est souvent construit indépendamment de toute considération statistique bien qu'une approche probabiliste peut conduire à ce même critère. Un critère quadratique (aussi appelé fonction coût) est de la forme :

$$J(\theta) = (f(\theta) - d)^T W (d - f(\theta)) + \lambda \pi(\theta) \quad (3.1)$$

où W est une matrice de pondération symétrique définie positive (tenant compte des erreurs de mesures et du modèle, des corrélations entre les mesures, des différentes échelles,...), λ est un vecteur de m multiplicateurs de Lagrange permettant de tenir compte de certaines contraintes sur les paramètres. Dans ce dernier cas, le problème inverse est dit régularisé.

Le jeu de paramètres optimal θ^{MC} au sens des moindres carrés généralisés minimise le critère quadratique précédent, à savoir :

$$\theta^{MC} = \arg \min \left\{ (f(\theta) - d)^T W (d - f(\theta)) + \lambda \pi(\theta) \right\} \quad (3.2)$$

Très souvent W est diagonal de sorte que (3.1) puisse s'écrire sous la forme :

$$J(\theta) = \sum_{i=1}^{N_{obs}} w_{ii} (f_i(\theta) - d_i)^2 + \sum_{j=1}^m \lambda_j \pi_j(\theta) \quad (3.3)$$

Les coefficients w_{ii} , appelés également poids de la mesure, sont définis à priori et permettent de moduler l'impact des mesures sur l'optimisation. Par exemple, on peut

éliminer les données non-significatives en posant $w_{ii} = 0$ ou mettre à la même échelle différents types de mesure par un choix approprié de ces poids. Cela est particulièrement intéressant quand les sorties présentent des échelles de variation très différentes. Toutefois, la dépendance du résultat de l'optimisation au choix de la matrice de pondération peut sembler arbitraire. L'approche probabiliste offre un cadre rigoureux pour définir la fonction objectif. Cette approche est développée dans les deux sous-sections suivantes.

3.2.2 Le maximum de vraisemblance

Le jeu de paramètres optimal au sens de vraisemblance noté θ^{MV} maximise la densité de probabilité suivante :

$$p(d|\theta) \quad (3.4)$$

Aussi appelée fonction de vraisemblance. Maximiser la vraisemblance (ou le log-vraisemblance) consiste à chercher le jeu de paramètres θ^{MV} qui attribue aux données mesurées la plus grande vraisemblance. Cette approche permet de tenir compte des informations disponibles sur la nature du bruit agissant sur le système. En effet, considérons le modèle suivant,

$$d = f(\theta) + \varepsilon \quad (3.5)$$

avec ε : un terme d'erreur incluant aussi bien les erreurs de mesures que les erreurs du modèle numérique. Nous supposons que ε est un vecteur de N_{obs} variables aléatoires identiquement et indépendamment distribuées selon la loi p_e . Alors la fonction de vraisemblance s'écrit,

$$p(d|m) = \prod_{k=1}^{N_{obs}} p_e(d_k - f_k(\theta)) \quad (3.6)$$

Le cas particulier où $p_e = N(0, C_e)$ fournit la vraisemblance suivante,

$$p(d|\theta, C_e) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(f(\theta) - d)^T C_e^{-1}(d - f(\theta))\right) \quad (3.7)$$

dont le logarithme n'est rien d'autre que le critère des moindres carrées généralisées (3.1) sans contrainte ($\lambda = 0$). On remarque alors que la matrice de pondérations correspond à la matrice de covariance de l'erreur. Bien que le maximum de vraisemblance se ramène aux moindres carrées généralisées, il peut conduire à des résultats d'inversion peu plausibles voire impossibles (e.g. conductivité hydraulique négative, dispersivité supérieure à la taille du domaine, . . .). Cela est dû au fait que le critère (3.7) ne contient aucune contrainte sur

les paramètres à identifier. Ceci peut conduire l'algorithme d'inversion à explorer des régions de l'espace des paramètres jugées peu plausibles. Le maximum à posteriori permet de régulariser le problème.

3.2.3 *Le maximum à posteriori*

L'approche bayésienne offre un cadre rigoureux pour l'estimation des paramètres à partir de données bruitées et pour les modèles incertains, en intégrant les informations diverses disponibles à priori. Les paramètres sont assimilés à des variables aléatoires décrites par une densité de probabilité conjointe à priori $p(\theta)$. La densité de probabilité à posteriori des paramètres est définie par la loi de Bayes :

$$p(\theta|d) \propto p(d|\theta)p(\theta) \quad (3.8)$$

Le jeu de paramètres optimal au sens du maximum à posteriori est tel que :

$$\theta^{MAP} = \arg \max p(d|\theta) \quad (3.9)$$

De la même manière que précédemment, le cas particulier où $p_e = N(0, C_e)$ et $p(\theta) = N(\mu, C_\theta)$ fournit l'à posteriori suivant,

$$p(\theta|d, \mu, C_\theta, C_e) \propto \exp \left(-\frac{1}{2} \left[(f(\theta) - d)^T C_e^{-1} (d - f(\theta)) + (\theta - \mu)^T C_\theta^{-1} (\theta - \mu) \right] \right) \quad (3.10)$$

dont le logarithme est de la même forme que le critère des moindres carrées généralisées (3.1).

Toutefois, l'inférence Bayésienne fournit plus qu'un jeu de paramètres optimal, elle fournit la densité de probabilité à posteriori des paramètres ; autrement dit, l'ensemble des solutions probables compte tenu de la connaissance que l'on a à priori sur les observations et les paramètres. Pour pouvoir déterminer toutes ces solutions probables, il faut être capable d'échantillonner les valeurs de paramètres conformément à cette densité de probabilité. Un tel échantillonnage peut être entrepris avec un algorithme de type chaîne de Markov Monte Carlo (MCMC) décrit dans la section 3.5. Nous voyons alors que pour le problème inverse deux voies sont possibles : i) rechercher la (ou les) solution(s) optimale(s), ii) échantillonner l'ensemble des solutions probables à posteriori. En pratique, pour mener à bien ii), il est tout de même préférable, dans un premier temps, de déterminer θ^{MAP} . Cela permet à l'algorithme MCMC de débiter l'exploration de l'espace des paramètres dans une région probable (Vrugt et Bouten, 2002).

3.3 Sur les algorithmes d'optimisation

La recherche de solutions optimales (lorsqu'elles existent) requiert le recours à un algorithme d'optimisation. Pour pouvoir choisir convenablement la méthode la plus adaptée à nos problèmes, quelques clés de différenciations des méthodes d'optimisation ont été proposées.

- **Méthodes déterministes ou stochastiques.** Les algorithmes déterministes explorent l'espace de recherche d'une façon déterministe, c'est-à-dire en se basant sur des lois mathématiques bien connues. Ils permettent de situer la direction de l'optimum par rapport à chacun des points de cet espace et de diminuer progressivement la distance entre le point courant et l'optimum. Par opposition, les algorithmes d'optimisation stochastiques explorent l'espace de recherche des paramètres d'une façon aléatoire. Dans le cas où la fonction est très complexe et que les lois mathématiques sont difficiles à mettre en œuvre ou lorsque les solutions admissibles sont de très grande taille, la méthode déterministe peut rencontrer des difficultés. Les méthodes d'optimisation stochastiques permettent de remédier à ces difficultés en considérant les paramètres comme des variables aléatoires.
- **Méthodes de recherche globale et locale.** Les méthodes d'optimisation locale convergent vers un minimum local de la fonction à minimiser. Si un problème est multimodal, susceptible de contenir plusieurs minima locaux, cette méthode n'est pas robuste et peut être piégée dans un minimum local qui peut être différent de l'optimum global. La méthode de recherche globale explore tout l'espace de recherche de façon à converger vers le minimum global. De manière générale, l'optimisation globale peut être traitée en deux étapes : l'exploration de l'espace de recherche pour localiser la zone qui contient l'optimum et l'exploitation de cette zone. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle demande un nombre important d'évaluations de la fonction coût. Selon Kern (2002), les méthodes globales sont à réserver au cas particulier de l'identification d'un petit nombre de paramètres.
- **Méthodes combinatoire et continue.** Les algorithmes combinatoires traitent les variables qui ont un nombre fini de valeurs possibles, alors que les algorithmes d'optimisation continue traitent les variables qui possèdent un nombre infini et continue de valeurs possibles (Majdalani, 2007).
- **Méthodes basés sur le gradient (parfois appelés algorithmes de descente) et les algorithmes sans gradient.** Les premières se basent sur l'amélioration d'une

solution en suivant la ligne de plus grande pente (le gradient). Les limites de cette méthode est qu'elle n'est pas applicable pour les fonctions non différentiables et qu'elle risque de converger vers un minimum local. Les méthodes sans calcul de gradient sont plus robustes mais plus coûteuses en temps de calcul et peuvent être appliquées pour la minimisation des fonctions non différentiables (Chaigne, 2009).

On peut ajouter à cette classification, le type de fonctionnement du modèle selon que la fonction coût est ou non fonction du temps, l'optimisation mono dimensionnelle ou multidimensionnelle, l'optimisation par tâtonnement ou par fonction, l'optimisation avec ou sans contraintes. Une optimisation sans contraintes permet aux paramètres de prendre n'importe quelle valeur. Si les paramètres du problème ont des contraintes, ces dernières sont introduites dans la fonction coût sous forme d'égalités ou d'inégalités entre les paramètres.

Le choix d'une méthode locale ou globale, d'une méthode déterministe ou stochastique, dépend seulement du problème considéré. Notons qu'en hydrogéologie, la méthode de l'état adjoint a été largement utilisée depuis plus de deux décennies pour la modélisation inverse. Son application implique non seulement l'identification des paramètres, mais aussi l'analyse de sensibilité. Les algorithmes d'optimisation locale basées sur le calcul du gradient tels que la méthode de Levenberg Marquardt (Kool et al ; 1987; Lehmann et Ackerer, 1997) sont parfois préférés en raison de leur rapidité de recherche de la solution. Dans le cadre de cette thèse, nous avons opté selon l'application, pour une méthode d'optimisation globale basée sur les Algorithmes Génétiques (AG) ou pour une méthode basée sur l'inférence Bayésienne.

3.4 Les algorithmes génétiques

Les méthodes déterministes basées sur des lois mathématiques échouent quand la fonction objective n'est pas continue ou dérivable. Les méthodes d'optimisation stochastiques de recherche aléatoire dont les algorithmes génétiques permettent de surmonter cette difficulté. John Holland (1975) a commencé à s'intéresser au début des années soixante à l'étude des algorithmes génétiques, et ce n'est qu'en 1975 que cette méthode a été développée. Elle a été popularisée par Goldberg en 1989.

Les algorithmes génétiques sont des méthodes d'optimisation qui s'inspirent des principes de l'évolution naturelle et de la génétique : croisements, mutations, sélection. Ces méthodes ne nécessitent pas de connaissance particulière du problème à résoudre. Elles sont connues pour leur robustesse et leur capacité à s'échapper des minima locaux puisqu'elles évaluent simultanément plusieurs solutions.

Les algorithmes génétiques ont été testés dans des contextes très variés. Par exemple pour étudier le processus complexe d'adaptation en biologie, l'étude des problèmes d'optimisation paramétrique (Goldberg, 1991), l'optimisation de la circulation des avions sur un aéroport, l'optimisation de la conception des machines électriques ou pour l'estimation des paramètres d'un écoulement préférentiel.

3.4.1 Principe général de fonctionnement

Avec les algorithmes génétiques, on cherche dans un espace de données, la solution qui minimise au mieux la fonction coût. Cette recherche s'effectue d'une manière itérative en se basant sur des transformations inspirées de la génétique, tout en convergeant vers les solutions les plus adaptées. Plusieurs concepts biologiques se transposent dans les algorithmes génétiques, et sont définis comme suit:

- Individu : appelé également chromosome, représente une solution donnée mais sous forme codée.
- Population: un ensemble d'individus d'une même génération (ou itération). Une population contient N_{pop} individus. N_{pop} est un paramètre de l'algorithme.
- Fonction d'adaptation ou fitness : cette fonction mesure les performances des individus. Les individus les mieux adaptés donnent des solutions qui minimisent au mieux la fonction objective. Cette dernière joue alors le rôle d'un environnement où les meilleurs individus vont survivre pour la génération suivante.
- Opérateurs génétiques : qui permettent l'exploitation et l'exploration de l'espace de recherche pour former une nouvelle population plus adaptée. Il s'agit de rechercher la zone de l'espace qui peut contenir l'optimum pour ensuite rechercher localement à l'intérieur de cette zone. Ces opérateurs sont la sélection, le croisement et la mutation.
- Sélection : permet de garder les solutions "bonnes" ou les plus adaptées pour la reproduction.
- Croisement : permet la génération de nouveaux individus (dits aussi enfants) en combinant des parties des anciens individus (dits aussi parents).
- Mutation : permet la création de nouveaux individus. Les anciens individus subissent des changements externes sur leur structure d'une façon aléatoire.

Le principe général de fonctionnement d'un algorithme génétique est le suivant :

1. Définition et codage des paramètres: après la définition des paramètres, le codage consiste à les écrire sous forme simple et compréhensible par les algorithmes génétiques ;
2. Génération aléatoire de la population initiale ;
3. Evaluation de la population à l'aide de la fonction coût pour pouvoir localiser les individus dits “bons” c'est-à-dire ceux qui aboutissent à la fonction coût la plus petite ;
4. Sélection des individus qui vont survivre pour la reproduction selon un taux de sélection ;
5. Choix de deux parents parmi les individus “bons” qui vont subir le croisement générant ainsi des enfants ;
6. Mutation pour générer une nouvelle population ;
7. Réitération à partir de l'étape 3 jusqu'à convergence de l'algorithme. La convergence de l'algorithme génétique est obtenue si le nombre maximal d'itérations est atteint ou si la fonction coût est inférieure à une valeur minimale (imposée).

Les algorithmes génétiques présentent les avantages suivants :

- L'optimisation peut se faire pour des variables continues ou discrètes ;
- La recherche de solution se fait à partir d'une population de points (plusieurs candidats) et non pas à partir d'un seul point ;
- Des fonctions extrêmement complexes peuvent être manipulées.

3.4.2 Description détaillée

3.4.2.1 Le codage des paramètres

Les algorithmes génétiques manipulent des individus sous forme codée. Deux types de codage sont possibles : le codage binaire et le codage réel. Les AG binaires sont très bien adaptés aux problèmes à paramètres discrets alors que les AG réels sont adaptés au traitement des problèmes à paramètres continus (Majdalani, 2007).

- Dans le cas d'un codage binaire, l'algorithme travaille avec des 0 et des 1. Un individu, également appelé chromosome, présente plusieurs gènes. Un gène est une représentation binaire d'un paramètre, c'est-à-dire si on cherche trois paramètres,

chaque individu comporte trois gènes. Chaque gène est représenté par une chaîne de bits qui ne comporte que des 0 et des 1.

Notons que l'évaluation d'un individu ne s'opère pas sur les chromosomes codés. Pour que l'algorithme génétique fonctionne, une étape de décodage des individus est nécessaire. Le codage binaire présente l'avantage d'être simple et permet la mise en place d'opérateurs génétiques facilement. Néanmoins, ce codage présente les inconvénients majeurs suivants :

- ✓ Les performances de l'algorithme sont diminuées lorsque la longueur de la chaîne augmente.
- ✓ Il y a un risque de ne pas tomber sur les vraies valeurs optimales.
- Dans le cas d'un codage réel : il s'agit d'enchaîner les paramètres pour l'individu θ donné. Le codage réel est plus précis que le codage binaire et l'espace de recherche est le même que l'espace du problème. Par conséquent, il ne nécessite pas d'étape de décodage pour l'évaluation des performances d'un individu. Néanmoins, il a besoin d'opérateurs appropriés.

3.4.2.2 La sélection

La sélection permet de localiser les meilleurs individus d'une population de taille N_{pop} et d'éliminer les mauvais individus. La sélection se produit pour chaque génération sur toute la population et permet de garder un nombre d'individus qui survivent pour le croisement. Elle fait ordonner les individus d'une population selon plusieurs principes, dont :

- La sélection naturelle : elle consiste à garder les individus "bons", ceux qui ont un faible coût, selon un taux de sélection fixé par l'utilisateur. Le nombre de chromosomes à garder pour le croisement et la mutation est défini par $N_{good} = T_{sélection} \times T_{pop}$. Puis, on sélectionne les couples qui jouent le rôle des parents pour la reproduction des enfants. Ces enfants vont remplacer les mauvais individus. Parmi, ces N_{good} chromosomes, vont être choisis à chaque fois, deux parents pour le croisement.

Un individu est décrété bon pour la survie pas seulement parce qu'il s'adapte bien à l'environnement mais aussi parce qu'il a une chance de survivre. En effet, bien souvent, un individu bien adapté peut descendre d'un individu jugé mauvais.

- La sélection par roulette de casino : elle consiste à associer à chaque individu i une fitness relative définie comme suit : $f_{rel}(i) = \frac{J_i}{\sum_{i=1}^n J_i}$ où J_i représente la fitness

(appelé précédemment fonction coût) de l'individu i . Pour chaque individu, on reproduit sur un disque de rayon unité un arc de cercle proportionnel à sa fitness relative. Ensuite, on tire un nombre aléatoire entre 0 et 1 qui va correspondre à une position du disque qui contient un individu. On note ensuite l'individu sélectionné et on refait le tirage n fois (n étant la taille de la population). On obtient alors n individus. Avec cette technique, les bons individus ont plus de chance pour être sélectionnés. Néanmoins, certains auteurs montrent que le domaine d'application de cette méthode se restreint à des populations de grande taille. En effet, dans le cas de faible nombre de tirages, on obtient une sélection biaisée.

- La sélection stochastique sans remplacement: on associe à chaque individu le rapport $r_i = n f_{rel}(i)$. On reproduit ensuite $\bar{r}_i$ fois chaque individu i . La sélection de ces individus se fait alors d'une façon déterministe. Toutefois, les individus qui ont une fitness inférieure à la moyenne seront éliminés complètement, ce qui n'est pas bon, car la combinaison des parties de ces individus avec d'autres peut produire des descendances meilleures. Pour éviter cela et pour compléter la génération, on associe donc à la sélection déterministe une sélection aléatoire basée sur une roulette de casino effectuée sur tous les individus affectés de nouvelles fitness $r_i - \bar{r}_i$. Ce principe de sélection permet de remédier au caractère biaisé de la sélection par roulette de casino.

Pour que l'algorithme génétique puisse mémoriser le ou les meilleurs individus au cours des générations, on ajoute un principe d'élitisme dans le processus de sélection. Ce principe consiste à garder pour la génération suivante, selon un nombre d'élitisme fixé par l'opérateur, le ou les meilleurs individus d'une population, sans ruiner leur structure par croisement ou mutation.

Le principe de sélection par la roulette de casino testé avec des opérateurs de croisement et de mutation adéquats est jugé comme meilleure méthode de sélection. Cependant, avoir une population de très grande taille peut influencer largement sur le temps de calcul qui peut devenir considérable. Les autres principes de sélection paraîtront alors plus efficaces.

3.4.2.3 Le croisement

Le croisement est le processus de combinaison des parents pour la génération des enfants. Il s'agit d'intervertir une ou plusieurs parties des parents. L'atout majeur de l'opérateur de croisement est qu'il permet quelques fois la création d'individus meilleurs en remplaçant les mauvais gènes d'un parent par de bons gènes d'un autre parent. On distingue plusieurs types de croisement suivant le type de codage.

- Le croisement simple : disposant de deux parents (chromosomes) constitués de L gènes, on choisit aléatoirement une position inter-gènes, appelée également point

de croisement, dans chacun des parents. Ensuite, on fait intervertir les deux parties des parents ce qui produira les enfants. Ce type de croisement est appelé également croisement en un point car on a découpé les chromosomes seulement en un seul point. Cependant, on trouve le croisement multipoint, où le découpage se fait en plusieurs points. Généralement, le croisement multipoint est prouvé comme plus performant dans la recherche de bons individus que le croisement simple.

Le croisement à découpage de chromosomes est très bien adapté pour les problèmes à variables discrètes. Bien que ce croisement reste valable pour les problèmes à variables continues sans codage binaire, Back et al. (2000) ont proposé la technique de croisement barycentrique suivant :

- Le croisement barycentrique : il s'agit de sélectionner deux gènes $\theta_1(i)$ et $\theta_2(i)$ dans chacun des parents à la même position i . Les enfants θ_1' et (θ_2') sont obtenus par les relations suivantes :

$$\text{Enfant 1:} \quad \theta_1'(i) = \alpha\theta_1(i) + (1-\alpha)\theta_2(i)$$

$$\text{Enfant 2:} \quad \theta_2'(i) = (1-\alpha)\theta_1(i) + \alpha\theta_2(i)$$

où α est un coefficient de pondération aléatoire adapté au domaine de définition des gènes. Ce coefficient représente le pourcentage de participation du premier parent dans la première solution créée. Selon l'intervalle de variation de α , le croisement permet de générer des descendants entre ou à l'extérieur des deux gènes.

Les deux types de croisement cités ci-dessus sont généralement les plus utilisés. Cependant, il existe d'autres types de croisement, qui sont parfois définis en amenant des modifications à ceux présentés ci-dessus. Ces modifications sont dépendantes du problème traité.

3.4.2.4 La mutation

La mutation a pour but la génération de nouveaux individus pour diversifier davantage la population. Il s'agit de changer aléatoirement la valeur d'un gène. L'atout majeur de l'opérateur de mutation est que l'algorithme génétique devient susceptible d'atteindre toutes les solutions de l'espace de recherche. Comme pour le croisement, on trouve la mutation binaire et la mutation réelle, selon le type de codage :

- La mutation binaire : utilisée généralement pour les problèmes à variables discrètes où le codage utilisé est un codage binaire. Elle consiste à choisir aléatoirement un nombre de bits (selon un taux de mutation fixé par l'opérateur) dans le chromosome et de les remplacer par 0 s'ils sont à 1 ou par 1 s'ils sont à 0.

- La mutation réelle : elle est généralement utilisée dans les problèmes continus. Elle consiste à choisir aléatoirement un gène dans le chromosome, auquel on ajoute un bruit aléatoire en veillant bien évidemment à ce que le gène résultant reste dans le domaine de définition des variables. Selon le type de bruit, on trouve plusieurs types de mutation réelle : La mutation Gaussienne : lorsque le bruit suit une loi normale avec une variance constante ou décroissante au cours des générations. Il existe plusieurs autres méthodes de mutation.

L'existence de nombreux types de sélection, de croisement et de mutation fait qu'il n'existe aucune théorie entièrement acceptée. En effet, les recherches n'ont cessé d'évoluer pour les algorithmes génétiques et les différentes méthodes d'amélioration.

3.5 Les chaines de Markov

3.5.1 *Echantillonnage de type Monte Carlo*

Pour déterminer la densité de probabilité conjointe à posteriori des paramètres (et par conséquent leur densité de probabilité marginale conditionnée sur les observations), il faut échantillonner selon (3.8) (ou selon le cas (3.10)). Pour cela, on fait appel à l'échantillonnage Monte Carlo. Le principe consiste à parcourir l'espace des valeurs des paramètres de manière aléatoire et de ne conserver que les jeux de valeurs les plus probables. Le principal inconvénient de cette méthode est que l'échantillonnage se fait de manière équiprobable dans l'espace de variation des paramètres. Aussi, une partie importante de l'effort de calcul est consacrée à l'évaluation des régions peu probables de l'espace des paramètres ce qui n'est pas très efficace. Une autre alternative, proposée par Metropolis et al. (1953) consiste à adapter la recherche dans l'espace des paramètres de façon que les régions qui contiennent les jeux de paramètres les plus probables aient plus de chance d'être échantillonnées. La méthode de Metropolis-Hastings utilise une chaîne de Markov pour parcourir l'espace des paramètres de telle sorte que l'échantillon final soit en accord avec la densité de probabilité cible. Dans ce type de simulations Monte Carlo, une séquence de valeurs dépendantes est générée suivant un processus itératif stochastique appelé une chaîne de Markov. Parmi les méthodes basées sur les chaînes de Markov, on trouve : l'algorithme de Gibbs et l'algorithme classique de Metropolis, introduit historiquement dans l'article de Metropolis (Metropolis et al., 1953) et modifié par (Hastings, 1970).

3.5.2 Algorithme de Gibbs

Le principe de cet algorithme repose sur une décomposition du problème générale (consistant à échantillonner suivant une certaine loi) en une série hiérarchique de problèmes élémentaires (générés suivant des lois conditionnelles). L'algorithme de Gibbs permet de générer θ selon la probabilité conditionnelle $p(\theta/d)$ indirectement en utilisant, d'une manière hiérarchique les densités de probabilités conditionnelles $p_i(\theta_i/\theta_{-i})$ supposées connues. L'algorithme de Gibbs est le suivant :

1. Initialiser $\theta^{(0)} = (\theta_1^{(0)}, \dots, \theta_n^{(0)})$, $i = 0$ et se donner $it_{\max}$
2. Itération, poser $i = i + 1$ et générer

$$\theta_1^{(i)} \sim p_1\left(\theta_1 \mid \theta_1^{(i-1)}, \theta_2^{(i-1)}, \dots, \theta_n^{(i-1)}\right)$$

$$\theta_2^{(i)} \sim p_2\left(\theta_2 \mid \theta_1^{(i)}, \theta_3^{(i-1)}, \dots, \theta_n^{(i-1)}\right)$$

...

$$\theta_n^{(i)} \sim p_n\left(\theta_n \mid \theta_1^{(i)}, \theta_2^{(i)}, \dots, \theta_{n-1}^{(i)}\right)$$

3. Tant que la convergence n'est pas atteinte ou que $i < it_{\max}$, retourner à 2

Après un nombre d'itérations suffisamment grand, le vecteur θ obtenu peut donc être considéré comme étant une réalisation de la loi à posteriori. L'avantage de la méthode de Gibbs est qu'elle est simple à implémenter. Elle représente le meilleur choix quand on dispose des densités de probabilités conditionnelles. Malheureusement une telle information est très rare.

3.5.3 Algorithme de Metropolis-Hastings

Initialement développé en 1953 pour le traitement de problèmes de physique par Metropolis, et al, (1953), cet algorithme a ensuite été beaucoup utilisé en physique statistique pour simuler des systèmes complexes. Actuellement, dans la littérature statistique, cet algorithme est présenté comme une méthode permettant de fabriquer une chaîne de Markov.

Dans sa formulation initiale, c'est un algorithme facile à expliquer et à mettre en œuvre. L'idée de base repose sur une méthodologie d'acceptation et de rejet d'un jeu de

paramètres (appelé candidat) : un nouveau jeu de paramètres est généré à partir d'une densité de probabilité de proposition q qui dépend du jeu de paramètres retenu dans l'itération précédente. Ce candidat sera accepté ou rejeté selon une certaine probabilité. L'algorithme de Metropolis-Hastings peut être écrit comme suit:

1. Initialisation, $\theta^{(0)} = (\theta_1^{(0)}, \dots, \theta_n^{(0)})$, $i = 0$ et se donner $it_{\max}$
2. Itération, poser $i = i + 1$ et générer

$$\theta^{(i)} \sim q(\theta | \theta^{(i-1)}) \quad (3.11)$$

3. Générer aléatoirement et uniformément un nombre $\alpha^* \in [0, 1]$
4. Calculer la statistique suivante

$$\alpha = \min \left(1, \frac{p(\theta^{(i)} | d) q(\theta^{(i-1)} | \theta^{(i)})}{p(\theta^{(i-1)} | d) q(\theta^{(i)} | \theta^{(i-1)})} \right) \quad (3.12)$$

5. Accepter le candidat $\theta^{(i)}$ avec la probabilité α si $\alpha \geq \alpha^*$. Sinon refuser et poser $\theta^{(i)} = \theta^{(i-1)}$
4. Tant que la convergence n'est pas atteinte ou que $i < it_{\max}$, retourner à 2

Si le nombre d'itérations est suffisamment important, la chaîne converge vers une densité de probabilité à posteriori stationnaire. L'algorithme Metropolis-Hastings nécessite le choix d'une densité de probabilité conditionnelle dite de transition ou de proposition. Cette densité de probabilité peut être choisie arbitrairement mais le choix d'une distribution qui ressemble le plus à la vraie distribution cible peut considérablement accélérer la convergence de l'algorithme. L'algorithme original de Metropolis qui a été introduit en 1953 est le cas particulier où la densité de probabilité de transition est symétrique $q(\theta^{(i)} | \theta^{(i-1)}) = q(\theta^{(i-1)} | \theta^{(i)})$.

3.5.4 MCMC adaptatif

Le bon fonctionnement de l'algorithme de MCMC est fortement conditionné par le choix (calage) des différents paramètres de l'algorithme. En particulier, le choix de la densité de probabilité de transition est crucial pour parvenir à un mélange efficace dans les chaînes de Markov. Mais ce choix n'est à première vue pas évident. Différents algorithmes MCMC adaptatifs ont été développés pour résoudre ce problème en déterminant automatiquement

les paramètres de MCMC au cours des itérations (Gilks et al., 1996 ; Haario et al., 2001; Andrieu et Robert, 2001; Andrieu et Moulines, 2005 ; Atchade et Rosenthal, 2005).

Haario et al. (2001) ont proposé un algorithme adaptatif où la densité de probabilité de proposition est une gaussienne dont la matrice de covariance est mise à jour au cours des itérations. Une chaîne de Markov est générée de telle sorte que $\theta^{(i)} \sim N(\theta^{(i-1)}, C)$ où :

$$\begin{cases} C = C_0, & i \leq i_0 \\ C = s_n \text{Cov}(\theta^{(0)}, \dots, \theta^{(i-1)}) + \varepsilon I_n, & i > i_0 \end{cases} \quad (3.13)$$

et i_0 l'itération à partir de laquelle l'adaptation commence. Lorsque $i \leq i_0$, une matrice de covariance initiale fixe C_0 est utilisée. s_n est un facteur d'échelle qui dépend de la dimension du problème. En pratique, Il a été démontré dans Gelman et al. (1996) que $s_n = \frac{2.4}{n}$ assure un taux d'acceptation raisonnable si la densité de probabilité à posteriori est une gaussienne. Le facteur de régularisation ε est utilisé pour empêcher la matrice de covariance de devenir singulière. Le processus d'adaptation de la matrice de covariance peut également s'effectuer après un certain nombre d'itérations sur des intervalles fixes ou aléatoires. Notons aussi que la densité de probabilité de proposition gaussienne q est symétrique ce qui simplifie l'équation (3.12).

D'autres améliorations de l'algorithme MCMC ont été proposées par d'autres auteurs. Afin d'augmenter le taux d'acceptation de l'étape 5 de l'algorithme de Metropolis-Hastings (adaptatif), Mira (2001) propose une étape supplémentaire appelée *delayed rejection* (DR). Le taux d'acceptation étant conditionné par le choix de la densité de transition, l'idée de DR est de se donner plusieurs densités de transition. Ensuite, lorsqu'un candidat est rejeté par la densité de transition principale, il est soumis à l'épreuve des autres densités avec un test approprié différent de (3.12). Si le candidat échoue aux différents tests alors il est rejeté. Notons que l'algorithme de Metropolis-Hastings adaptatif peut être employé pour mettre à jour les différentes densités de probabilité de transition (Haario et al., 2006 ; Laine, 2008). Une autre idée pour accélérer l'algorithme de MCMC est d'utiliser un émulateur à la place (ou en complément) du modèle original (Kennedy et O'Hagan 2001 ; Bayarri et al., 2007 ; Higdon et al., 2008 ; Ma et Zabaras, Cui et al., 2011).

3.5.5 *Diagnostics de convergence d'une chaîne de Markov*

Différentes méthodes ont été développées dans la littérature pour vérifier la convergence des MCMC vers une distribution à posteriori stationnaire. Les tests de convergence de Gelman et Rubin (1992) et de Raftery et Lewis (1992) sont les plus couramment utilisés

parmi les nombreux tests existants dans la littérature. Certains auteurs préconisent que la convergence peut être atteinte si la chaîne est suffisamment longue. Cependant, Gelman et Rubin, (1992) ont démontré qu'il est généralement impossible de contrôler la convergence en utilisant une seule séquence. La génération de plusieurs chaînes indépendantes en parallèle et démarrant de points initiaux différents permet de mieux explorer l'espace des paramètres et de vérifier la convergence.

3.6 Applications à l'inversion de modèle en milieux poreux

Ce travail a fait l'objet de deux articles. Le premier, "Reactive Transport Parameter Estimation and Global Sensitivity Analysis Using Sparse Polynomial Chaos Expansion", concerne l'utilisation de l'analyse de sensibilité globale et de l'estimation des paramètres pour deux problèmes de transport réactif en milieu poreux saturé. Le deuxième article, "Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters", concerne l'estimation des paramètres d'un sol à partir d'une expérience de drainage effectuée au laboratoire.

3.6.1 *Reactive Transport Parameter Estimation and Global Sensitivity Analysis Using Sparse Polynomial Chaos Expansion*

Dans cet article, nous nous intéressons principalement à l'expérience de Valocchi et al. 1981. Il s'agit d'une expérience de terrain impliquant le transport avec réaction d'ions. Dans cette expérience, un soluté ionique est injecté dans un puits et les concentrations de quatre composants aqueux sont mesurés : les ions Na^+ , Ca^{++} , Mg^{++} , and Cl^- . Le transport est réactif étant donné que le chlore peut réagir avec les trois autres composants. Pour mener à bien l'inversion du modèle de transport (rappelé dans le chapitre 1), une analyse de sensibilité globale est préalablement réalisée et un polynôme du chaos creux construit. Une stratégie d'optimisation est enfin employée pour déterminer le jeu de paramètres optimal.

Reactive Transport Parameter Estimation and Global Sensitivity Analysis Using Sparse Polynomial Chaos Expansion

N. Fajraoui · T. A. Mara · A. Younes · R. Bouhlila

Received: 15 November 2011 / Accepted: 17 April 2012 / Published online: 6 May 2012
© Springer Science+Business Media B.V. 2012

Abstract We present in this paper a new strategy based on the use of polynomial chaos expansion (PCE) for both global sensitivity analysis and parameter optimization. To limit the number of evaluations of the direct model, we develop a simple and efficient procedure to construct a sparse PCE where only coefficients that have a significant contribution to the variance of the model are retained. Parameter estimation is performed using an adaptive procedure where the intervals of variation of the parameters are progressively reduced using information from sensitivity analysis calculated using the sparse PCE. The strategy is shown to be effective for the parameter estimation of two reactive transport problems: a synthetic reactive transport problem involving the Freundlich sorption isotherm and a field experiment of Valocchi et al.

(Water Resources Research 17:1517–1527, 1981) involving nonlinear ion exchange reactions.

Keywords Reactive transport · Parameter estimation · Metamodel · Global sensitivity analysis · Sparse polynomial chaos expansion

1 Introduction

The modeling of reactive transport is an essential tool for studying groundwater contamination and predicting the evolution of pollutants in aquifers. Several numerical models have been developed to solve coupled nonlinear advective–dispersive–reactive transport equations (Van der Lee and De Windt 2001). Because of the high nonlinearity of these models, some parameters are not directly measurable and/or are subject to large uncertainties (Aggarwal and Carrayrou 2006). Hence, we resort to inverse modeling to estimate the optimal values of these parameters (Sun and al. 2001).

Parameter estimation can be performed in a Bayesian framework using a MCMC sampler in conjunction with maximum likelihood estimates as in Vrugt and Bouten (2002). This technique provides the parameters' joint posterior distribution, but is computationally demanding due to the large number of model evaluations required. Hence, parameter estimation is often based on a weighted least-squares approach in which simulated values are fitted to measurements using local gradient-based optimization algorithms. However, due

N. Fajraoui (✉) · A. Younes
Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg,
Université de Strasbourg/EOST, CNRS,
1 rue Blessig,
67084 Strasbourg, France
e-mail: fajraoui@unistra.fr

T. A. Mara
Université de La Réunion, PIMENT,
15 Avenue René Cassin, BP 7151,
97715 Moufia, La Réunion, France

R. Bouhlila
Laboratoire de Modélisation en Hydraulique et Environnement,
Ecole Nationale d'Ingénieurs de Tunis,
Tunis, Tunisia

to the presence of local minima in the objective function, the solution of local gradient methods can be sensitive to the initial solution (Brassard and Bodurtha 2000; Lambot et al. 2002). Besides, for nonlinear reactive transport, getting the accurate estimate of the derivatives is a difficult task. Hence, global optimization algorithms such as genetic algorithms (GA) can improve the robustness of the inverse solution for nonlinear problems (Majdalani et al. 2009). However, these methods present two drawbacks. First, they require a large number of evaluations of the direct model (Aggarwal and Carayrou 2006), especially for a large interval of variations of the parameters. Second, they often provide the final set of parameters without any information about the sensitivity of the parameters. Thus, we cannot distinguish influential parameters from irrelevant parameters (parameters that have no influence on the model responses). Local sensitivity analysis can be performed by computing partial derivatives of the output with respect to the inputs, providing the local impact of each parameter on the model output. However, this method does not work when the model is either nonlinear or several inputs are affected by different uncertainties.

On the other hand, rigorous global sensitivity analysis (GSA) has been shown to be capable of highlighting the main parameters controlling the variability of a model output and their regions and periods of influence (Fajraoui et al. 2011). GSA can be performed with polynomial chaos expansion (PCE) which can serve as a surrogate model that runs faster than the original model.

The aim of this paper is to develop a strategy based on the use of PCE for both GSA and parameter optimization. To limit the number of evaluations of the direct model, we develop a sparse PCE where only significant coefficients of the PCE are calculated. Optimization and sensitivity analyses are performed iteratively in three steps: (1) the sparse PCE is used as a surrogate model in the optimization algorithm to obtain optimal values of the parameters, (2) sensitivity indices are estimated from the sparse PCE and relevant parameters are detected, and (3) new intervals of variation of the parameters are defined around the estimated optimal values according to the sensitivity indices. These three steps are repeated until convergence is reached.

This strategy is then applied for the parameter estimation of two reactive transport problems: a synthetic

reactive transport problem involving the Freundlich sorption isotherm and the field experiment of Valocchi et al. (1981) involving nonlinear ion exchange reactions.

2 Sensitivity Analysis and Sparse PCE

2.1 Polynomial Chaos Expansions

Let us consider $f(\zeta)$ the random response of a mathematical model function of M independent random parameters $\zeta = \{\zeta_1, \zeta_2, \dots, \zeta_M\}$. Several techniques are proposed in the literature to build up an emulator, that is, a surrogate model. Among these techniques are the Gaussian process response surface (GASP) (Sacks et al. 1989; Jones 2001; Oakley and O'Hagan 2004), the Smolyak quadrature (Smolyak 1963) in conjunction with sparse grid collocation (Ma et al. 2009; Buzzard and Xiu 2011), and the polynomial chaos expansion which is employed in this work.

Polynomial chaos theory was originally developed by Wiener (1938) and has been extensively used in various engineering fields (Ghanem and Spanos 1991; Xiu and Karniadakis 2003; Le Maître et al. 2002; Li and Zhang 2007). This theory consists of expanding the multidimensional function $f(\zeta)$ onto orthonormal polynomials of a degree not exceeding p :

$$f(\zeta) = \sum_{j \in \mathbb{N}} s_j \Psi_j(\zeta), \quad (1)$$

where the s_j 's are the PC coefficients and Ψ_j are the multivariate orthonormal polynomials, such as Hermite, Legendre, or Jacobi polynomials. The choice of the polynomial family depends on the density distribution of the inputs. In this work, we use Legendre polynomials because parameters are assumed to be uniformly distributed. This assumption means that we have no prior knowledge about the models parameters. Note that Hermite polynomials can be used instead if the parameters are assumed to have a Gaussian distribution.

In practice, the function is truncated into a polynomial expansion not exceeding a degree p . The number of polynomial coefficients in the expansion is, therefore:

$$P + 1 = (M + p)! / (M! p!), \quad (2)$$

The polynomial coefficients can be calculated using the intrusive or the non-intrusive approach. The intrusive approach requires significant changes

in the numerical code and is therefore difficult to implement for highly nonlinear problems (Berveiller 2005). Alternatively, the non-intrusive approach allows computing the PC coefficients through several evaluations of the model, like in Monte Carlo simulations. Thus, the computational effort required to estimate the variance-based sensitivity indices is reduced to that of computing the PCE coefficients (Sudret 2008).

The aim of GSA is to evaluate the rate of change of the model output with respect to variation in the model parameters (Mara and Tarantola 2008). Such knowledge is important for assessing the applicability of the model, determining the most influential parameters, and ultimately understanding the behavior of the system in response to the model. The calculation of sensitivity indices is generally evaluated by Monte Carlo or Quasi-Monte Carlo (QMC) simulations. These methods are very expansive in terms of the number of runs, especially when dealing with complex problems (Sudret 2008). Here, we use variance-based sensitivity indices (Sobol' 1993, 2001; Homma and Saltelli 1996) for the GSA of nonlinear reactive transport models. Variance-based sensitivity indices are known to be good descriptors of the sensitivity of the model to its inputs because they do not rely on any assumption regarding the linearity or monotonous behavior of the model. These indices measure the contribution of an input (alone or by interactions with other inputs) to the output variance (Sobol' 2006).

Equation (1) is an ANOVA (analysis of variance) representation of the original model through which it is straightforward to express the variance of $f(\zeta)$ as the sum of the partial contribution of the inputs,

$$V[f(\zeta)] = \sum_j s_j^2, \quad (3)$$

where $V[\cdot]$ is the variance operator.

According to Sobol' (1993), we can also write,

$$\Leftrightarrow V[f(\zeta)] = \sum_{i=1}^n V_i + \sum_{j>i}^n V_{ij} + \sum_{k>j}^n V_{ijk} + \dots, \quad (4)$$

where the summands are the partial variances due to an input alone (e.g., V_i is the contribution of ζ_i) or to their interactions (e.g., V_{ij} is due to the interaction between ζ_i and ζ_j). These partial variances correspond to sensitivity indicators of the function to the inputs, which are completely defined by the PC coefficients.

In particular, the first-order sensitivity index (also referred to as the main effect of ζ_i) is defined by

$$S_i = \frac{V[E[f(\zeta)|\zeta_i]]}{V[f(\zeta)]}, \quad (5)$$

where $V[\cdot]$ is the variance operator and $E[\cdot]$ is the conditional expectation operator. The coefficient S_i measures the expected amount by which the variance of $f(\zeta)$ is reduced when the true value of ζ_i is known.

2.2 Sparse Polynomial Chaos Expansions

The key to reducing the total computational effort is to minimize the number of evaluations of the direct model. In our case, the latter is directly related to the number of coefficients to estimate in the PCE. With the classical “full PCE” approach, all the coefficients of the PCE, up to degree p , are computed (Sobol' 1993). The number of coefficients can be substantial because it increases drastically with the number of parameters and the order of the PCE (see Eq. (2)). To reduce the computational cost required to estimate the Sobol' indices, several approaches have been developed to construct a sparse PCE where only the significant coefficients are considered. For instance, Blatman and Sudret (2010a, b) developed an iterative forward–backward algorithm based on non-intrusive regression. The algorithm can be combined with a fixed or a sequential experimental design. In the forward step, a set of forward coefficients of order p that lead to an increase in the determination coefficient are retained. Then, in the backward step, all coefficients of a degree not greater than p are removed one by one. Those terms that lead to a significant decrease in the determination coefficient are retained. Recently, Hu and Youn (2011) proposed a sparse iterative scheme that uses the projection technique to compute the expansion coefficients and handle the nonlinear correlation of the input of random variables.

In this work, we develop a simple and efficient strategy to construct a sparse PCE using a fixed experimental design. For the sampling technique, we use the QMC method because it is space filling and has desirable convergence properties (Feil et al. 2009). For this purpose, the LPTau samples are generated as in Sobol' (1977).

In the following, we note f_{exp} , the vector of model responses for the input sample. The main idea of the

new strategy is to retain only those coefficients in the PCE that have a significant contribution to the variance of the model. To this aim, we proceed as follows:

- *Initialization*
 - Choose p the maximum order of the PCE (in this work, we choose $p=8$, which corresponds to a full PCE with 165 coefficients for three parameters).
 - Evaluate the model for the sample and store the evaluations into a vector $y=f_{\text{exp}}$.
 - Choose a threshold tol to select coefficients that have a significant contribution to the variance of the model output. In this work, we choose $tol=10^{-3}$.
- *Detect significant coefficients (in terms of contribution to the variance of the model): loop on the PCE coefficient for j from 1 to P ,*
 - Find s_0^j and s_j , the standardized regression coefficients that give the best-fit to $y^*: y^* = s_0^j + s_j \Psi_j^*$ where $y^* = (y - \bar{y})/\sigma_y$ and $\Psi_j^* = (\Psi_j - \bar{\Psi}_j)/\sigma_{\Psi_j}$ are the Ψ standardized variables, $\bar{y}$ and $\bar{\Psi}_j$ are the means of the variable, and $\sigma_y, \sigma_{\Psi_j}$ are the standard deviations.
 - Estimate the contribution of s_j to the variance of the model as follows: $ctr_j = s_j^2 V[y]/V[f_{\text{exp}}]$
 - If the contribution of s_j is significant ($ctr_j > tol$), then
 - Save the index j
 - Remove its contribution from y (for the following coefficients)
$$y = y - \left[\bar{y} + \sigma_y \left(s_0^j + s_j \Psi_j^* \right) \right]$$
- *Post processor: calculate the coefficient of the sparse PCE*

Finally, the coefficients s_j , whose indices have been saved, are recalculated by regression to ensure the best fit of the sparse PCE to f_{exp} .

3 Parameter Estimation

In this section, we develop an adaptive strategy for parameter estimation where the intervals of variation for the parameters are progressively reduced using information from sensitivity analysis. The sparse PCE model is employed instead of the direct model

for parameter estimation with GA. The strategy is based on the following steps:

Initialization:

- Step 1 Define the initial intervals of variation for the parameters to be estimated on the basis of plausible intervals of the parameters' variability. Generate a LPtau sample of size N for the M random variables.

Start iterations:

- Step 2 From the LPtau sample, create a sample of the parameters' values within their respective range of variation, and evaluate the model (i.e., compute f_{exp}).
- Step 3 Construct the sparse PCE as described in the previous subsection.
- Step 4 Find the optimal parameter values by inverting the surrogate model (i.e., the sparse PCE) instead of the direct nonlinear reactive transport model to save computational time (Fajraoui et al. 2011).
- Step 5 Test of convergence.
 If the difference between two successive optimal values is lower than a fixed tolerance, then
 Exit (the convergence is reached)
 End if
- Step 6 Calculate the variance-based sensitivity indices. Evaluate the maximum relative contribution of the parameter to the total variance of the model.
- Step 7 Define new intervals for the parameters centered at optimal values (obtained in Step 4) using sensitivity analysis. For each parameter, the reduction of its interval is proportional to its maximum relative contribution to the total variance. In this way, if the model is highly sensitive to a parameter, its updated interval is strongly reduced, whereas if the model is insensitive to a parameter during the whole simulation, its new interval remains practically unchanged.
- Step 8 Go to Step 2

End

Remarks:

1. All along the iterations, the size of the parameter intervals is progressively reduced, decreasing simultaneously the number of coefficients in the sparse PCE. After some iterations, the PCE is generally almost linear.
2. The size of the experimental design N is fixed for all iterations. Although the experimental design can seem crude at the first iteration, its accuracy quickly improves because the intervals of variation for the parameters are progressively reduced.
3. For problems with large number of parameters ($M > 10$), the method becomes cumbersome to implement. In this case, it is likely that some parameters have negligible effects on the model response (parsimony principle). Therefore, a screening method (for instance, Morris One-at-a-time method; see Campolongo et al. 2007) could be used to determine the most important ones to include in the metamodel.

Many optimization techniques can be used with the surrogate polynomial model in *Step 4*. We use GA in this study because they are known to be robust and can escape from local minima because they simultaneously evaluate several solutions (Haupt and Haupt 2004).

4 Case Studies

4.1 The Multicomponent Reactive Transport Model

The multicomponent reactive transport equations can be written as:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -U \frac{\partial C_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left(D_i \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + R_i(C_1, \dots, C_{Nc}, t)$$

$$i = 1, \dots, Nc \quad (6)$$

where C_i is the concentration of the mobile species, U is the water velocity, D_i is the dispersion coefficient, and R_i is the reaction term (which can be a nonlinear function of all the Nc species).

In this work, the nonlinear system (6) is solved with the sequential non-iterative approach (SNIA) for coupling transport and chemical processes. SNIA usually splits the nonlinear system of advection dispersion reaction equations (6) into a system of linear partial differential equations including only the advection and

dispersion terms to find a trial solution. Then, this trial solution is used as the initial condition for the solution of a second system formed by the nonlinear reaction equations. The SNIA is widely used for reactive transport problems for the following reasons: (1) it can easily be implemented, (2) it leads to a smaller system than global approaches (Miller and Rabideau 1993), and (3) transport and chemical equations can be solved using different numerical techniques that are specifically suited to achieve high accuracy for each system of equations (Miller and Rabideau 1993; Valocchi and Malmstead 1992; Carayrou et al. 2002). However, SNIA introduces an intrinsic numerical error due to operator splitting (OS) (Herzer and Kinzelbach 1989; Barry et al. 1996; Fahs et al. 2008). Therefore, small time steps are often required to reduce the OS error that affects the efficiency of the reactive transport model.

To avoid numerical diffusion for advection-dominated transport, we use a combination of discontinuous Galerkin (DG) and finite volume (FV) methods. The DG method is used to discretize the advection equation, and the FV method is used to discretize the dispersion equation. The DG method leads to robust and accurate numerical results for problems involving sharp fronts (Shuang-Zhang and Shahrouz 2005) while the FV method guarantees mass conservation at the element level. Due to the explicit scheme, the Courant criterion (CFL) must be fulfilled, which can lead to small time steps for highly advective transport problems. The nonlinear chemistry system is solved locally (at the element level) with the Newton–Raphson method.

4.2 Parameter Estimation for Reactive Transport with the Freundlich Adsorption Isotherm

4.2.1 The Reactive Transport Problem

The proposed strategy for parameter estimation is first applied to estimate chemistry and transport parameters for a synthetic test case of reactive transport under the nonlinear Freundlich equilibrium isotherm. This isotherm is relevant because it can be used as at least a first-cut approximation for the transport of a large number of neutral hydrophobic solutes through porous media, including soils, sediments, and aquifer materials (Farthing et al. 2006).

The test problem is a constant injection into a column of length $L=3m$, which is initially free of

contaminants. Transport is governed by the advection and dispersion of the solute in the aqueous phase coupled with sorption onto the solid phase following an instantaneous local equilibrium with a Freundlich isotherm:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial S}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right) = 0, \text{ with } S = K_f C^{n_f}$$

A Dirichlet condition is prescribed at the inflow boundary $C(x=0, t)=1.0\text{mg/L}$ and a null diffusive flux at the outflow boundary. The velocity is $U=1\text{m/h}$. The domain is discretized with a uniform grid with $\Delta=0.01\text{m}$, and the simulation time is $T=20\text{h}$.

The sorption capacity coefficient K_f , the exponent n_f , and the measurement of the sorption intensity and the dispersion coefficient D are the three unknown parameters to be estimated using measurements of the concentration at the outlet of the column with added Gaussian noise. The assumed initial ranges of variation of the parameters are: $K_f \in [1.0, 2.5]$, $n_f \in [0.4, 1.0]$, $D \in [0.1, 1.0]$.

4.2.2 Sensitivity Analysis

An experimental design of size $N=64$ is generated with the QMC method. Figure 1 depicts the temporal distribution of the outlet concentration variance and the relative contribution of the random input parameters. The shaded area under the variance curve includes both the marginal contribution of the input parameters and the contribution of their interactions.

The maximum variance is achieved at approximately 6 h to 7 h after the injection. The largest variance values are found near the solute advancing front.

Figure 1 shows that K_f and D are more influential than n_f . A weak first-order interaction can be observed between K_f and D . The results of this figure should be assessed together with the sensitivity of the outlet concentration to the parameters for different ranges inside the parameter spaces. Indeed, a parameter can be relevant only within a particular zone of its interval of variation. Figure 2 shows the marginal effect of the parameters on the concentration at several times. The three parameters are influential all along their range of variation. As expected, at the beginning and the end of the simulation, the three parameters have no effect on the output concentration. It is noted that an increase of

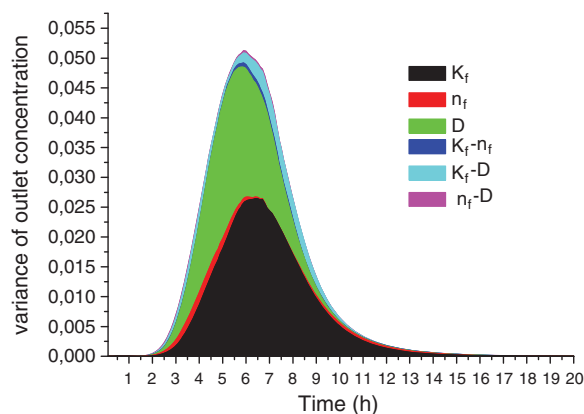


Fig. 1 Variance of outlet concentration and relative contribution of parameters

K_f causes a significant decrease in the concentration, and the inverse is the case for D . The parameter n_f is slightly influential before and after $t=7$ h and has a negligible effect at approximately $t=7$ h. Parameters K_f , n_f , and D play different roles in the concentration front. Parameter K_f is responsible for the retardation (the mean arrival time) of the front. The exponent n_f is a measure of the nonlinearity of the adsorption and, thus, determines the shape of the curve and is responsible for the self-sharpening of the front (Sibbesen 1982; Soon 1991). The dispersion coefficient D is responsible for smearing the concentration front.

4.2.3 Parameter Estimation

Table 1 gives the successive optimal values and the evolution of the parameter intervals during iterations. For the first iteration, the initial intervals of variation of the parameters are too large. Therefore, the constructed sparse PCE is not very accurate, and the results of the optimization are poor. At the second iteration, the interval of variation of K_f is reduced by 63 %, as it is the most relevant parameter; that of D is reduced by 50 %; and that of n_f is reduced by only 12 %, as it is the least influential parameter (Fig. 1). Within these intervals, D becomes the most influential parameter and n_f remains the least influential (see Fig. 3a). For the third iteration, n_f becomes influential (see Fig. 3b), and the intervals are reduced by 56 %, 35 %, and 29 %, respectively.

Convergence is reached at the fourth iteration because the optimal values obtained at the third and fourth iterations are extremely close (the maximum

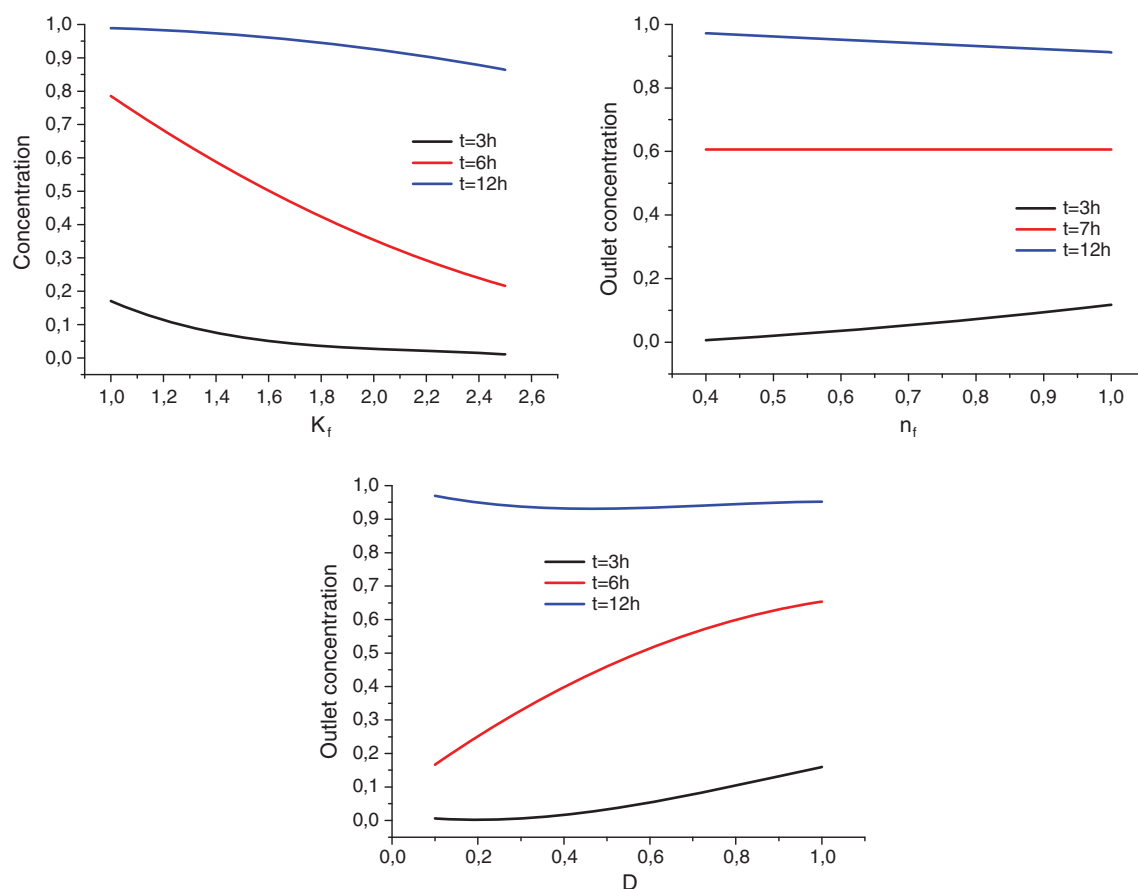


Fig. 2 The marginal effects of K_f , n_f , and D on the outlet concentration at three different times

difference is less than 10^{-3}). The calibrated values are $K_f^*=2.0$, $n_f^*=0.601$, and $D^*=0.299$, which are very close to the true parameters ($\overline{K_f}=2.0$, $\overline{n_f}=0.6$, and $\overline{D}=0.3$) used to generate the outlet concentration measurements. The total number of direct model evaluations for the whole optimization process is 256.

4.3 Parameter Estimation for the Ion Exchange Problem of Valocchi et al. (1981)

In this section, we apply the new strategy to estimate the chemical parameters for the nonlinear ion exchange problem of Valocchi et al. (1981).

4.3.1 The Ion Exchange Problem of Valocchi et al. (1981)

This problem has been used as a benchmark by Walter et al. (1994), Zysset (1993), and Fahs et al. (2008).

The problem is a field experiment involving nonlinear ion exchange reactions in Palo Alto Baylands, California, where a multi-ion solution was injected into a well, and four aqueous components (Na^+ , Ca^{++} , Mg^{++} , and Cl^-) were monitored at an observation well located 16 m from the injection well. The problem involves the nonreactive transport of chloride ion Cl^- and the heterovalent ion exchange of Na^+ , Ca^{++} , and Mg^{++} . The physical and chemical parameters are taken from Valocchi et al. (1981) and Walter et al. (1994). The groundwater velocity is $U=1.01$ m/h, and the dispersion coefficient is $D=0.74$ m²/h. The domain of length (16 m) is discretized with a uniform mesh of 400 elements. The simulated time $T=2000$ h is discretized with a uniform time step $\Delta t=0.2$ h. The two cationic exchange reactions are given in Table 2 (Walter et al. 1994; Behra et al. 1990).

The reactions are assumed to be at equilibrium. The chemical system is simplified using the definitions of components and species. Among species, components

Table 1 Intervals of variation and optimal values for the different iterations for the Freundlich sorption problem

iter1			
	K_f	n_f	D
Range	[1.00, 2.50]	[0.40, 1.00]	[0.10, 1.00]
Optimum	2.18	0.43	0.45
% of reduction	63	12	49.8
iter2			
	K_f	n_f	D
Range	[1.9, 2.46]	[0.4, 0.7]	[0.22, 0.67]
Optimum	2.04	0.7	0.33
% of reduction	30.9	13	72
iter3			
	K_f	n_f	D
Range	[1.85, 2.23]	[0.44, 0.7]	[0.27, 0.4]
Optimum	2.00	0.60	0.30
% of reduction	56	35	29
iter4			
	K_f	n_f	D
Range	[1.91, 2.09]	[0.52, 0.67]	[0.28, 0.34]
Optimum	2.00	0.60	0.30

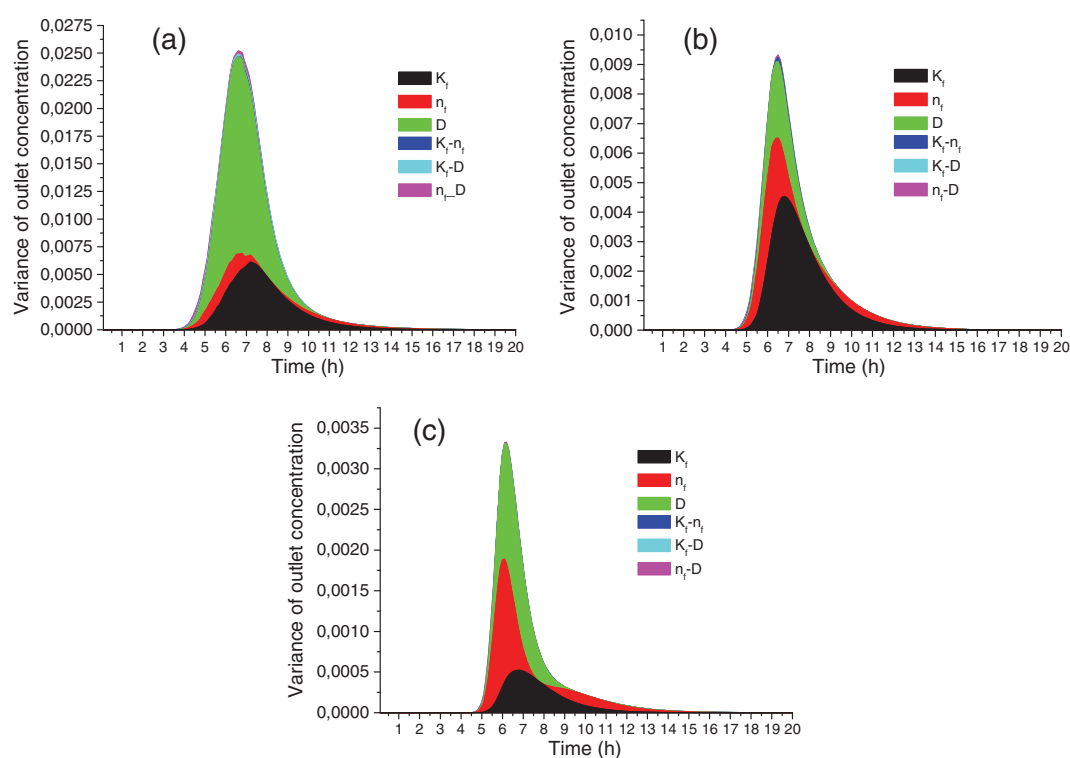
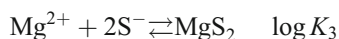
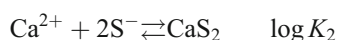
**Fig. 3** Variance of outlet concentration and relative contribution of parameters at the end of the second (a), third (b), and fourth (c) iterations

Table 2 Reactions and selectivity coefficients for the ion exchange problem of Valocchi et al. (1981)¹

Reaction	Selectivity coefficients
$\text{Mg}^{2+} + 2\text{NaS} \rightleftharpoons \text{MgS}_2 + 2\text{Na}^+$	$\log K_{11}$
$\text{Ca}^{2+} + 2\text{NaS} \rightleftharpoons \text{CaS}_2 + 2\text{Na}^+$	$\log K_{12}$

are chosen so that each chemical species can be written as a combination of these components. The chemical system contains seven species: Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , NaS , CaS_2 , MgS_2 and five components: Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , and S , where S is the surface site of charge -1 . Note that the total site concentration per unit mass of the solid equals the cation exchange capacity. Table 3 gives the chemical composition of the initial and injected water.

The unknown chemical parameters for this problem are the selectivity coefficients $\log K_{11}$ and $\log K_{12}$ and the total fixed (= total surface site) concentration T_f . The chemistry system is rewritten using three adsorption reactions with the corresponding constants of equilibrium as follows:



The selectivity coefficients can then be related to the constants of equilibrium by

$$\log K_{12} = \log K_2 - 2 \log K_1$$

$$\log K_{13} = \log K_3 - 2 \log K_1$$

To have the same number of degrees of freedom as the initial chemical system, we fix in the numerical

Table 3 Composition of the initial water in the aquifer and the injected water

Comp	Injected (mmol/l)	Initial (mmol/l)
Na^+	9.40	87
Ca^{2+}	2.12	11
Mg^{2+}	0.494	18
Cl^-	9.03	161

code the constant of equilibrium for the adsorption of Na^+ to $\log K_1 = 4$. Therefore, the initial optimization problem, where the unknown parameters are the selectivity coefficients $\log K_{11}$ and $\log K_{12}$, and the total fixed concentration T_f is transformed to an optimization problem of the following unknown parameters: $k_1 = \log K_2$, $k_2 = \log K_3$, and T_f . These parameters are the constants of equilibrium for the adsorption of Ca^{2+} , of Mg^{2+} , and the total fixed concentration T_f , respectively. Our aim is to find the optimal parameter set (k_1^*, k_2^*, T_f^*) that best fits the experimental data of Valocchi et al. (1981).

4.3.2 Sensitivity Analysis

Large ranges of variation are initially chosen for the parameters $k_1 \in [6, 10]$, $k_2 \in [6, 10]$, and $T_f \in [600, 850]$. As for the previous example, we use an experimental design of size $N=64$ generated with the QMC method. A sparse PCE of degree 8 using a threshold of 10^{-3} is chosen for the concentration of Ca^{2+} and another one is chosen for the concentration of Mg^{2+} at the outlet of the domain and at each time step by considering that the randomness of model output is associated with the three random input parameters.

Figure 4 shows the outlet concentration variance and the relative contribution of the random input parameters for Ca^{2+} and Mg^{2+} at different times. The contribution to the variance includes the partial marginal contribution of the random input parameters and the contribution of their interactions (Fig. 4). The largest variance values are found at the beginning of the simulation, which can be explained by the following factors: (1) the initial concentrations are much larger than the injected concentrations, and (2) all reactions are assumed to be at equilibrium, so there are no kinetic reactions.

The results of the first time step show that the concentration of Ca^{2+} at the outlet is mostly sensitive to k_1 , then to T_f and finally to k_2 . Moderate interactions occur between k_1 and T_f , and small interactions occur between k_1 and k_2 and between k_2 and T_f . The concentration of Mg^{2+} at the outlet is mostly sensitive to k_2 , then to T_f and finally to k_1 . Moderate interactions occur between k_1 and T_f , and small interactions occur between k_1 and k_2 and between k_2 and T_f .

Figure 4 shows that both concentrations of Ca^{2+} and Mg^{2+} are sensitive to the parameters k_1 , k_2 , and T_f . To investigate the influence of the parameters inside

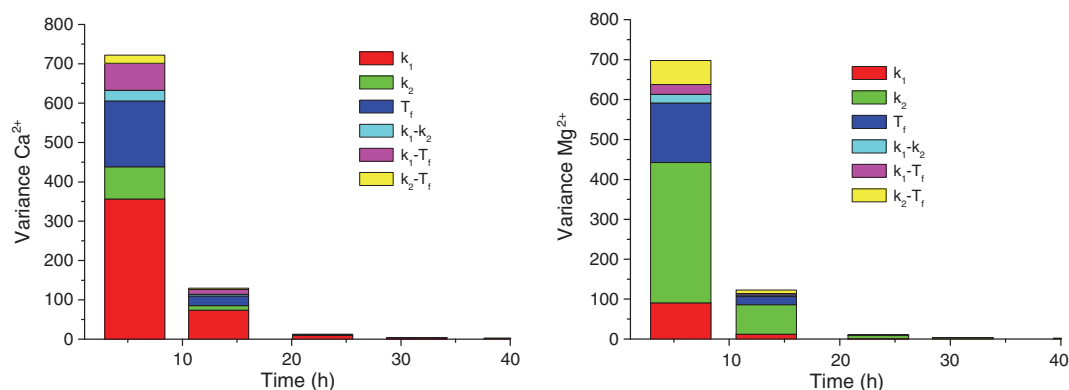


Fig. 4 Variance of Ca^{2+} and Mg^{2+} and relative contribution of parameters

their parameter spaces, we plot in Fig. 5 the marginal effects of these parameters on the concentrations of Ca^{2+} and Mg^{2+} at different times. This figure shows that the three parameters are mostly influential at the beginning ($t=5$ h) of the experiment. An increase of k_1 induces a decrease of the concentration of Ca^{2+} . Small changes of Ca^{2+} are observed when the value of k_1 varies between 9 and 10. The parameters k_2 and T_f are relevant throughout their range of variation. An increase of Ca^{2+} is observed when k_2 increases. The sensitivity of Ca^{2+} to T_f is linear, with a negative slope, which is consistent with the physics of the process.

The concentration of Mg^{2+} is sensitive to k_1 and T_f for all ranges of the parameter spaces. An increase of k_1 induces a decrease of Mg^{2+} . The sensitivity of Mg^{2+} to k_2 varies inside the parameter space, having a similar behavior to the sensitivity of Ca^{2+} to k_1 . The sensitivities of Mg^{2+} and Ca^{2+} to T_f are similar.

4.3.3 Parameter Estimation

The newly developed strategy is used to estimate the three parameters k_1 , k_2 , and T_f . Because both concentrations of Ca^{2+} and Mg^{2+} are measured at the outlet of the domain and both are sensitive to the three parameters to be estimated, we choose to perform the optimization procedure using only the Mg^{2+} data (there are more experimental data with Mg^{2+} than with Ca^{2+}). The measurements of Ca^{2+} will be used for cross-validation.

Table 4 gives the optimal values and the intervals of variation of the parameters for different iterations. For the second iteration, the interval of variation of k_2 is reduced by 62 % because it is the most influential parameter; that of T_f is reduced by 42 %; and that of k_1 is reduced by 20 %, being the least influential

parameter (Fig. 4b). For the following iterations, the three parameters have comparable reduction factors, varying between 30 % and 40 %, with very small interactions between parameters (see Fig. 6 for the fourth iteration results).

The convergence is reached after six iterations. To reach the convergence, the algorithm requires 288 evaluations of the direct model. The values of the calibrated parameters are $k_1^*=8.574$, $k_2^*=8.315$, and $T_f^*=748.35$.

The optimal parameter values are then used to compare simulated to measured concentrations. Results of simulations are plotted in Fig. 7 with 95 % confidence intervals calculated by assuming a first-order approximation of the model near its minimum. Although the data of Ca^{2+} were not used in the inverse problem, Fig. 7 shows good agreement between the measured and simulated concentrations of both Ca^{2+} and Mg^{2+} . Figure 7 shows first a decrease of Ca^{2+} and Mg^{2+} , as the injected low-concentration water displaces the high-concentration initial water. Then, because the selectivity sequence of the system is $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+$, the sodium is first exchanged for magnesium and calcium, and finally, the calcium starts displacing the magnesium from the solid surface. Finally, we note that the obtained optimal parameters are very close to the parameters used by Valocchi et al. (1981) and Walter et al. (1994).

5 Conclusion

Because of the high nonlinearity of reactive transport models, some parameters are not directly measurable or are subject to large uncertainties. We resort to inverse modeling to estimate the optimal values of

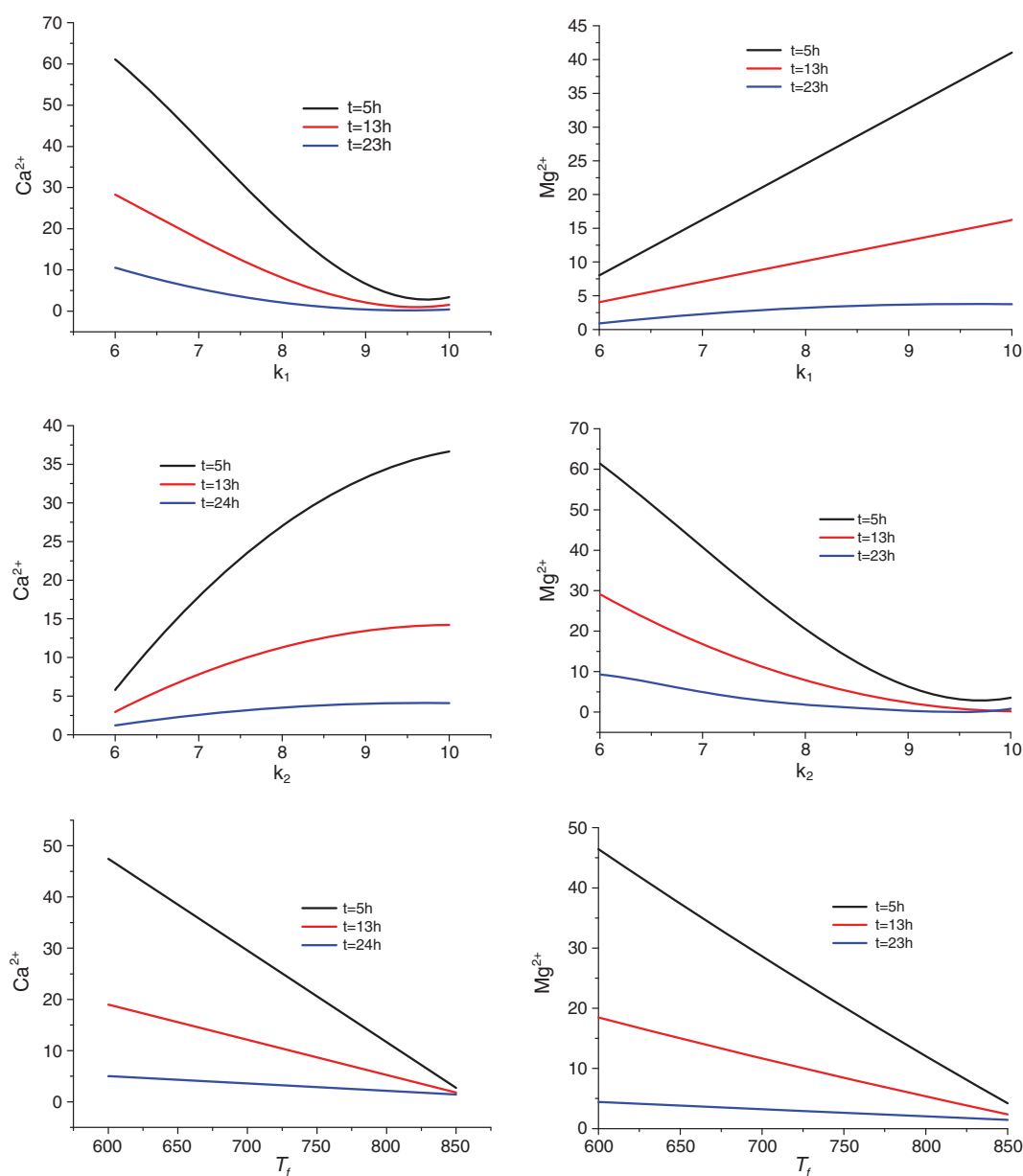


Fig. 5 The marginal effects of k_1 , k_2 , and T_f on the outlet concentration of Ca^{2+} and Mg^{2+} at three different times

these parameters. Local gradient optimization methods can be highly sensitive to the initial solution due to the presence of local minima, especially for highly non-linear models. Moreover, with these methods, we cannot distinguish influential parameters from irrelevant parameters (parameters that have no influence on the model responses).

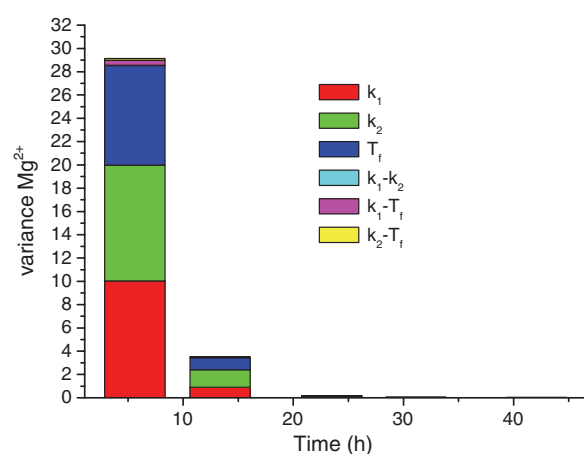
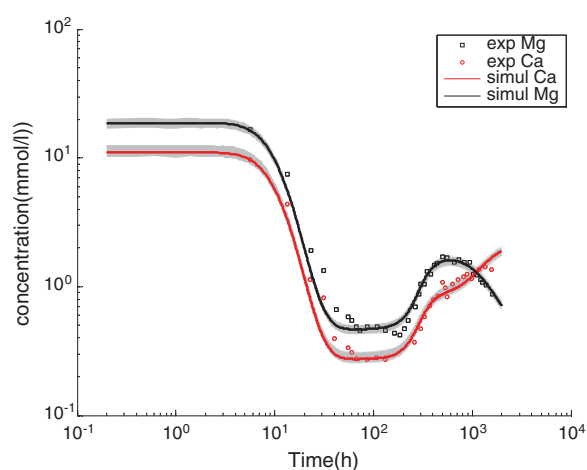
A new strategy is developed in this work based on the use of PCE for both GSA and parameter estimation. A simple and highly efficient technique was used

to construct a sparse PCE, where only coefficients that have a significant contribution to the variance of the model are retained.

Parameter estimation is based on an adaptive procedure, where the intervals of variation for the parameters are progressively reduced using information from sensitivity analysis calculated with the sparse PCE. The sparse PCE model also serves as a surrogate model instead of the direct model for parameter estimation with GA.

Table 4 Intervals of variation and optimal values for the different iterations for the Valocchi et al. (1981) problem

iter1			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[6,10]	[6,10]	[600,850]
% of reduction	8.69	8.42	746.32
	20	62	42
iter2			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[7.09,10]	[7.66,9.18]	[673.8,818.8]
% of reduction	8.62	8.32	747.56
	33	40	39
iter3			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[7.65,9.59]	[7.87,8.78]	[703,791.79]
% of reduction	8.59	8.32	747.2
	31	39	35
iter4			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[7.93,9.27]	[8.04,8.60]	[718.46,775.95]
% of reduction	8.586	8.318	748.24
	36	35	31
iter5			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[8.16,9.01]	[8.14,8.50]	[728.41,768.08]
% of reduction	8.57	8.314	748.35
	34	34	33
iter6			
xmin	k_1	k_2	T_f
Optimum	[8.29,8.86]	[8.19,8.43]	[735.06,761.64]
	8.574	8.315	748.35

**Fig. 6** Variance of Mg^{2+} outlet concentration and relative contribution of parameters at the end of the fourth iteration**Fig. 7** Comparison between measured and simulated Ca^{2+} and Mg^{2+} outlet concentrations

The proposed strategy was shown to be effective for two reactive transport problems: a synthetic reactive transport problem involving the Freundlich sorption isotherm and the field experiment of Valocchi et al. (1981) involving nonlinear ion exchange reactions.

Acknowledgment This work was partially supported by the GnR MoMaS (PACEN/CNRS ANDRA BRGM CEA EDF IRSN) France, whose support is gratefully acknowledged.

Appendix

Genetic Algorithm

Genetic algorithms are optimization algorithms that are based on principles of natural evolution and genetics: selection, mutation, and selection. These methods do not require special knowledge on the problem to be solved. They are known for their robustness and ability to escape local minima as they evaluate simultaneously multiple solutions. According to the type of the parameter, we distinguish binary genetic algorithm and real genetic algorithm. In the following, we recall the main stages of real genetic algorithm used in the paper.

General Principle of Operation

The general operating principle of a genetic algorithm is as follows:

1. Generate random population of n individuals;
2. Evaluate the fitness of each individual of the population;
3. Create a new population using genetic operators;
 - Selecting of two individuals (parents) according to their fitness;
 - Crossover the parents to form new offspring;
 - Mutate the new offspring;
4. Repeat from step 2 until the convergence of the algorithm or the maximum number of iterations is reached.

Genetic Operators

Selection: it is the process of selecting the individuals that are going to survive for the crossover. There are several types of selection.

- roulette wheel selection: the probability of selecting an individual is proportional to its fitness:

$$f_{\text{rel}}(i) = \frac{f_i}{\sum_i f_i}$$

where f_i is the fitness of the individual. We associate to each individual a segment of length $f_{\text{rel}}(i)$. Individuals are then mapped one-to-one into contiguous intervals in the range $[0, 1]$. To select an individual, a random number is generated and the individual whose segment spans the random number is selected.

Crossover: Crossover is a process of taking more than one parent solutions and producing a child solution from them. We distinguish several types of crossover. In our case, we use multipoint crossover and barycentric crossover.

- Multipoint crossover: In the case of two-point crossover, we choose two parents $X_1 = (x_1^1, x_1^2, \dots, x_1^n)$ and $X_2 = (x_2^1, x_2^2, \dots, x_2^n)$

Then, we generate randomly two numbers q_1 and q_2 from $[1, n]$. Everything between q_1 and q_2 is swapped between the parent organisms, rendering two child organisms:

$$Y_1 = (x_1^1, x_1^2, \dots, x_1^{q_1}, x_2^{q_1+1}, \dots, x_2^{q_2}, x_1^{q_2+1}, \dots, x_1^n),$$

$$Y_2 = (x_2^1, x_2^2, \dots, x_2^{q_1}, x_1^{q_1+1}, \dots, x_1^{q_2}, x_2^{q_2+1}, \dots, x_2^n)$$

- Barycentric crossover: The two child organisms are obtained by the following relations:

For each gene i :

$$\text{child1} : Y_1^i = \alpha x_1^i + (1 - \alpha)x_2^i$$

$$\text{child2} : Y_2^i = (1 - \alpha)x_1^i + \alpha x_2^i$$

where α is randomly chosen from $[0, 1]$.

Mutation: it aims at generating new individuals to diversify the population and therefore allows to avoid local minima. We choose randomly a gene in the chromosome, to which we add a random noise.

If it falls outside of the user-specified lower or upper bounds for that gene, the new gene value is clipped. According to the type of noise, we find several types mutation:

- The Gaussian mutation: when the noise follows a normal law (the variance can be constant or decreasing during generations).
- The non-uniform mutation:

$$Y^i = \begin{cases} x^i + \Delta(t, x_{\max_i} - x^i) & \text{if } s \leq 0.5 \\ x^i - \Delta(t, x^i - x_{\min_i}) & \text{if } s > 0.5 \end{cases}$$

where t is the current generation number, s is a random number from $[0, 1]$, and $\Delta(t, x)$ defined by $\Delta(t, x) = x \cdot r \cdot (1 - \frac{t}{T})^b$ with r a random number between $[0, 1]$, T the maximum number of generations, and b a refining parameter. Thus, at the beginning, the amplitude of mutation is large while it becomes small at the end of the algorithm. The parameter b allows adjusting the amplitude of the mutation.

References

- Aggarwal, M., & Cararrayrou, J. (2006). Parameter estimation for reactive transport by a Monte Carlo approach. *AICHE Journal*, 52, 2281–2289.
- Barry, D. A., Bajracharaya, K., & Miller, C. T. (1996). Alternative split operator approach for solving chemical reaction/groundwater transports model. *Advances in Water Resources*, 19, 313–330.
- Behra, P., Zysset, A., Sigg, L., & Stauffer, F. (1990). Modelling of pollutant transport in groundwater: chemistry as a key factor. *EAWAG-News*, 28/29.
- Berveiller, M. (2005). Éléments finis stochastiques: approches intrusive et non intrusive pour des analyses de fiabilité. Thèse de Doctorat de l'Université BLAISE PASCAL-Clermont II.
- Blatman, G., & Sudret, B. (2010a). Efficient computation of global sensitivity indices using sparse polynomial chaos expansion. *Reliability Engineering and System Safety*, 95(11), 1216–1229.
- Blatman, G., & Sudret, B. (2010b). An adaptive algorithm to build up a sparse polynomial chaos expansions for stochastic finite element analysis. *Probabilistic Engineering Mechanics*, 25(2), 183–197.
- Brassard, P., & Bodurtha, P. (2000). A feasible set for chemical speciation problems. *Computers and Geosciences*, 26(3), 277–291.
- Buzzard, G. T., & Xiu, D. (2011). Variance-based global sensitivity analysis via sparse grid interpolation and cubature. *Communications in Computational Physics*, 9(3), 542–567.
- Campolongo, F., Cariboni, J., & Saltelli, A. (2007). An effective screening design for sensitivity analysis of large models. *Environmental Modelling and Software*, 22, 1509–1518.
- Cararrayrou, J., Mosé, R., & Behra, P. (2002). New efficient algorithm for solving thermodynamic chemistry. *AICHE Journal*, 48(4), 894–904.
- Fahs, M., Cararrayrou, J., Younes, A., & Ackerer, P. (2008). On the efficiency of the direct substitution approach for reactive transport problems in porous media. *Water, Air, and Soil Pollution*, 193, 299–308.
- Fajraoui, N., Ramasomanana, F., Younes, A., Mara, T. A., Ackerer, P., & Guadagnini, A. (2011). Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of non-reactive transport experiments in laboratory-scale porous media. *Water Resources Research*. doi:10.1029/2010WR009639.
- Farthing, M. W., Kess, C. E., Russell, T. F., & Miller, C. T. (2006). An ELLAM approximation for advective-dispersive transport with nonlinear sorption. *Advances in Water Resources*, 29, 657–675.
- Feil, B., Kucherenko, S., & Shah, N. (2009). Comparison of Monte Carlo and Quasi Monte Carlo sampling in high dimensional model representation. Proceedings of the 2009 First International Conference on Advances in System Simulation, 10.11.09.
- Ghanem, R. G., & Spanos, P. D. (1991). *Stochastic finite elements, a spectral approach*. Berlin: Springer.
- Haupt, R. L., & Haupt, S. E. (2004). *Practical genetic algorithms* (2nd ed.). New York: Wiley.
- Herzer, J., & Kinzelbach, W. (1989). Coupling of transport and chemical processes in numerical transport models. *Geoderma*, 44, 115–127.
- Homma, T., & Saltelli, A. (1996). Importance measures in global sensitivity analysis of nonlinear models. *Reliability Engineering and System Safety*, 52(1), 1–17.
- Hu, C., & Youn, B. D. (2011). Adaptive-sparse polynomial chaos expansion for reliability analysis and design of complex engineering systems. *Structural and Multidisciplinary Optimization*, 43, 419–442.
- Jones, D. R. (2001). A taxonomy of global optimization methods based on response surfaces. *Journal of Global Optimization*, 21, 345–383.
- Lambot, S., Javaux, M., Hupet, F., & Vanclooster, M. (2002). A global multilevel coordinate search procedure for estimating the unsaturated soil hydraulic properties. *Water Resources Research*, 38(11), 1224.
- Le Maître, O. P., Reagan, M. T., Najm, H. N., Ghanem, R. G., & Knio, O. M. (2002). A stochastic projection method for fluid flow: II. Random process. *Journal of Computational Physics*, 181(1), 9–44.
- Li, H., & Zhang, D. (2007). Probabilistic collocation method for flow in porous media: comparisons with other stochastic method. *Water Resources Research*, 43, 44–48.
- Ma, X., & Zabararas, N. (2009). An adaptive hierarchical sparse grid collocation method for the solution of stochastic differential equations. *Journal of Computational Physics*, 228, 3084–3113.
- Majdalani, S., Fahs, M., Cararrayrou, J., & Ackerer, P. (2009). Reactive transport parameter estimation: genetic algorithm vs. Monte Carlo approach. *AICHE Journal*, 55(8), 1959–1968.
- Mara, T. A., & Tarantola, S. (2008). Application of global sensitivity analysis of model output to building thermal simulations. *Journal of Building Simulation*, 1, 290–302.
- Miller, C. T., & Rabideau, A. J. (1993). Development of split-operator, Petrov Galekin methods to simulate transport and diffusion problems. *Water Resources Research*, 29, 2227–2240.

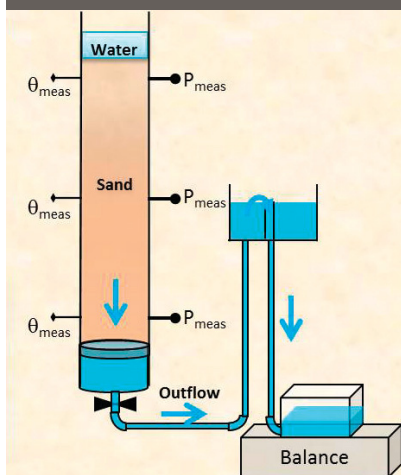
- Oakley, J. E., & O'Hagan, A. (2004). Probabilistic sensitivity analysis of complex models: a Bayesian approach. *Journal of the Royal Statistical Society: Series B*, 66(3), 751–769.
- Sacks, J., Welch, W. J., Mitchell, T. J., & Wynn, H. P. (1989). Design and analysis of computer experiments. *Statistical Science*, 4, 409–435.
- Shuang-Zhang, T., & Shahrouz, A. (2005). A slope limiting procedure in discontinuous Galerkin finite element method for gas dynamics applications. *International Journal of Numerical Analysis and Modeling*, 2, 163–178.
- Sibbesen, E. (1982). Some new equations to describe phosphate sorption by soils. *Journal of Soil and Science*, 32, 67–74.
- Smolyak, S. A. (1963). Quadrature and interpolation formulas for tensor products of certain classes of functions. *Soviet Mathematics -Doklady*, 4, 240–243.
- Sobol', I. M. (1977). Uniformly distributed sequences with an additional uniform property. *USSR Computational Mathematics and Mathematical Physics*, 16, 236–242.
- Sobol', I. M. (1993). Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Mathematical Modeling and Computation*, 1(4), 407–414.
- Sobol', I. M. (2001). Global sensitivity indices for nonlinear mathematical models and their Monte Carlo estimates. *Mathematics and Computers in Simulation*, 55, 271–280.
- Soon, Y. K. (1991). Solubility and retention of phosphate in soils of the northwestern Canadian prairie. *Canadian Journal of Soil Science*, 71, 453–463.
- Sudret, B. (2008). Global sensitivity analysis using polynomial chaos expansions. *Reliability Engineering and System Safety*, 93(7), 964–979.
- Sun, N., Sun, N. Z., Elimelech, M., & Ryan, J. N. (2001). Sensitivity analysis and parameter identifiability for colloid transport in geochemically heterogeneous porous media. *Water Resources Research*, 37(2), 209–222.
- Valocchi, A. J., & Malmstead, M. (1992). Accuracy of operator splitting for advection–dispersion reaction problems. *Water Resources Research*, 28(5), 1471–1476.
- Valocchi, A. J., Street, R. L., & Roberts, P. V. (1981). Transport of ion exchanging solutes in ground water: chromatographic theory field simulation. *Water Resources Research*, 17(5), 1517–1527.
- Van der Lee, J., & De Windt, L. (2001). Present state and future directions of modelling of geochemistry in hydrogeological systems. *Journal of Contaminant Hydrology*, 47, 265–282.
- Vrugt, J. A., & Bouten, W. (2002). Validity of first-order approximations to describe parameter uncertainty in soil hydrologic models. *Soil Science Society of America Journal*, 66, 1740–1751. doi:10.2136/sssaj2002.1740.
- Walter, A. L., Frind, E. O., Blows, D. W., Ptacek, C. J., & Molson, J. W. (1994). Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater: 1. Model development and evaluation. *Water Resources Research*, 30(11), 3137–3148.
- Wiener, N. (1938). The homogeneous chaos. *American Journal of Mathematics*, 60, 897–936.
- Xiu, D., & Karniadakis, G. E. (2003). A new stochastic approach to transient heat conduction modeling with uncertainty. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46(24), 4681–4693.
- Zysset, A., Stauffer, F., & Dracos, T. (1994). Modeling of chemically reactive groundwater transport. *Water Resources Research*, 30(7), 2217–2228.

3.6.2 Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters

Dans cet article nous nous intéressons à une expérience réalisée en laboratoire (Beydoun et Lehmann, 2006). Il s'agit d'une expérience de drainage dans une colonne d'eau. Le milieu poreux (du sable) est d'abord saturé d'eau puis drainé par application d'une différence de pression de part et d'autre de la colonne. Au cours de l'expérience, différentes mesures sont effectuées à différents pas de temps : la charge hydraulique à différentes hauteurs ainsi que la teneur en eau et le flux cumulé. L'objectif de l'étude était l'inversion de ce modèle (basée sur l'équation de Richards) à partir des observations ; c'est à-dire la détermination des paramètres hydrauliques du sable employé. Nous avons également étudié l'identifiabilité des paramètres par étude de leur sensibilité aux différentes mesures. Cela nous a permis de réduire le nombre de paramètres, d'identifier les observations indispensables pour l'inversion et de construire un émulateur (PCE). Cette étude préalable a permis d'accélérer considérablement l'inversion du modèle par l'algorithme MCMC employé.

Original Research

A. Younes
T. A. Mara
N. Fajraoui
F. Lehmann*
B. Belfort
H. Beydoun



Data from drainage experiments were used to derive soil hydraulic parameters in a Bayesian framework using a Markov chain Monte Carlo sampling method. Prior to parameter identification with observed data the use of global sensitivity analysis facilitates identification of the necessary set of measurements for successful parameters estimation.

A. Younes, N. Fajraoui, F. Lehmann, B. Belfort, and H. Beydoun, Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg, Univ. de Strasbourg/EOST, CNRS, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg, France; and T.A. Mara, Univ. de La Réunion, PIMENT, 15 Avenue René Cassin, BP 7151, 97715 Moufia, Réunion. *Corresponding author (lehmann@unistra.fr).

Vadose Zone J.
doi:10.2136/vzj2011.0150
Received 2 Nov. 2011.

© Soil Science Society of America
5585 Guilford Rd., Madison, WI 53711 USA.
All rights reserved. No part of this periodical may be reproduced or transmitted in any form or by any means, electronic or mechanical, including photocopying, recording, or any information storage and retrieval system, without permission in writing from the publisher.

Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters

In this work, global sensitivity analysis (GSA) was used in conjunction with polynomial chaos expansion (PCE) to help assess unsaturated soil hydraulic parameters from experimental drainage data. The temporal sensitivity of different outputs (cumulative outflow, water content, and pressure head at different positions inside the column) to the Mualem–van Genuchten parameters was analyzed. In addition, the marginal effects of the parameters on the different outputs were analyzed across their entire uncertainty range. The results of the GSA revealed the necessary data set for a successful calibration of the hydraulic parameters. Parameter estimation was then performed in a Bayesian framework using a Markov chain Monte Carlo sampler with the PCEs instead of the discretized Richards' equation model. The obtained parameters were validated by comparing the whole set of measurements to the results of the calibrated numerical model.

Abbreviations: GSA, global sensitivity analysis; MCMC, Markov chain Monte Carlo; PCE, polynomial chaos expansion; RE, Richards' equation.

Several studies have demonstrated the ability of inverse optimization techniques to provide information about unsaturated soil hydraulic parameters from dynamic flow experiments (e.g., Hopmans et al., 2002; Vrugt et al., 2003; Durner and Iden, 2011). Parameter estimation is often based on a weighted least-squares approach in which simulated values are fitted to measurements (Carrera and Neuman, 1986). Gradient-based local optimization algorithms such as the Levenberg–Marquardt method (Kool et al., 1987; Lehmann and Ackerer, 1997) are sometimes preferred due to their fast computation. Nevertheless, the objective function can exhibit many local minima and, therefore, the solution strongly depends on the initial points (Russo et al., 1991; Durner et al., 1999; Jacques et al., 1999; Si and Kachanoski, 2000; Lambot et al., 2002). The goodness of the solution can be investigated by visualizing response surfaces of the objective function. As stated by Šimůnek and van Genuchten (1996), however, local minima are hardly identifiable because they may not appear in the cross-section planes. Global optimization algorithms such as shuffled complex evolution algorithm (Duan et al., 1992), annealing–simplex method (Pan and Wu, 1998) or genetic algorithms (Takeshita, 1999) can improve the robustness of the inverse solution. Nevertheless, these techniques provide the best parameter set without information on the reliability. Note that the reliability of the estimated parameters depends on the model and on the observations. A parameter that has a negligible effect onto the model responses is expected to be poorly identifiable.

Previous works have shown that sensitivity analysis can help to optimize the use of measurements for model calibration. For instance, Vrugt et al. (2001, 2002) performed a sensitivity analysis for multistep outflow experiments with numerically generated data. They used the variation in time of the model sensitivity to split the measurements into subsets that were most informative for one of the model parameters. Combined with an iterative Monte Carlo simulation procedure, this technique allowed them to estimate all soil hydraulic parameters. Fajraoui et al. (2011, 2012) used GSA in conjunction with PCE to distinguish sensitive parameters from irrelevant ones (i.e., parameters that have a negligible effect on the model responses). Contrary to the aforementioned approach, GSA is performed before the calibration step and does not require knowledge of the observed data set.

In this work, we were concerned with soil hydraulic parameter estimation from a laboratory drainage experiment. Global sensitivity analysis was undertaken before the inversion to identify the necessary set of measurements for a successful calibration. Furthermore,

the marginal effects of the parameters on the different outputs were analyzed to investigate the range of variation across which a parameter may be identifiable from the observations of the output.

First, we computed variance-based sensitivity indices (Sobol', 1993; Homma and Saltelli, 1996; Sobol', 2001) for the GSA of a model of the drainage experiment based on Richards' equation (RE). Indeed, variance-based sensitivity indices are known to be good descriptors of the sensitivity of the model to its inputs because they do not require any assumption regarding the linearity or the monotonicity of the model. These indices measure the contribution of an input (alone or by interactions with other inputs) to the output variance (Sobol', 2001). The sensitivity indices were estimated using PCE, which also served as a surrogate model, running faster than the original model (Fajraoui et al., 2011).

Second, parameter estimation was performed in a Bayesian framework using a Markov chain Monte Carlo (MCMC) sampling method (Vrugt and Bouten, 2002; Vrugt et al., 2008). Indeed, unlike classical parameter optimization algorithms, the MCMC approach provides the probability distribution, which can be used to summarize the parameter uncertainty and quantify its effects on model predictions (Ades and Lu, 2003). For this purpose, the MCMC method is particularly efficient, although it is computationally expensive. To save the computational cost of the MCMC approach, simulations were performed with the surrogate PCE model instead of the discretized RE model.

Experimental and Mathematical Models

The Experimental Setup

A vertical Plexiglas column, with a diameter of 10 cm and a height of $L = 1$ m, was placed over a 7-mm-thick porous ceramic plate and filled with a monodisperse quartz sand with a grain diameter between 0.2 and 0.8 mm and uniform index $d_{60}/d_{10} = 1.6$. This kind of textured soil can lead to more nonuniqueness problems in an optimization framework than fine-textured soils (Inoue et al., 1998; Hwang and Powers, 2003).

With the origin of the vertical axis at the sand surface, three pressure sensors and three capacitance probes measured the pressure head and the volumetric water content near the top ($Z_1 = 10$ cm), middle ($Z_2 = 50$ cm) and bottom of the column ($Z_3 = 90$ cm). The accuracies of the pressure head and water content measurements were approximately ± 2 cm and $\pm 0.02 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$, respectively. A digital balance with an accuracy of ± 1 g was used to measure the cumulative outflow.

Initially, the column was saturated with a positive pressure head at the top of the column. Four pressure steps corresponding to -40 , -70 , -100 , and -130 cm at time $t_0 = 0$, $t_1 = 74.5$ h, $t_2 = 162.1$ h, and $t_3 = 259.2$ h, respectively, were successively applied at the

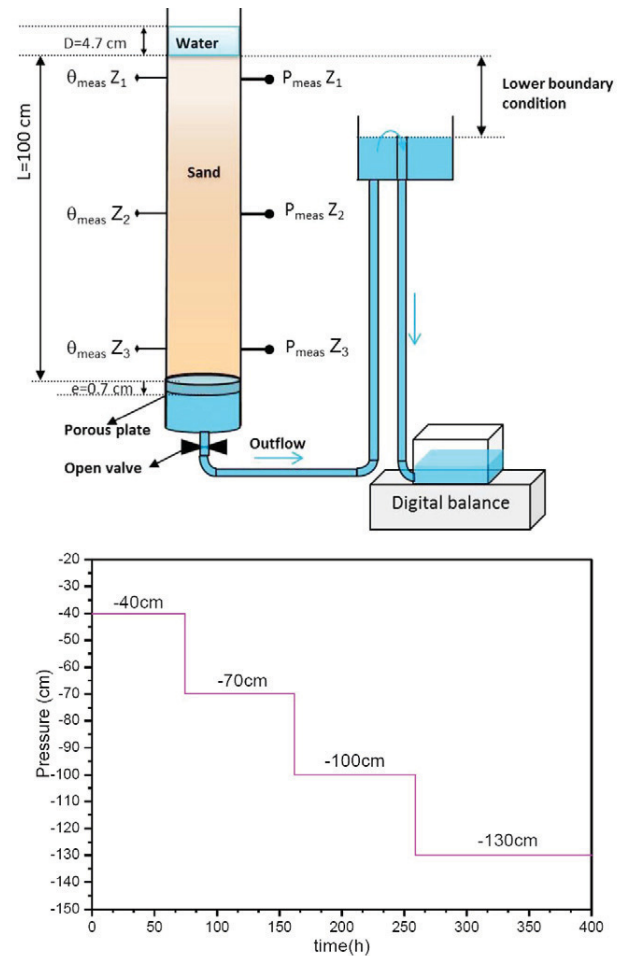


Fig. 1. Scheme of the experimental device, where P_{meas} is the measured pressure head and θ_{meas} is the measured volumetric water content near the top ($Z_1 = 10$ cm), middle ($Z_2 = 50$ cm), and bottom of the column ($Z_3 = 90$ cm). A digital balance is used to measure the cumulative outflow. The water reservoir is used to apply the pressure condition at the bottom of the column; the temporal evolution of the pressure at the lower boundary condition of the column during the drainage experiment is depicted on the bottom of the figure.

bottom of the 1-m soil column. Initial conditions correspond to a ponding of 4.7 cm. Therefore, the column remained saturated during the first 22 h (see Fig. 1). Additional details regarding the setup of the experiment and the measuring techniques were provided by Beydoun and Lehmann (2006).

Figure 2 shows the measured pressure heads and water contents at the top, middle, and bottom of the column as well as the cumulative outflow. The pressure heads decreased from an initial value corresponding to the hydrostatic pressure. For instance, the first pressure sensor located at $Z_1 = 10$ cm started with a pressure head of 14.7 cm. During the falling-head phase ($t < 22$ h, which corresponds to saturated flow), pressure heads and cumulative outflow had an exponential behavior. This exponential evolution was driven by the equivalent (sand + porous plate) conductivity. Note

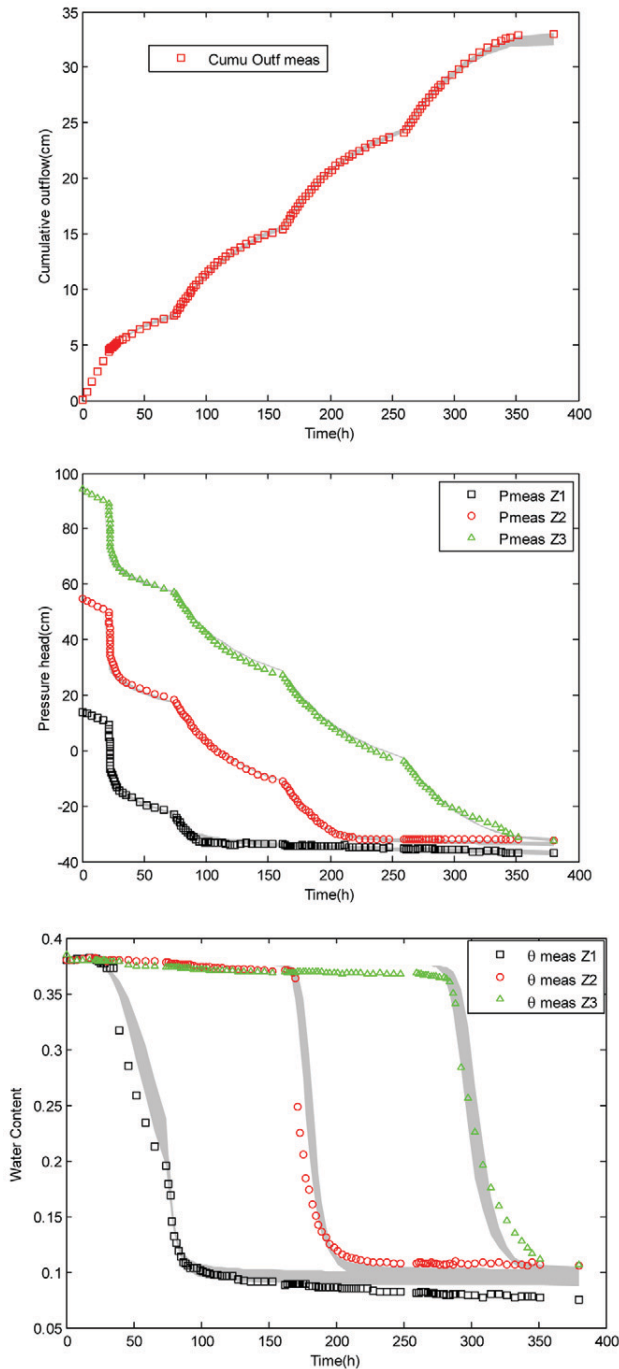


Fig. 2. Measured (symbols) and computed (gray) cumulative outflow, pressure head P , and water content θ at the top ($Z_1 = 10$ cm), middle ($Z_2 = 50$ cm) and bottom of the column ($Z_3 = 90$ cm). The width of shaded gray area corresponds to the 95% confidence intervals.

that, due to the low conductivity of the porous plate, this evolution was quasi-linear. Once unsaturated conditions were reached at the top of the column (at around 22 h), a large decrease in the pressure head was registered by the three sensors. At the end of this

first pressure step, only the first water content sensor was under unsaturated conditions. Analysis of water content plots provided the advance rate of the drainage front in the soil (Fig. 2). They depicted sharp fronts due to the monodisperse sand used. Moreover, due to the relatively large grain diameter (0.2–0.8 mm), the air-entry pressure, estimated between 17 and 24 cm, induced a time lag between the decrease of the pressure head and that of the water content.

Unsaturated Flow Model

Saturated–unsaturated water flow in a vertical soil column is modeled with the one-dimensional pressure head form of the RE:

$$\left[c(h) + S_s \frac{\theta}{\theta_s} \right] \frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[K(h) \left(\frac{\partial h}{\partial z} - 1 \right) \right] \quad [1]$$

where h (cm) is the pressure head; z is the depth (cm), taken positive in the downward direction; S_s (dimensionless) is the specific storage; θ and θ_s ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$) are the actual and saturated water contents, respectively; $c(h)$ (cm^{-1}) is the specific moisture capacity and $K(h)$ (cm h^{-1}) is the hydraulic conductivity as a function of the pressure head. The initial condition was a hydrostatic pressure distribution corresponding to the ponding of 4.7 cm. The boundary condition at the top of the domain was a Dirichlet condition (obtained from the measured pressure head at the top of the column) for the saturated flow ($t < 22$ h), then a Neumann condition with zero flux. At the bottom of the column, the boundary condition was of Dirichlet type corresponding to the four applied pressure steps (Fig. 1).

The interdependencies of the pressure head, conductivity, and water content are characterized by their soil water characteristic curves. In this study, we used the standard models of Mualem (1976) and van Genuchten (1980):

$$S_e(h) = \frac{\theta(h) - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \begin{cases} \frac{1}{\left(1 + |\alpha h|^n\right)^m} & h < 0 \\ 1 & h \geq 0 \end{cases} \quad [2]$$

$$K(S_e) = K_s S_e^{1/2} \left[1 - \left(1 - S_e^{1/m}\right)^m \right]^2$$

where S_e (dimensionless) is the effective saturation, θ_r ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$) is the residual water content, K_s (cm h^{-1}) is the saturated conductivity, and $m = 1 - 1/n$, α (cm^{-1}), and n (dimensionless) are the Mualem–van Genuchten (MVG) fitting parameters.

For the direct problem, higher order numerical integration was used to effectively solve the pressure head from Eq. [1] (e.g., Miller et al., 1998; Tocci et al., 1997; Fahs et al., 2009). For the spatial discretization of Eq. [1], a finite volume method with a uniform

mesh of 506 cells was used. Temporal discretization was performed with a high-order method via the method of lines (MOL). The advantage of the MOL is that the error checking, robustness, order selection, and time step adaptation features, available in sophisticated solvers for ordinary differential equations or differential algebraic equations, can be applied to the time integration of partial differential equations (Tocci et al., 1997). The MOL has been successfully used to solve the RE in many works (for instance, Kees and Miller, 2002; Farthing et al., 2003; Matthews et al., 2004; Miller et al., 2006; Li et al., 2007).

The RE flow model was used to analyze the laboratory experiment by considering that the uncertainty of model outputs is associated with three random input parameters: the MVG parameters α and n and the residual volumetric water content, θ_r . The rest of the parameters were fixed as follows: the volumetric saturated water content of the sand was easily and accurately measured to be $\theta_s = 0.375 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$. The saturated conductivity of the sand, K_s , and the saturated conductivity of the ceramic plate, K_{sp} , were initially measured with a fair degree of accuracy to be 43.3 and 0.003 cm h^{-1} , respectively; S_s was fixed at the small value of 10^{-8} cm^{-1} because its contribution was known to be negligible compared with the specific moisture capacity. The saturated water content of the ceramic plate was given by the manufacturer and fixed at $0.45 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$.

Note that in the literature, many researchers have considered some of the parameters to be fixed. For example, Kool et al. (1987) considered that K_s and θ_s were measured independently. Nützmann et al., (1998) considered K_s and θ_s to be constant during parameter estimation as recommended by van Dam et al. (1994) when both saturated and dry conditions were simulated. Durner and Iden (2011) proposed to combine percolation and outflow in one experiment. Due to the large uncertainties of the soil hydraulic functions near and at saturation (Vrugt et al., 2001; Vrugt and Bouten, 2002), they suggested estimating K_s separately using only the data corresponding to the saturated percolation phase.

Global Sensitivity Analysis Method

Analysis of Variance Decomposition and Sobol' Indices

Let us consider $f(\zeta)$, a mathematical or computer model associated with M independent random parameters $\zeta = \{\zeta_1, \zeta_2, \dots, \zeta_M\}$. As an example, $f(\zeta)$ may represent the pressure head at a given space-time location and ζ the set of parameters (θ_r, α, n). Sobol' (1993) showed that, if $f(\zeta)$ can be square integrated, then it can be uniquely expanded as

$$f(\zeta) = f_0 + \sum_{i=1}^M f_i(\zeta_i) + \sum_{j>i}^M f_{ij}(\zeta_i, \zeta_j) + \dots + f_{1\dots M}(\zeta_1, \dots, \zeta_M) \quad [3]$$

where f_0 is the expected value of $f(\zeta)$ and $f_{i_1, \dots, i_s}$ ($\{i_1, \dots, i_s\} \subseteq \{1, \dots, M\}$) are centered orthogonal functions. This representation is typically denoted as ANOVA decomposition because squaring Eq. [3] and taking the mathematical expectation leads to the variance decomposition of $f(\zeta)$, that is,

$$V = \sum_{i=1}^M V_i + \sum_{j>i}^M V_{ij} + \dots + V_{1\dots M} \quad [4]$$

where $V = \text{var}[f(\zeta)]$ is the total variance of the function, while $V_{i_1, \dots, i_s} = \text{var}(f_{i_1, \dots, i_s})$ is a partial variance. Sobol' indices measure the contribution of an input (solely or by interactions with other inputs) to the output variance. In particular, the first-order sensitivity index is defined by

$$S_i = \frac{\text{var}\{E_{\zeta_{-i}}[f(\zeta)|\zeta_i]\}}{\text{var}[f(\zeta)]} = \frac{V_i}{V} \quad [5]$$

where $\zeta_{-i} = \zeta/\{\zeta_i\}$ and $E[\cdot|\cdot]$ is the conditional expectation operator. It measures the expected amount by which the variance of $f(\zeta)$ is reduced when the true value of ζ_i is known. Of particular interest is the marginal relationship between f and ζ_i that enables investigation of the range of variation across which $f(\zeta)$ is most sensitive to ζ_i . The marginal relationship is defined by

$$E_{\zeta_{-i}}[f(\zeta)|\zeta_i] = f_0 + f_i(\zeta_i) \quad [6]$$

A multivariate function is said to be additive when its ANOVA decomposition reduces to the sum of the first-order components:

$$V \approx \sum_{i=1}^M V_i \quad [7]$$

If the model is additive and $V_i \ll V$, then it can be inferred that ζ_i is not relevant for $f(\zeta)$. As a consequence, the parameter ζ_i is not identifiable from observations of f . Several methods have been proposed in the literature to compute Sobol' indices (Saltelli et al., 2006). The PCE is one such method that consists in projecting f onto orthogonal polynomials similarly to Eq. [3]. Besides providing the sensitivity indices, the PCE can also serve as a surrogate model of $f(\zeta)$. This feature was exploited in the present work during the parameter identification step described below.

Polynomial Chaos Expansion

The polynomial chaos theory was originally developed by Wiener (1938) and has been extensively used in various engineering fields (e.g., Ghanem and Spanos, 1991; Xiu and Karniadakis, 2003; Le Maître et al., 2002; Acharjee and Zabarar, 2007; Li and Zhang, 2007). Following the discussion above, $f(\zeta)$ is expanded onto orthogonal polynomials of a degree not exceeding p :

$$f(\zeta) \approx \sum_{|\alpha| \leq p} s_{\alpha} \Psi_{\alpha}(\zeta) \quad [8]$$

where $|\alpha| = \sum_{i=1}^M \alpha_i$ and s_{α} are the polynomial chaos coefficients and Ψ_{α} are the α -degree multidimensional orthogonal polynomials. The number of polynomial coefficients is $P + 1 = (M + p)! / (M! p!)$. The advantage of the PCE-based sensitivity analysis is that the computational cost of estimating Sobol' indices is reduced to that of estimating the PCE coefficients (Fajraoui et al., 2011). Besides, the PCE runs faster than the original model and can therefore be used as a surrogate model for parameter estimation.

In this study, a PCE was constructed at each time step and for each observed output (the cumulative outflow, the three pressure heads, and the three water contents at locations Z_1 , Z_2 , and Z_3 inside the column). Legendre orthogonal polynomials were used in this work because a prior uniform distribution was assumed for each parameter. From the PCEs, the approximate marginal relationship between f and one of its inputs, say ζ_i (Eq. [5]), is written as

$$E_{\zeta_i} [f(\zeta) | \zeta_i] \approx s_0 + \sum_{k=1}^p s_k \Psi_k(\zeta_i) \quad [9]$$

As discussed above, its plot allows investigation of the range of variation across which ζ_i may be identifiable from the observations of f .

Different sampling techniques have been proposed to compute the polynomial coefficients. Tatang et al. (1997) proposed the full probabilistic collocation, while Huang et al. (2007) and Sudret (2008) used an incomplete probabilistic collocation design. Crestaux et al. (2009) used a sparse grid collocation technique, and Blatman and Sudret (2010) built a sparse PCE to save computational time. Because of the large uncertainty associated with the parameters and the small dimension of the model ($M = 3$), the full probabilistic collocation, which requires $(p + 1)^M$ runs, was used in this study.

Results and Discussion of Global Sensitivity Analysis Computational Issue

The aim of this work was to determine the parameters θ_r , α , and n by inverse optimization techniques given some measurements, as in

Table 1. Uncertainty ranges for the soil hydraulic parameters of residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n .

Parameter	Uncertainty range
$\theta_r, \text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$	[0.00, 0.12]
α, cm^{-1}	[0.01, 0.15]
n	[2, 13]

van Genuchten and Nielsen (1985), Eching and Hopmans (1993), Zurmühl (1996), and Nützmann et al. (1998). To this end, we first performed a sensitivity analysis of the computer model to find out the set of observable outputs suited for parameter estimation. Note that this analysis was performed before the inversion and without considering any observations.

The uncertainty ranges of the parameters, which had a uniform distribution, are shown in Table 1. The intervals were chosen according to the large set of values proposed in the literature for sand soils (GRIZZLY database, Haverkamp et al., 1998, 2005; Leij et al., 2005).

Polynomial chaos expansions of degree $p = 6$ have been investigated, requiring 343 runs of the discretized RE model. The emulator was deemed sufficiently accurate because no significant differences were observed with seventh-degree PCEs. Hence, from the 343 runs, a PCE was constructed at each time step for the following model responses: the cumulative outflow and the three pressure heads and three water contents at locations Z_1 , Z_2 , and Z_3 inside the column.

Figure 3 depicts the temporal distribution of the output variances (pressure head, water content, and cumulative outflow) and the relative contribution of the uncertain parameters. This corresponds to the temporal ANOVA decomposition (Eq. [4]). The shaded area under the variance curve includes the partial marginal contribution of the random input parameters and the contribution of their interactions. Large variations in the model responses can be observed due to the large variability of uncertain parameters (Fig. 3).

Global Sensitivity Analysis of the Cumulative Outflow

Figure 3 (top plot) shows that the three parameters had an impact on the prediction of cumulative outflow, with a relatively small influence of the parameter n . Interactions were virtually absent or associated with very low effects at all observation times. The parameter α was highly influential during the entire experiment, while the influence of θ_r became significant from 250 h (unsaturated conditions). Indeed, the quantity of water that can be removed from the column, for a given pressure step at the bottom of the column, depends on the air-entry pressure, which is controlled by the α value. Therefore, the large variance observed for the cumulative outflow is related to the large uncertainty interval

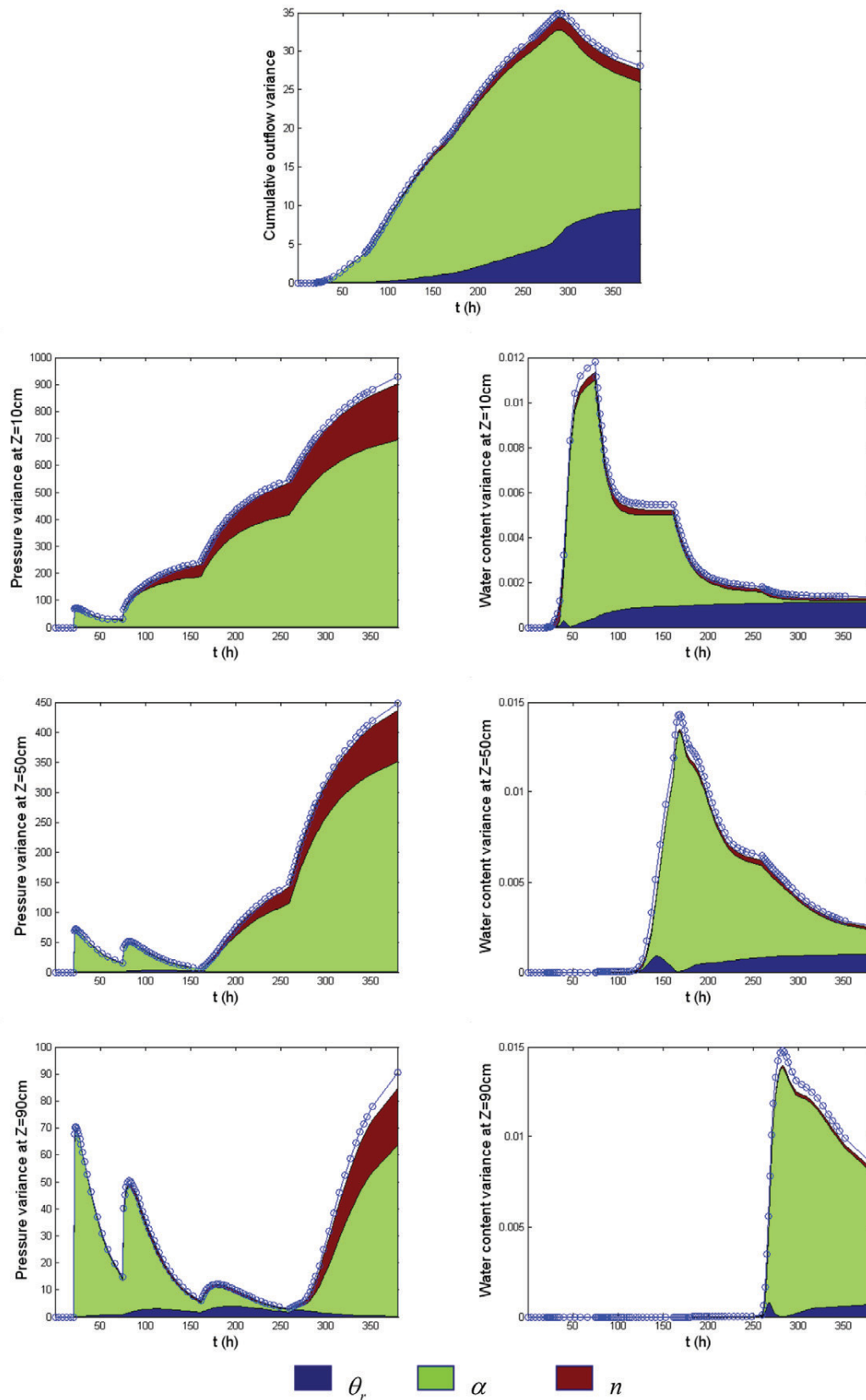


Fig. 3. Time distribution of the variance of pressure head, water content and cumulative outflow (line + circle). The shaded area under the variance curve represents the partial marginal contributions of the random inputs of the residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n ; the blank region between the shaded area and the variance curves represents the contribution of interactions between the parameters.

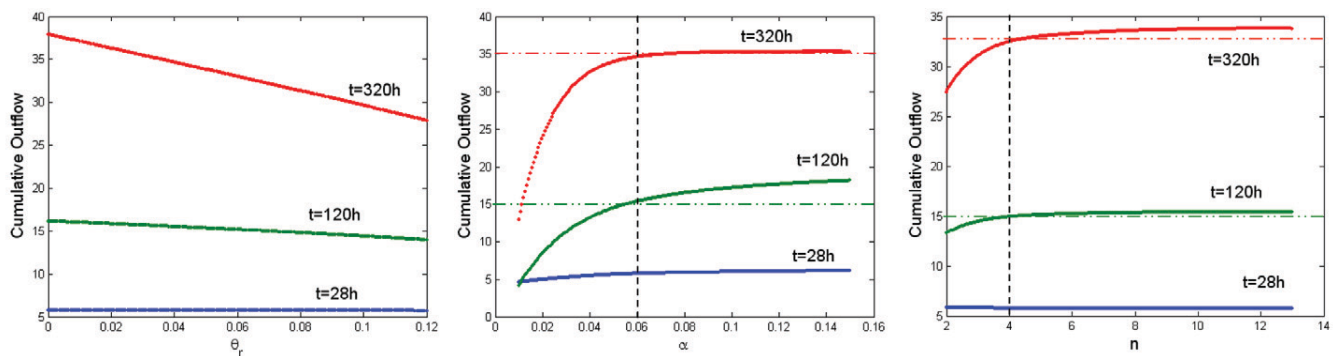


Fig. 4. Marginal effects of the residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n on the cumulative outflow at three different times.

($[0.01, 0.15] \text{ cm}^{-1}$) associated with α . Moreover, during the experiment, the cumulative outflow variance rose until about 300 h (Fig. 3) due to the increasing applied pressure steps. After this time, the column was unsaturated for most α values, which induced a decay of the cumulative outflow variance and an increased influence of θ_r .

These results suggest that the three parameters (θ_r , α , and n) could be identified from the cumulative outflow data, as stated by van Dam et al. (1994); however, the results of Fig. 3 should be assessed together with the sensitivity of the cumulative outflow to the parameters for different ranges inside the parameter space. Indeed, as stated by Lambot et al. (2002) and Abbaspour et al. (1997), parameters can be influential only within a particular zone of the parameter space.

Figure 4 shows the marginal relationship between the parameters and the cumulative outflow after 28, 120, and 320 h. These curves were easily derived from Eq. [9] once the coefficients of the PCE were calculated. The following points can be noted:

- The sensitivity of the cumulative outflow to θ_r was low (flat curve) at $t = 28 \text{ h}$ and $t = 120 \text{ h}$ and high at $t = 320 \text{ h}$, corresponding to the end of the simulation. At this time, the sensitivity to θ_r was linear with a negative slope, which is consistent with the physics of the process (when θ_r increases, the cumulative outflow decreases).
- At $t = 120 \text{ h}$, the cumulative outflow was sensitive to α , with high sensitivity for $\alpha \leq 0.06$. At $t = 320 \text{ h}$, the influence of α was almost null for $\alpha \geq 0.06$ and very high for $\alpha \leq 0.06$.
- The sensitivity of the cumulative outflow to n was very small when $n \geq 4$ at both $t = 120 \text{ h}$ and $t = 320 \text{ h}$. For $n \leq 4$, the influence was small at $t = 120 \text{ h}$ but became more significant at $t = 320 \text{ h}$. The sensitivity to n was generally lower than to α (Fig. 4), as observed by Nützmann et al. (1998).

As a conclusion, the cumulative outflow response was sensitive to θ_r and α across their entire ranges, with higher sensitivity for $\alpha \leq 0.06$; however, it was sensitive to n only for $n \leq 4$. Therefore, it

can be inferred that cumulative outflow measurements might be sufficient for the estimation of the three parameters only for soils such that $n \leq 4$ and preferably with $\alpha \leq 0.06$.

Global Sensitivity Analysis of Pressure Head

Figure 3 (left column) shows that the pressure head was sensitive to α and n but not to θ_r . As for the cumulative outflow, interactions among the parameters were negligible. The sensitivity of the pressure head to α was higher than to n . The parameter α was influential during the entire experiment, whereas n was only influential when the sensor was under unsaturated conditions. For instance, at $Z_2 = 50 \text{ cm}$ (Fig. 3), the sensitivity of the pressure head to the parameter α behaved as follows:

- For $t = [0, 22 \text{ h}]$, the whole column was saturated (falling-head phase). Therefore, all parameters were insensitive during this period.
- For $t = [22, 160 \text{ h}]$, the column remained under saturated conditions at $Z_2 = 50 \text{ cm}$. The abrupt change in the pressure step at the bottom induced a dynamic effect on the pressure head inside the column. This dynamic effect depended on the air-entry pressure, which is controlled by the value of α . Therefore, the large uncertainty interval ($[0.01, 0.15] \text{ cm}^{-1}$) of α induced large variations in the pressure heads even in the saturated part of the column.
- For $t = [160, 370 \text{ h}]$, unsaturated conditions occurred at $Z_2 = 50 \text{ cm}$. Therefore, the dynamic behavior of the pressure head was governed by both α and n values due to the S-shaped water retention curve.

The maximum pressure head variance was approximately 900 cm^2 at Z_1 , 450 cm^2 at Z_2 , and 90 cm^2 at Z_3 . Consequently, only the marginal effects of the parameters on the pressure head at Z_1 were analyzed (Fig. 5). The following can be noticed:

- A significant contribution of α to the variation of the pressure head was observed at all observation times. The highest sensitivity was obtained at $t = 320 \text{ h}$. At this time, the

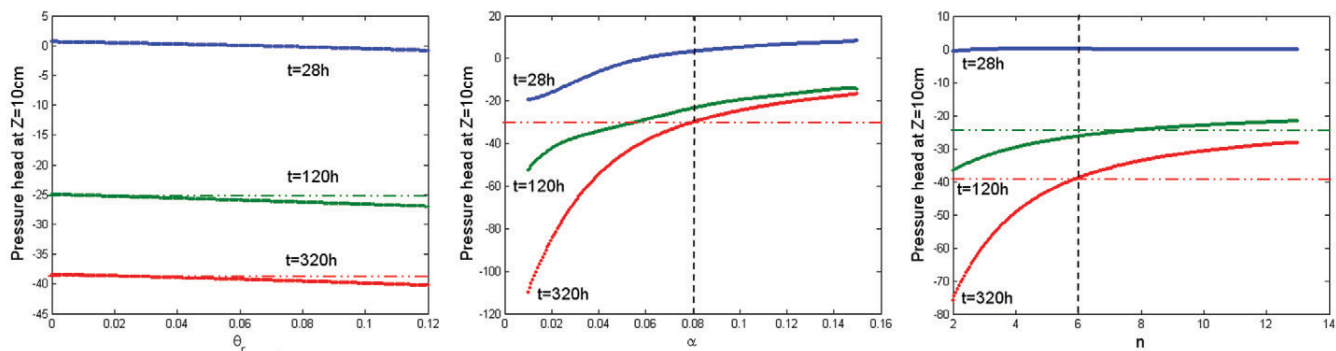


Fig. 5. Marginal effects of the residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n on the pressure head at depth Z_1 at three different times.

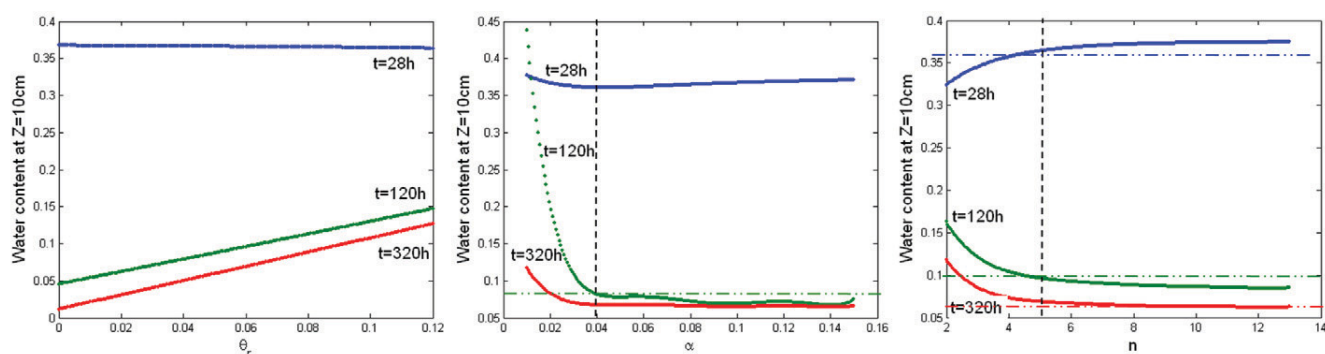


Fig. 6. Marginal effects of the residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n on the water content at depth Z_1 at three different times.

pressure head was sensitive to α across its entire range, with higher sensitivity for $\alpha \leq 0.08$.

- At $t = 28$ h, sensitivity to n was negligible. At $t = 120$ h, the pressure head became sensitive to this parameter but with a low sensitivity for $n \geq 6$. At $t = 320$ h, a higher sensitivity was observed for all values of n , with a very high sensitivity for $n \leq 6$.

Therefore, it can be inferred that a good estimate of α and n can be from the measurements of the pressure head at the top of the column (Z_1), provided that their local effects on the pressure head response are not strongly correlated. The parameter θ_r was not influential at all. This is in agreement with the water retention curve, which shows that large variations of the pressure head caused small changes in θ for θ close to θ_r . Therefore, θ_r cannot be accurately identified from the pressure head measurements regardless of the position of the sensor or the duration of the experiment.

Besides, comparison of Fig. 4 and 5 shows that a better estimate of α and n could be achieved from the pressure head data than from the cumulative outflow measurements. These results are in

agreement with those of Eching and Hopmans (1993), who found that the inverse solution was greatly improved when cumulative outflow data were supplemented with simultaneous measurements of the pressure head.

Global Sensitivity Analysis of the Water Content

Figure 3 (right column) shows the variance of the water content at the three different positions in the column. Similar behavior can be noted for the three locations. Zero variance can be seen during the first period of each plot, corresponding to a constant water content of $\theta = \theta_s$. The duration of this first segment increased from Z_1 to Z_3 because the bottom of the column was drained much later than the top. Figure 3 also shows that the water content at Z_1 was more sensitive to α except at the end of the simulation when it became more sensitive to θ_r . As above, only the marginal effects at Z_1 were analyzed. The following can be noted:

- At $t = 120$ h and $t = 320$ h, the water content was uniformly sensitive to θ_r for its entire range and has a positive slope (Fig. 6). At $t = 28$ h, the sensitivity to θ_r and α was low. At $t = 120$ h, high sensitivity can be seen for $\alpha \leq 0.04$. Otherwise, the

sensitivity to α was very small. At $t = 320$ h, the range across which α is influential was reduced to $\alpha \leq 0.03$.

- The water content at Z_1 was sensitive to n at the three observation times only for $n \leq 5$. Otherwise, the influence of n was negligible. At $t = 28$ h (nearly saturated conditions), the water content increased when n increased. Conversely at $t = 120$ h and $t = 320$ h, the water content decreased when n increased. This phenomenon can be explained by the S shape of the water retention curve $\theta(h)$. For a high value of n , $\theta(h)$ depicts a sharp front. Changing the values of n induces a change of the slope of the S curve. Therefore, reducing n induces a decrease for high θ values (before the inflection point) and an increase for low θ values (after the inflection point).

To conclude, Fig. 5 and 6 show that the variations of α and n had less impact on the water content measurements than on pressure head data.

Conclusion of the Global Sensitivity Analysis

The results of the GSA show that, depending on the kind of soil, some output measurements could be sufficient for estimation of the parameters. Indeed, the pressure head was highly sensitive to α and n across their entire ranges and insensitive to θ_r . The cumulative outflow was sensitive to α and θ_r for their entire ranges but sensitive to n only for $n \leq 4$. Hence, it can be inferred that data for the cumulative outflow and pressure head at the top of the column should be sufficient for the estimation of the three parameters θ_r , α , and n whatever the kind of sand used in the laboratory experiment. This assertion is verified below.

Markov Chain Monte Carlo Method for Parameter Estimation

Description of the Approach

Here, inversion of RE and estimation of the three parameters θ_r , α , and n are presented. Although we had at our disposal the data series of three pressure heads, three water contents, and cumulative outflow, only the measurements of pressure head at Z_1 and cumulative outflow were used to estimate the parameters. We adopted the approach proposed by Vrugt and Bouten (2002), which relies on MCMC sampling. Note that the inverse modeling was performed with the surrogate model (i.e., the PCEs of order $p = 6$) instead of the discretized RE model to save computational time. Of course, the MCMC sampler with the discretized RE model can also be used, but this will be more expensive. Note that the use of MCMC with the surrogate model has an added value especially for multidimensional problems, which are highly demanding in terms of CPU time.

Bayesian Parameter Estimate

The assessment of the three parameters θ_r , α , and n was performed in a Bayesian framework. For this purpose, the parameters' joint

posterior distributions were estimated. We used Bayes' rule to define a posterior probability density for the parameter set ζ , given the observations $\mathbf{y}_{\text{mes}}$.

First, the maximum likelihood estimate of the parameters was derived under the assumption that the error measurements for the two data series were independently and normally distributed, with zero means and variances denoted σ^2 . Then, we assumed that priors of the parameters $p(\zeta)$ had uniform and independent distributions, while the hyperparameter (σ^2) followed an inverse Gamma distribution. Hence, the parameter posterior distribution can be written as

$$P(\zeta|\mathbf{y}_{\text{mes}}) \propto \exp\left[\frac{-S(\zeta)}{2\sigma^2}\right] \quad [10]$$

where $S(\zeta) = \sum_{k=1}^N [\mathbf{y}_{\text{mes}}^{(k)} - \mathbf{y}_{\text{pce}}^{(k)}(\zeta)]^2$, N is the number of observations for each measure, and $\mathbf{y}_{\text{mes}}$ and $\mathbf{y}_{\text{pce}}$ are the measured and simulated responses, respectively.

The MCMC sampler is used for assessing the parameters' joint posterior distribution. The MCMC sample is generated by initializing the algorithm with $\zeta^* = (\theta_r^*, \alpha^*, n^*)$, the maximum likelihood estimate of ζ :

$$\zeta^* = \arg \max_{\zeta} [S(\zeta)] \quad [11]$$

Indeed, as explained by Vrugt and Bouten (2002), finding the modes is helpful in enabling the MCMC sampler to begin roughly centered on the most likely parameter set of the posterior target distribution. In this work, ζ^* was estimated using genetic algorithms (Haupt and Haupt, 2004). Then, the error variance σ^{*2} and the covariance matrix cov_0 were calculated:

$$\sigma^{*2} = \frac{S(\zeta^*)}{N - N_p} \quad [12]$$

$$\text{cov}_0 = \sigma^{*2} [\mathbf{J}(\zeta^*)^T \mathbf{J}(\zeta^*)]^{-1}$$

where N_p is the number of parameters ($N_p = 3$) and $\mathbf{J}(\zeta^*)$ is the Jacobian matrix.

The MCMC algorithm used in this work was the adaptive Metropolis algorithm (Haario et al., 2001). It proceeds as follows:

Initialization:

Start from an initial point $\zeta^0 = \zeta^*$ and compute its probability $p(\zeta^0|\mathbf{y}_{\text{mes}})$;

Choose a number of runs N_s and an integer i_0 ;

Start iterations:

1. Generate a new point ζ^i using the multi-normal distribution as the proposed distribution:

$$\zeta^i \leftarrow N(\zeta^{i-1}, c^2 \text{cov}_i) \quad [13]$$

where ζ^{i-1} is the previous candidate, cov_i is the covariance matrix, and $c = 2.4/N_p^2$ is a scaling factor. This covariance matrix is subsequently updated throughout the iterations as follows:

$$\text{cov}_i = \begin{cases} \text{cov}_0 & i \leq i_0 \\ \text{cov}(\zeta^0, \dots, \zeta^{i-1}) & i > i_0 \end{cases} \quad [14]$$

2. Calculate $p(\zeta^i | y_{\text{mes}})$ and compute the ratio $\beta = p(\zeta^i | y_{\text{mes}}) / p(\zeta^{i-1} | y_{\text{mes}})$;
3. Generate a random number u from a uniform distribution between 0 and 1;

4. If $u \leq \beta$, then accept the new set of parameters; else reject the point and set $\zeta^i = \zeta^{i-1}$;
5. If $i = N_s$, stop; otherwise, set $i = i + 1$ and go to 1.

If the length of the chain N_s is sufficiently large ($N_s = 20,000$ in this study), the chain $\{\zeta^0, \zeta^1, \dots, \zeta^{N_s}\}$ converges to the stationary posterior distribution of the parameter.

Results of the Estimation

Figure 7 shows the posterior probability distributions of the three parameters θ_r , α , and n when using only pressure head measurements at Z_1 , only cumulative outflow measurements, or both measurements. From this figure, the following can be seen:

- Parameter estimation using only pressure head measurements at Z_1 leads to an accurate estimation of the parameters α and n ; however, the parameter θ_r cannot be accurately estimated. These results are in agreement with GSA, where the pressure head was shown to be insensitive to θ_r (Fig. 5).

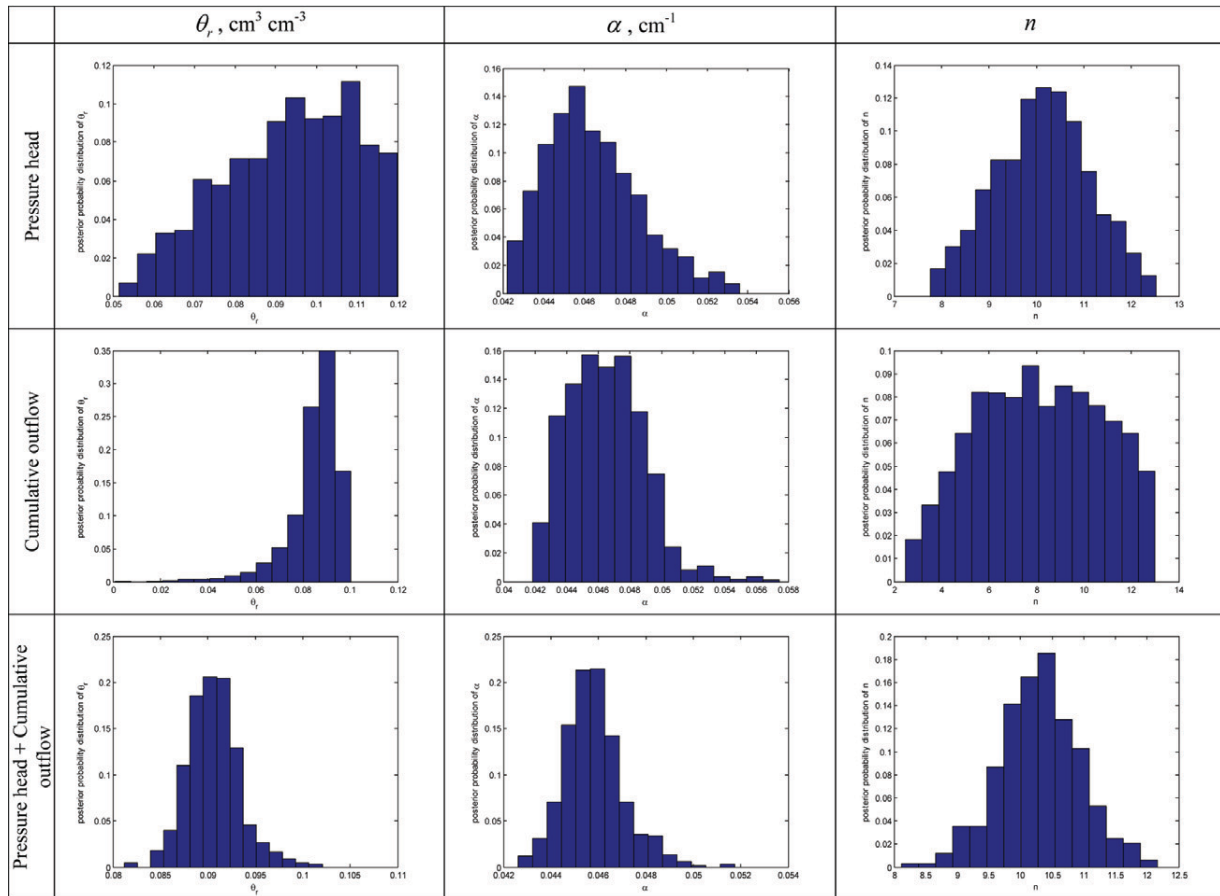


Fig. 7. Posterior probability distributions of the three parameters θ_r , α , and n when using only pressure head measurements at depth Z_1 , only cumulative outflow measurements, or both.

Table 2. Mean values and standard deviations for the residual volumetric water content θ_r and van Genuchten parameters α and n . Results of the Metropolis algorithm when both the pressure head at Z_1 and cumulative outflow measurements are used in the inversion.

Parameter	Mean	Standard deviation
$\theta_r, \text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$	0.0905	0.0027
α, cm^{-1}	0.0458	0.0012
n	10.30	0.63

- Parameter estimation using only cumulative outflow measurements leads to an accurate estimation of θ_r and α ; however, the parameter n cannot be accurately estimated. These results are also consistent with GSA, where the cumulative outflow was shown to be insensitive to n for $n \geq 4$ (Fig. 4). Note that the inversion with pressure head measurements gave an estimation of n around 10.
- When both cumulative outflow and pressure head measurements at Z_1 are used in the parameter estimation procedure, accurate estimation with reduced standard deviations are obtained for the three parameters θ_r , α , and n (Table 2).

Finally, since the inversion was performed with the surrogate model, validation of the results when both cumulative outflow and pressure head measurements at Z_1 are used in the inversion was undertaken by evaluating the discretized RE model with the best MCMC sample. The 95% confidence intervals of the predictions were then compared with the measured data (Fig. 2). The results show a very good agreement between simulated and measured cumulative outflow and pressure heads at all locations, although the pressure head data series at Z_2 and Z_3 were not used in the inversion procedure. A good match was also observed between simulated and measured water contents, although water content measurements were not used in the inversion. Finally, small uncertainties were obtained for the cumulative outflow and pressure head responses, while larger uncertainties were assigned to water content outputs (not used in the inversion), especially at low values.

Conclusions

In this work, we investigated the unsaturated soil hydraulic parameters of a sand from a laboratory drainage experiment. The experimental design allowed monitoring of the cumulative outflow as well as water contents and pressure heads at different positions inside the column. The experiment, modeled by combining RE with the Mualem–van Genuchten retention curve, was first analyzed with the help of GSA to find out the necessary data set for a successful calibration of the three parameters θ_r , α , and n . To this aim, the temporal sensitivity of the different outputs to θ_r , α , and n was analyzed. In addition, the marginal effects of the parameters were studied to investigate the range of variation across which a parameter may be identifiable from the output observations.

The GSA was performed using PCE for different model outputs. The results showed that the pressure head at the top of the column was highly sensitive to α and n across their entire ranges and insensitive to θ_r . The cumulative outflow was sensitive to α and θ_r for their entire ranges, but insensitive to n for $n \geq 4$. Consequently, only these two sets of measurement were used in the inversion.

Parameter estimation was performed in a Bayesian framework, where a joint posterior distribution was investigated with the MCMC method. To save computational time, the simulations were performed with the PCE instead of the discretized RE model. The results of the inversion showed an accurate estimation of the three parameters θ_r , α , and n , with reduced standard deviations.

Finally, cross-validation was performed by evaluating the discretized RE with the best MCMC sample and compared with the measured data. A good agreement was obtained between simulated and observed data although some measurements were not used in the inversion procedure.

This study points out the benefit of GSA for future experimental design to choose the kind of measurements, their locations, as well as the time for the measurements to ensure a successful calibration of the parameters.

References

- Abbaspour, K.C., M.Th. van Genuchten, R. Schulin, and E. Schlappi. 1997. A sequential uncertainty domain inverse procedure for estimating subsurface flow and transport parameters. *Water Resour. Res.* 33:1879–1892. doi:10.1029/97WR01230
- Acharjee, S., and N. Zabarar. 2007. A non-intrusive stochastic Galerkin approach for modeling uncertainty propagation in deformation processes. *Comput. Struc.* 85:244–254. doi:10.1016/j.compstruc.2006.10.004
- Ades, A.E., and G. Lu. 2003. Correlations between parameters in risk models: Estimation and propagation of uncertainty by Markov chain Monte Carlo. *Risk Anal.* 23:1165–1172. doi:10.1111/j.0272-4332.2003.00386.x
- Beydoun, H., and F. Lehmann. 2006. Drainage experiment and parameter estimation in unsaturated porous media. *C. R. Geosci.* 338:180–187. doi:10.1016/j.crte.2005.12.004
- Blatman, G., and B. Sudret. 2010. An adaptive algorithm to build up sparse polynomial chaos expansions for stochastic finite element analysis. *Probab. Eng. Mech.* 25:183–197. doi:10.1016/j.probenmech.2009.10.003
- Carrera, J., and S.P. Neuman. 1986. Estimation of aquifer parameters under transient and steady-state conditions: I. Maximum likelihood method incorporating prior information. *Water Resour. Res.* 22:199–210. doi:10.1029/WR022i002p00199
- Crestaux, T., O. Le Maître, and J.M. Martinez. 2009. Polynomial chaos expansion for sensitivity analysis. *Reliab. Eng. Syst. Saf.* 94:1161–1172. doi:10.1016/j.res.2008.10.008
- Duan, Q., S. Sorooshian, and V.K. Gupta. 1992. Effective and efficient global optimization for conceptual rainfall–runoff models. *Water Resour. Res.* 28:1015–1031. doi:10.1029/91WR02985
- Durner, W., and S.C. Iden. 2011. Extended multistep outflow method for the accurate determination of soil hydraulic properties near water saturation. *Water Resour. Res.* 47:W08526. doi:10.1029/2011WR010632
- Durner, W., B. Schultze, and T. Zurmühl. 1999. State-of-the-art in inverse modeling of inflow/outflow experiments. In: M.Th. van Genuchten et al., editors, *Characterization and measurement of the hydraulic properties of unsaturated porous media*, Proc. Int. Worksh., Riverside, CA. 22–24 Oct. 1997. U.S. Salinity Lab., Riverside, CA. p. 661–681.
- Eching, S.O., and J.W. Hopmans. 1993. Optimization of hydraulic functions from transient outflow and soil water pressure data. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 57:1167–1175. doi:10.2136/sssaj1993.03615995005700050001x

- Fahs, M., A. Younes, and F. Lehmann. 2009. An easy and efficient combination of the mixed finite element method and the method of lines for the resolution of Richards' equation. *Environ. Model. Softw.* 24:1122–1126. doi:10.1016/j.envsoft.2009.02.010
- Fajraoui, N., T.A. Mara, A. Younes, and R. Bouhlila. 2012. Reactive transport parameter estimation and global sensitivity analysis using sparse polynomial chaos expansion. *Water Air Soil Pollut.* 223:4183–4197. doi:10.1007/s11270-012-1183-8
- Fajraoui, N., F. Ramasomanana, A. Younes, T.A. Mara, P. Ackerer, and A. Guadagnini. 2011. Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media. *Water Resour. Res.* 47:W02521. doi:10.1029/2010WR009639
- Farthing, M.W., C.E. Kess, and C.T. Miller. 2003. Mixed finite element methods and higher order temporal approximations for variably saturated groundwater flow. *Adv. Water Resour.* 26:373–394. doi:10.1016/S0309-1708(02)00187-2
- Ghanem, R.G., and P.D. Spanos. 1991. *Stochastic finite elements: A spectral approach*. Springer-Verlag, Berlin.
- Haario, H., E. Saksman, and J. Tamminen. 2001. An adaptive Metropolis algorithm. *Bernoulli* 7:223–242. doi:10.2307/3318737
- Haupt, R.L., and S.E. Haupt. 2004. *Practical genetic algorithms*. 2nd ed. John Wiley & Sons, New York.
- Haverkamp, R., F.J. Leij, C. Fuentes, A. Sciortino, and P.J. Ross. 2005. Soil water retention: I. Introduction of a shape index. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 69:1881–1890. doi:10.2136/sssaj2004.0225
- Haverkamp, R., C. Zammit, F. Bouraoui, K. Rajkai, J.L. Arrúe, and N. Heckmann. 1998. GRIZZLY: Grenoble catalogue of soils: Survey of soil field data and description of particle-size, soil water retention and hydraulic conductivity functions. Lab. d'Etude des Transferts en Hydrol. et Environ., Grenoble, France.
- Homma, T., and A. Saltelli. 1996. Importance measures in global sensitivity analysis of nonlinear models. *Reliab. Eng. Syst. Saf.* 52:1–17. doi:10.1016/0951-8320(96)00002-6
- Hopmans, J.W., J. Šimůnek, N. Romano, and W. Durner. 2002. Simultaneous determination of water transmission and retention properties: Inverse methods. In: J.H. Dane and G.C. Topp, editors, *Methods of soil analysis*. Part 4. Physical methods. SSSA Book Ser. 5. SSSA, Madison, WI. p. 963–1008.
- Huang, S.P., S. Mahadevan, and R. Rebba. 2007. Collocation-based stochastic finite element analysis for random field problems. *Probab. Eng. Mech.* 22:194–205. doi:10.1016/j.probengmech.2006.11.004
- Hwang, S.I., and S.E. Powers. 2003. Estimating unique soil hydraulic parameters for sandy media from multi-step outflow experiments. *Adv. Water Resour.* 26:445–456. doi:10.1016/S0309-1708(02)00107-0
- Inoue, M., J. Šimůnek, J.W. Hopmans, and V. Clausnitzer. 1998. In situ estimation of soil hydraulic functions using a multistep soil-water extraction technique. *Water Resour. Res.* 34:1035–1050. doi:10.1029/98WR00295
- Jacques, D., J. Feyen, and D. Mallants. 1999. Determination of hydraulic properties using tension infiltrometer data and inverse optimization. In: M.Th. van Genuchten et al., editors, *Characterization and measurements of the hydraulic properties of unsaturated porous media*, Proc. Int. Worksh., Riverside, CA. 22–24 Oct. 1997. U.S. Salinity Lab., Riverside, CA. p. 749–760.
- Kees, C.E., and C.T. Miller. 2002. Higher order time integration methods for two-phase flow. *Adv. Water Resour.* 25:159–177. doi:10.1016/S0309-1708(01)00054-9
- Kool, J.B., J.C. Parker, and M.Th. van Genuchten. 1987. Parameter estimation for unsaturated flow and transport models: A review. *J. Hydrol.* 91:255–293. doi:10.1016/0022-1694(87)90207-1
- Lambot, S., M. Javaux, F. Hupet, and M. Vanclooster. 2002. A global multilevel coordinate search procedure for estimating the unsaturated soil hydraulic properties. *Water Resour. Res.* 38(11):1224. doi:10.1029/2001WR001224
- Lehmann, F., and P. Ackerer. 1997. Determining soil hydraulic properties by inverse method in one-dimensional unsaturated flow. *J. Environ. Qual.* 26:76–81. doi:10.2134/jeq1997.00472425002600010012x
- Leij, F.J., R. Haverkamp, C. Fuentes, F. Zatarain, and P.J. Ross. 2005. Soil water retention: II. Derivation and application of shape index. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 69:1891–1901.
- Le Maître, O.P., M.T. Reagan, H.N. Najm, R.G. Ghanem, and O.M. Knio. 2002. A Stochastic projection method for fluid flow: II. Random process. *J. Comput. Phys.* 181:9–44.
- Li, H., M.W. Farthing, C.N. Dawson, and C.T. Miller. 2007. Local discontinuous Galerkin approximations to Richards' equation. *Adv. Water Resour.* 30:555–575. doi:10.1016/j.advwatres.2006.04.011
- Li, H., and D. Zhang. 2007. Probabilistic collocation method for flow in porous media: Comparisons with other stochastic methods. *Water Resour. Res.* 43:W09409. doi:10.1029/2006WR005673
- Matthews, C.J., R.D. Braddock, and G.C. Sander. 2004. Modeling flow through a one-dimensional multi-layered soil profile using the method of lines. *Environ. Model. Assess.* 9:103–113. doi:10.1023/B:ENMO.0000032092.10546.c6
- Miller, C.T., C. Abhishek, and M.W. Farthing. 2006. A spatially and temporally adaptive solution of Richards' equation. *Adv. Water Resour.* 29:525–545. doi:10.1016/j.advwatres.2005.06.008
- Miller, C.T., G.A. Williams, C.T. Kelley, and M.D. Tocci. 1998. Robust solution of Richards' equation for non-uniform porous media. *Water Resour. Res.* 34:2599–2610. doi:10.1029/98WR01673
- Mualem, Y. 1976. A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resour. Res.* 12:513–522. doi:10.1029/WR012i003p00513
- Nützmann, G., M. Thiele, S. Maciejewski, and K. Joswig. 1998. Inverse modelling techniques for determining hydraulic properties of coarse-textured porous media by transient outflow methods. *Adv. Water Resour.* 22:273–284. doi:10.1016/S0309-1708(98)00009-8
- Pan, L., and L. Wu. 1998. A hybrid global optimization method for inverse estimation of hydraulic parameters: annealing–simplex method. *Water Resour.* 4:2261–2269.
- Russo, D., E. Bresler, U. Shani, and J. Parker. 1991. Analyses of infiltration events in relation to determining soil hydraulic properties by inverse problem methodology. *Water Resour. Res.* 27:1361–1373. doi:10.1029/90WR02776
- Saltelli, A., M., Ratto, S. Tarantola, and F. Campolongo. 2006. Sensitivity analysis practices: Strategies for model-based inference. *Reliab. Eng. Syst. Saf.* 91:1109–1125. doi:10.1016/j.res.2005.11.014
- Si, B.C., and R.G. Kachanoski. 2000. Estimating soil hydraulic properties during constant flux infiltration: Inverse procedures. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 64:439–449. doi:10.2136/sssaj2000.642439x
- Šimůnek, J., and M.Th. van Genuchten. 1996. Estimating unsaturated soil hydraulic properties from tension disc infiltrometer data by numerical inversion. *Water Resour. Res.* 32:2683–2696. doi:10.1029/96WR01525
- Sobol', I.M. 1993. Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Math. Model. Comput.* 1:407–414.
- Sobol', I.M. 2001. Global sensitivity indices for nonlinear mathematical models and their Monte Carlo estimates. *Math. Comput. Simul.* 55:271–280. doi:10.1016/S0378-4754(00)00270-6
- Sudret, B. 2008. Global sensitivity analysis using polynomial chaos expansions. *Reliab. Eng. Syst. Saf.* 93:964–979. doi:10.1016/j.res.2007.04.002
- Takeshita, Y. 1999. Parameter estimation of unsaturated soil hydraulic properties from transient outflow experiments using genetic algorithms. In: M.Th. van Genuchten et al., editors, *Characterization and measurements of the hydraulic properties of unsaturated porous media*, Proc. Int. Worksh., Riverside, CA. 22–24 Oct. 1997. U.S. Salinity Lab., Riverside, CA. p. 761–768.
- Tatang, M.A., W. Pan, R.G. Prinn, and G.J. McRae. 1997. An efficient method for parametric uncertainty analysis of numerical geophysical models. *J. Geophys. Res.* 102(D18):21925–21932. doi:10.1029/97JD01654
- Tocci, M.D., C.T. Kelley, and C.T. Miller. 1997. Accurate and economical solution of the pressure-head form of Richards' equation by the method of lines. *Adv. Water Resour.* 20:1–14. doi:10.1016/S0309-1708(96)00008-5
- van Dam, J.C., J.N.M. Stricker, and P. Droogers. 1994. Inverse method to determine soil hydraulic functions from multistep outflow experiments. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 58:647–652. doi:10.2136/sssaj1994.03615995005800030002x
- van Genuchten, M.Th. 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44:892–898. doi:10.2136/sssaj1980.03615995004400050002x
- van Genuchten, M.Th., and D.R. Nielsen. 1985. On describing and predicting the hydraulic properties of unsaturated soils. *Ann. Geophys.* 3:615–628.
- Vrugt, J.A., and W. Bouten. 2002. Validity of first-order approximations to describe parameter uncertainty in soil hydrologic models. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 66:1740–1751. doi:10.2136/sssaj2002.1740
- Vrugt, J.A., W. Bouten, H.V. Gupta, and J.W. Hopmans. 2003. Toward improved identifiability of soil hydraulic parameters: On the selection of a suitable parametric model. *Vadose Zone J.* 2:98–113.
- Vrugt, J.A., W. Bouten, H.V. Gupta, and S. Sorooshian. 2002. Toward improved identifiability of hydrologic model parameters: The information content of experimental data. *Water Resour. Res.* 38(12):1312. doi:10.1029/2001WR001118
- Vrugt, J.A., W. Bouten, and A.H. Weerts. 2001. Information content of data for identifying soil hydraulic parameters from outflow experiments. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 65:19–27. doi:10.2136/sssaj2001.65119x
- Vrugt, J.A., P.H. Stauffer, T. Wöhling, B.A. Robinson, and V.V. Vesselinov. 2008. Inverse modeling of subsurface flow and transport properties: A review with new developments. *Vadose Zone J.* 7:843–864. doi:10.2136/vzj2007.0078
- Wiener, N. 1938. The homogeneous chaos. *Am. J. Math.* 60:897–936. doi:10.2307/2371268
- Xiu, D., and G.E. Karniadakis. 2003. A new stochastic approach to transient heat conduction modeling with uncertainty. *Int. J. Heat Mass Transfer* 46:4681–4693. doi:10.1016/S0017-9310(03)00299-0
- Zurmühl, T. 1996. Evaluation of different boundary conditions for independent determination of hydraulic parameters using outflow methods. In: J. Gottlieb and P. DuChateau, editors, *Parameter identification and inverse problems in hydrology, geology and ecology*. Kluwer Acad. Publ., Dordrecht, the Netherlands. p. 165–184.

Chapitre 4

Estimation des paramètres pour les milieux à distribution stochastique

4.1	Introduction
4.2	La décomposition de Karhunen-Loève
4.3	Inférence Bayésienne
4.3.1	<i>Approche générale</i>
4.3.2	<i>Application au champ stochastique</i>
4.4	Application pour un problème de diffusion en 1D
4.4.1	<i>Description du problème</i>
4.4.2	<i>Choix de la fonction de covariance</i>
4.4.3	<i>Cas test1 : Profil sinusoïdal de période 1</i>
4.4.4	<i>Cas test 2: profil sinusoïdal de période 2</i>
4.4.5	<i>Critère de sélection des modes</i>
4.4.6	<i>Application de la méthode de sélection des modes au cas test 2</i>
4.5	Application sur un problème d'écoulement 2D
4.5.1	<i>Description du problème</i>
4.5.2	<i>Choix de la fonction de covariance</i>
4.5.3	<i>Cas test1 : écoulement de gauche à droite</i>
4.5.4	<i>Cas test2 : essai de pompage</i>
4.6	Conclusion

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes intéressés à la modélisation inverse en milieu poreux homogène ou hétérogène formé par un certain nombre de zones avec des paramètres constants dans chaque zone. Dans ce cas, le problème inverse se ramène à la

recherche d'un ensemble fini de paramètres hydrauliques à partir des observations. Ces derniers, qui sont les inconnus du problème, sont alors traités comme des variables aléatoires dont on cherche à déterminer la densité de probabilité conditionnée sur les observations. Afin de régulariser le problème, la densité de probabilité à priori des paramètres est postulée évitant ainsi de chercher dans une région de l'espace de paramètres où ces derniers sont peu plausibles. Cette démarche s'inscrit pleinement dans une approche Bayésienne. L'utilisation d'un algorithme MCMC permet de mener à bien cette tâche.

Nous avons également montré que l'analyse de sensibilité globale basée sur la variance pouvait permettre de réduire la dimension du problème. Ceci présente le double intérêt i) de se focaliser sur la détermination des paramètres pertinents du modèle (i.e. ceux dont on a une chance de réduire l'incertitude à posteriori), ii) d'accélérer la convergence des chaînes de Markov (conséquence de i)). L'analyse de sensibilité globale trouve tout son sens dans une approche Bayésienne car la densité de probabilité de chaque paramètre est postulée à priori. De plus, cette analyse menée avec la méthode de décomposition sur le chaos polynomial (Sudret, 2008) fournit un métamodèle qu'il peut être plus rapide à inverser que le modèle numérique initial.

La modélisation inverse en milieu à distribution stochastique de paramètres (hypothèse souvent utilisée pour les modèles hydrogéologiques à l'échelle régionale) est un tout autre challenge. D'abord, parce que les inconnus du problème sont des champs aléatoires (par opposition à des variables aléatoires) autrement dit il y a une infinité de paramètres. Ensuite parce que les données sont rares : quelques mesures de charge hydraulique sont disponibles et parfois quelques valeurs de conductivité hydraulique et le domaine d'étude est souvent mal défini (hypothèses sur le type d'écoulement, sur les conditions limites,...). La modélisation inverse en hydrogéologie à l'échelle régionale est par conséquent un problème généralement mal posé.

Lorsqu'on s'intéresse à la modélisation inverse en milieu naturel à partir d'observations peu abondantes, la première étape consiste à réduire la dimension du problème. Pour ce faire, une première approche est de considérer que le champ aléatoire (e.g. la conductivité hydraulique, $K(x)$) est constante par morceaux sur le domaine. Une méthode numérique basée sur un indicateur de raffinement a été développée ces dernières années (Chavent et Bissel, 1998) afin de déterminer une distribution spatiale de ce champ de conductivité constante par morceau. Il s'agit là d'une méthode de zonation.

Une autre stratégie consiste à supposer que le champ du log-conductivité ($Y = \log(K)$) est spatialement distribué selon une gaussienne. Cette hypothèse est généralement admise en géostatistique et est particulièrement utilisée pour le Krigeage. Elle implique que $Y \sim N(\mu_Y, C_Y(x, x'))$ est caractérisée par deux fonctions : une moyenne généralement

prise constante μ_Y et une covariance $C_Y(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$. Dans ce cas, la décomposition de Karhunen-Loève (Loève, 1977) permet de définir ce champ par un ensemble fini de variables aléatoires $\{\xi_1, \dots, \xi_M\}$ tel que :

$$Y(\omega, x) \simeq \mu_Y + \sum_{i=1}^K \sqrt{\lambda_i} \xi_i(\omega) \varphi_i(x),$$

où $(\lambda_i, \varphi_i(x))$ sont fixés et dépendent de C_Y (cf. § 4.2). Le problème inverse consiste alors à rechercher les scalaires (μ_Y, ξ) à partir des observations. Une telle méthode inscrite dans une approche Bayésienne a été proposée par (Li et Cirpka, 2006 ; Efendiev et al., 2006 ; Marzouk et Najm, 2009) et récemment appliquée avec un certain succès en hydrogéologie (Laloy et al., 2013). Enfin, notons que pour accélérer et améliorer la procédure d'inversion avec les MCMC, cette approche peut être couplée avec la construction d'un métamodèle (Kennedy et O'Hagan, 2001 ; Bayarri et al., 2007 ; Higdon et al., 2008 ; Ma et Zabaras, 2008 ; Cui et al. 2011).

Nous nous proposons, dans ce chapitre, d'étudier une telle démarche pour l'inversion d'un champ de conductivité (diffusivité) hydraulique.

4.2 La décomposition de Karhunen-Loève

Soit (Θ, U, P) un espace vectoriel de probabilité, où Θ définit l'ensemble des événements possibles, U est une σ -algèbre sur Θ et P une mesure de probabilité sur U . De plus, on se donne un domaine spatial fini D . On définit un champ aléatoire Y , comme une application de $T \times D$ dans $\mathbb{R}$. Un champ aléatoire Gaussien (ou processus Gaussien) est tel que $Y(\omega, x) \sim N(\mu_Y(x), C_Y(\mathbf{x}, \mathbf{x}'))$ où $x \in D, \omega \in \Theta$ et étant données $\mu_Y(x)$ la moyenne spatiale du champ et $C_Y(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$ sa covariance.

Sous l'hypothèse que $Y(x) \in L^2(D) \forall x \in D$, la décomposition en série de Karhunen-Loève d'un processus aléatoire Gaussien s'écrit,

$$Y(\omega, x) \simeq \mu_Y(x) + \sum_{i=1}^{+\infty} \sqrt{\lambda_i} \xi_i(\omega) \varphi_i(x) \quad (4.1)$$

où $(\lambda_i, \varphi_i(x)), \forall i \in \mathbb{N}^*$ est appelé respectivement valeur propre et vecteur propre de la fonction de covariance tandis que $\{\xi_i\}_{i=1}^\infty$ sont les variables aléatoires indépendantes centrées réduites et normalement distribuées ($\xi_i \sim N(0,1)$). Les valeurs et vecteurs propres s'obtiennent en remarquant que,

$$C_Y(x, x') = E\left[(Y(\omega, x) - \mu_Y(x))(Y(\omega, x') - \mu_Y(x'))\right] = \sum_{i=1}^{+\infty} \lambda_i \varphi_i(x) \varphi_i(x'), \quad (4.2)$$

Car $E[\xi^2] = 1$. Or, l'ensemble $\{\varphi_i(x)\}_{i=1}^\infty$ forme une base orthonormale complète sur $L^2(D)$ (théorème de Mercer), de sorte que,

$$\int_D \varphi_i(x) \varphi_j(x) dx = \delta_{ij} \quad (4.3)$$

Aussi, en multipliant (4.2) par $\varphi_i(x')$ et en intégrant, on obtient l'équation de Fredholm,

$$\int_D C_Y(x, x') \varphi_i(x') dx' = \lambda_i \varphi_i(x) \quad (4.4)$$

dont la résolution fournit les valeurs propres et vecteurs propres de la fonction de covariance.

En pratique, l'équation (4.1) est tronquée jusqu'à l'ordre K où seules les K plus grandes valeurs propres sont retenues $\lambda_1 \geq \lambda_2 \geq \dots \geq \lambda_K$ ainsi que les modes propres associés $\{\varphi_i(x)\}_{i=1}^K$. Ceci est possible car $Y \in L^2(D)$ ce qui implique que les valeurs propres peuvent être rangées par ordre décroissant (Zhang et Lu, 2004). Le champ de moyen μ_Y est souvent choisi constant tandis que la covariance est choisie sous la forme suivante :

$$C_Y(d) = \sigma^2 \rho\left(\frac{\|d\|}{L}\right), \quad (4.5)$$

où ρ est une fonction de corrélation symétrique et définie positive, σ^2 est la variance du champ et L ($\dim(L) = \dim(x)$) un vecteur de longueurs de corrélation. Alors, nous avons le résultat suivant : $\sum_{i=1}^{+\infty} \lambda_i = \sigma^2 D$ où D est la taille du domaine. K est choisi de sorte que

$\frac{\sum_{i=1}^K \lambda_i}{D\sigma^2} \geq (1-\varepsilon)$ où $\varepsilon \in [0,1]$ représente le pourcentage d'énergie (ou variance) de Y contenu dans la série tronquée,

$$Y(\omega, x) \simeq \mu_Y + \sum_{i=1}^K \sqrt{\lambda_i} \xi(\omega)_i \varphi_i(x), \quad (4.6)$$

Dans un problème direct, la décomposition (4.6) permet de générer un champ de log-conductivité hydraulique avec les caractéristiques stochastiques recherchées, (*i.e.* $Y \sim N(\mu_Y, C_Y)$). Il suffit pour ce faire de générer K variables aléatoires centrées réduites normalement et indépendamment distribuées $\{\xi_i\}_{i=1}^K$. Cette approche a été largement employée pour la propagation d'incertitude dans les équations aux dérivées partielles stochastiques via des simulations Monte Carlo ou tout autre type d'échantillonnage (Fontaine et al., 2010 ; Li et al., 2009 ; Wan et Karniadakis 2009 ; Ma et Zabaras, 2008 ; Matthies et Keese, 2005 ; Le Maître et al., 2002).

Dans une approche inverse, par contre, la décomposition (4.6) sert à déterminer un champ stochastique à partir de quelques mesures de variables d'état (charge hydraulique, teneur en eau,...) et/ou de conductivité hydraulique. En effet, le problème inverse consiste dans ce cas à rechercher les valeurs de (μ_Y, ξ) fournissant des prédictions plausibles par rapport aux observations et à la fonction de vraisemblance supposée. Cette idée proposée dans Efendiev et al. (2006) et Li et Cirpka, (2006) a été par la suite étendue par Marzouk et Najm, (2009) qui l'ont couplée avec une méthode spectrale stochastique (polynômes du chaos).

4.3 Inférence Bayésienne

4.3.1 Approche générale

Soit un ensemble de N_{obs} données d d'un système complexe modélisé par $f(\theta)$, une fonction de vecteur de paramètres $\theta = \{\theta_1, \dots, \theta_{N_{obs}}\}$ (à déterminer). On dispose d'une approximation numérique $f(\theta)$ (modèle numérique) de ce modèle. En inférence Bayésienne, θ et d sont traitées comme des variables aléatoires reliées par la formule de Bayes :

$$p(\theta|d) \propto p(d|\theta)p(\theta), \quad (4.7)$$

où $p(d|\theta)$ est appelée fonction de vraisemblance qui traduit la connaissance que l'on a à priori sur les données et $p(\theta)$ est la densité de probabilité à priori sur les paramètres. La densité de probabilité à postérieure $p(\theta|d)$ est la fonction qui nous intéresse et qu'il s'agit de déterminer. Cette fonction peut être estimée à l'aide des chaînes de Markov via un algorithme de type Métropolis-Hastings (Metropolis et al., 1953 ; Hastings, 1970; Haario et al., 2001; Haario et al., 2006; Mira, 2001). Toutefois, compte tenu du temps de calcul requis par ses méthodes, il peut arriver que seul le jeu de paramètres optimal au sens du maximum à postérieure soit recherché. Celui-ci est défini par,

$$\theta^{MAP} = \arg \max p(\theta|d) \quad (4.8)$$

La première étape en inférence Bayésienne est de postuler un modèle de la fonction de vraisemblance. Soit, le modèle suivant :

$$d = f(\theta) + \varepsilon \quad (4.9)$$

ε est un terme d'erreur incluant aussi bien les erreurs de mesures que les erreurs du modèle numérique. Nous supposons que ε est un vecteur de N_{obs} variables aléatoires identiquement et indépendamment distribuées selon la loi p_e . Alors la fonction de vraisemblance s'écrit,

$$p(d|\theta) = \prod_{k=1}^{N_{obs}} p_e(d_k - f(\theta)), \quad (4.10)$$

La densité à postérieure se déduit après avoir défini la densité à priori des paramètres comme suit,

$$p(\theta|d) \propto p(\theta) \prod_{k=1}^{N_{obs}} p_e(d_k - f(\theta)), \quad (4.11)$$

Notons que (4.9) est une hypothèse souvent admise mais qui peut être remise en question. Toutefois, les exemples traités dans ce chapitre étant purement numériques, nous ne nous attarderons pas sur la validité de cette relation.

4.3.2 Application au champ stochastique

Pour un champ stochastique tel que le *log*-conductivité hydraulique, la décomposition de Karhunen-Loève (4.6) permet de réduire la dimension du problème. Nous sommes donc amenés à rechercher $K+1$ variables aléatoires $\theta = \{\mu_Y, \xi\}$ où ξ est un vecteur de variables aléatoires à priori indépendantes, normales, centrées et réduites. Aussi, la densité à postériori s'écrit-elle,

$$p(\theta|d) \propto p(\mu_Y) \prod_{i=1}^K \exp\left(-\frac{\xi_i^2}{2}\right) \prod_{k=1}^{N_{obs}} p_e(d_k - f(\theta)), \quad (4.12)$$

Il ne reste plus qu'à définir p_e le noyau de la fonction de vraisemblance et $p(\mu_Y)$. Par la suite, nous réduirons le nombre d'inconnues à K en fixant μ_Y . En effet, cette réduction a un sens dans la mesure où la décomposition de Karhunen-Loève du *log*-conductivité revient à rechercher cette fonction sur la base orthogonale $\{\varphi_i(x)\}_{i=1}^K$. Compte tenu que les tests qui vont suivre sont purement numériques, on choisit un noyau Gaussien pour l'erreur à savoir, $\varepsilon \sim N(0, \Sigma)$.

4.4 Application pour un problème de diffusion en 1D

4.4.1 Description du problème

Afin d'illustrer la méthode, nous répétons ici un exemple traité dans (Marzouk et Najm 2009). Il s'agit d'un problème de diffusion unidimensionnelle dans un milieu hétérogène $D = [0, 1]$ (Figure 4.1). Le problème est défini comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K(x) \frac{\partial u}{\partial x} \right) + \sum_{j=1}^3 \frac{a_0}{\sqrt{2\pi}\sigma_0} \exp \left(-\frac{(x-x_j)^2}{2\sigma_0^2} \right) (1-H(t-T_0)) \\ \frac{\partial u}{\partial t} \Big|_{x=0} = \frac{\partial u}{\partial t} \Big|_{x=1} = 0 \\ u(x,0) = 0 \end{array} \right. \quad (4.13)$$

où $H(t)$ est la fonction Heaviside, $\frac{a_0}{\sqrt{2\pi}\sigma_0} \exp \left(-\frac{(x-x_j)^2}{2\sigma_0^2} \right)$ est un terme source localisé

en x_j . Sont considérées trois sources de puissance $a_0 = 100$ et réparties autour des points $x_j \in \{0.25, 0.5, 0.75\}$ selon une Gaussienne de variance $\sigma_0^2 = 0.001s$. Ces sources émettent pendant le temps $[0, T_0]$ où $T_0 = 0.01s$. La connaissance du champ de diffusivité $K(x)$ permet de résoudre le problème direct (4.13).

Le problème (4.13) est résolu numériquement avec la méthode des volumes finis par un schéma implicite en temps. Une discrétisation uniforme en espace et en temps est adoptée avec $\Delta x = \frac{1}{49}$ et $\Delta t = 10^{-4}$.

Les observations sont générées artificiellement en résolvant le problème direct pour un choix arbitraire de la diffusivité. Les solutions prédites par le modèle numérique sont choisies en différents points et à différents temps, puis bruitées. On dispose de $n = 13$ mesures bruitées de la variable d'état $u(x, t)$ relevées uniformément sur le domaine $[0, 1]$ à $m = 9$ instants distincts et régulièrement répartis sur la période $[0.01s, 0.03s]$. Les bruits ajoutés sont normalement distribués, $p_e \sim N(0, \sigma_e^2 I_{m \times n})$ avec $\sigma_e^2 = 0.01$.

Marzouk et Najm, (2009) déterminent $K(x)$ à partir de ces observations en postulant que

$$Y(x) = \log(K(x)) \sim N \left(0.1, \sigma^2 \exp \left(-\frac{1}{2} \left(\frac{x-x'}{L} \right)^2 \right) \right), \text{ où } L = 0.3 \text{ (différentes valeurs ont}$$

été testées en vérité) et en incluant σ^2 dans les inconnues du problème inverse. Dans ce qui suit, nous adoptons un autre point de vue qui est celui de (Laloy et al., 2013) où σ^2 est fixé. En effet, il faut remarquer que dans la fonction de covariance de type (4.5), le choix de σ^2 n'influe que sur les valeurs propres de la décomposition de Kharunen-Loève (*i.e.*, λ) et non sur le nombre de modes retenu contrairement à L qui influe sur toutes les variables de la décomposition $(K, \lambda, \varphi(x))$. La conséquence est que σ^2 est pris en compte

dans ξ lors de l'inversion du modèle. Fixer σ^2 revient à ajouter une condition de régulation au problème inverse afin d'éviter que l'algorithme d'inversion n'aille explorer une région de l'espace des paramètres présumée peu plausible.

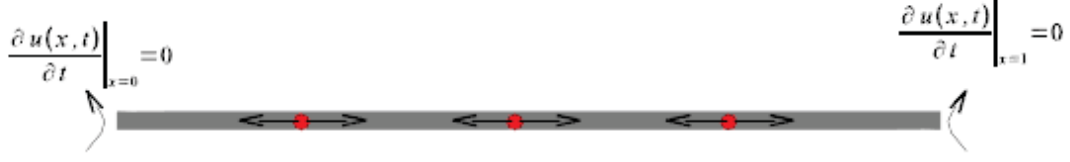


Figure 4.1 – Problème de diffusion proposé par Marzouk et Najm, 2009. Il s'agit d'un problème 1D avec conditions limites de type flux nul. Les cercles rouges représentent les termes sources

La formulation Bayésienne du problème inverse conduit donc à définir la fonction de vraisemblance suivante,

$$p(u_{mes} | \xi, \sigma_e^2) \propto \exp\left(\frac{-SS(\xi)}{2\sigma_e^2}\right) \quad (4.14)$$

où, $SS(\xi) = \sum_{p=1}^n \sum_{q=1}^m (u_{mes}(x_p, t_q) - u_{mod}(x_p, t_q))^2$ désigne la somme des écarts quadratiques entre la mesure u_{mes} et la prédiction du modèle u_{mod} (solution numérique de (4.13)). La densité de probabilité à priori des coefficients de la décomposition de Karhunen-Loève est,

$$p(\xi_i) \propto \exp\left(-\frac{\xi_i^2}{2}\right) \quad (4.15)$$

comme discutée dans la section précédente. Bien que les observations soient ici synthétiques, nous considérons σ_e^2 comme une inconnue du problème inverse à laquelle est associée la loi Gamma,

$$p(\sigma_e^{-2}) = \Gamma(\alpha, \beta), \quad (4.16)$$

où les hyperparamètres $(\alpha, \beta) \in \mathbb{R}^{*+}$ sont choisis afin de garantir que $\delta_e^2 = 0.01$ soit une valeur probable. En vertu du théorème de Bayes (4.7), la densité de probabilité à posteriori s'écrit :

$$p(\xi, \sigma_e^2 | u_{mes}) \propto \exp\left(-\frac{SS(\xi)}{2\sigma_e^2}\right) \prod_{i=1}^K \exp\left(-\frac{\xi_i^2}{2}\right) \sigma_e^{\alpha-1} \exp\left(-\frac{\beta}{\alpha}\right) \quad (4.17)$$

Cette densité de probabilité est évaluée à l'aide des chaînes de Markov Monte Carlo via l'algorithme Delayed Rejection Adaptive Metropolis (Haario et al., 2006).

4.4.2 Choix de la fonction de covariance

Le champ de log-diffusivité est généré par un processus gaussien stationnaire de moyenne nulle et de fonction de covariance C_Y . Le programme Matlab, développé par Q.Wang et P.G. Constantine, a été utilisé pour résoudre l'équation de Fredholm (4.4) et déterminer les valeurs propres et les fonctions propres de la fonction de covariance choisie. Deux noyaux de covariance, avec différentes longueurs de corrélation ($L = 0.2, 0.3$) sont considérés, à savoir :

- Une fonction de covariance gaussienne:

$$C_Y(x, x') = \sigma^2 \exp\left(-\frac{(x-x')^2}{2L^2}\right) \quad (4.18)$$

- Une fonction de covariance exponentielle:

$$C_Y(x, x') = \sigma^2 \exp\left(-\frac{|x-x'|}{L}\right) \quad (4.19)$$

où σ^2 est la variance et L la longueur de corrélation définie comme étant la distance minimale au-delà de laquelle deux points du champ stochastique sont non-corrélés. Notons que contrairement à la longueur de corrélation, la valeur de la variance n'a aucune incidence sur les fonctions propres de la décomposition de Karhunen-Loève. Aussi, toutes les valeurs propres sont calculées à un coefficient multiplicatif σ^2 près. La Figure 4.2 représente les sommes cumulées des valeurs propres normalisées $\left(\frac{\sum_{k=1}^K \lambda_k}{\sigma^2 D} \text{ avec } D=1\right)$, en

fonction du nombre de modes K dans les cas des covariances gaussienne et exponentielle et pour les deux longueurs de corrélation choisies. On constate pour la gaussienne une croissance très rapide de la somme cumulée (*i.e.* une décroissance très rapide des valeurs

propres) contrairement à la covariance exponentielle dont la croissance est plus lente (*i.e.* décroissance lente des valeurs propres). De ce fait, pour une longueur de corrélation donnée, peu de modes sont nécessaires pour bien décrire le champ stochastique gaussien comparé au champ exponentiel. En outre, on remarque également que plus la longueur de corrélation est faible (c'est à-dire plus le milieu est hétérogène), plus il y a besoin de modes pour générer le champ stochastique recherché. Quelques fonctions propres sont représentées sur la figure 4.3. Celles-ci sont assez semblables quelques soit la fonction de covariance et ont un motif auto-similaire comme les ondelettes. Remarquons que la k -ième fonction propre possède k extréma. Dans l'approche proposée par Marzouk et Najm, (2009), le choix du nombre de modes K à retenir dans la décomposition de Karhunen-Loève est dicté par le taux de croissance de la somme cumulée des valeurs propres normalisées. Ce choix dépend donc de la fonction de covariance considérée a priori. Nous allons voir qu'un tel choix arbitraire n'est pas satisfaisant et à moins d'être sûr de la fonction de covariance (choix basé sur des études préalables) qu'un autre critère de sélection s'impose.

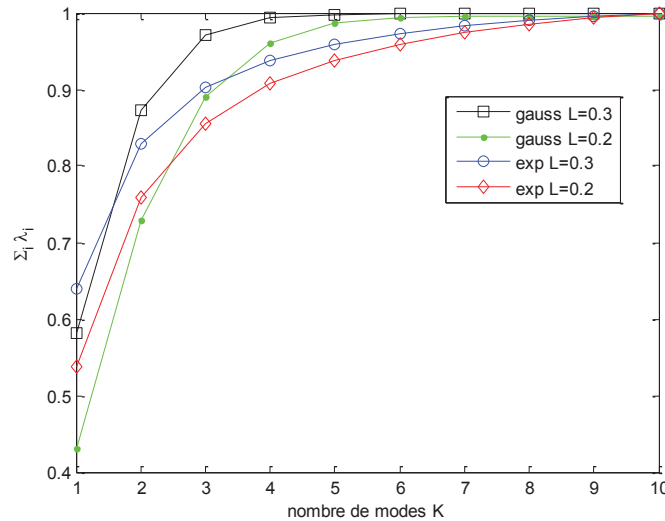


Figure 4.2 – Sommes cumulées des valeurs propres normalisées pour différentes fonctions de covariances. Quatre modes suffisent à décrire un champ gaussien de longueur de corrélation $L = 0.3$

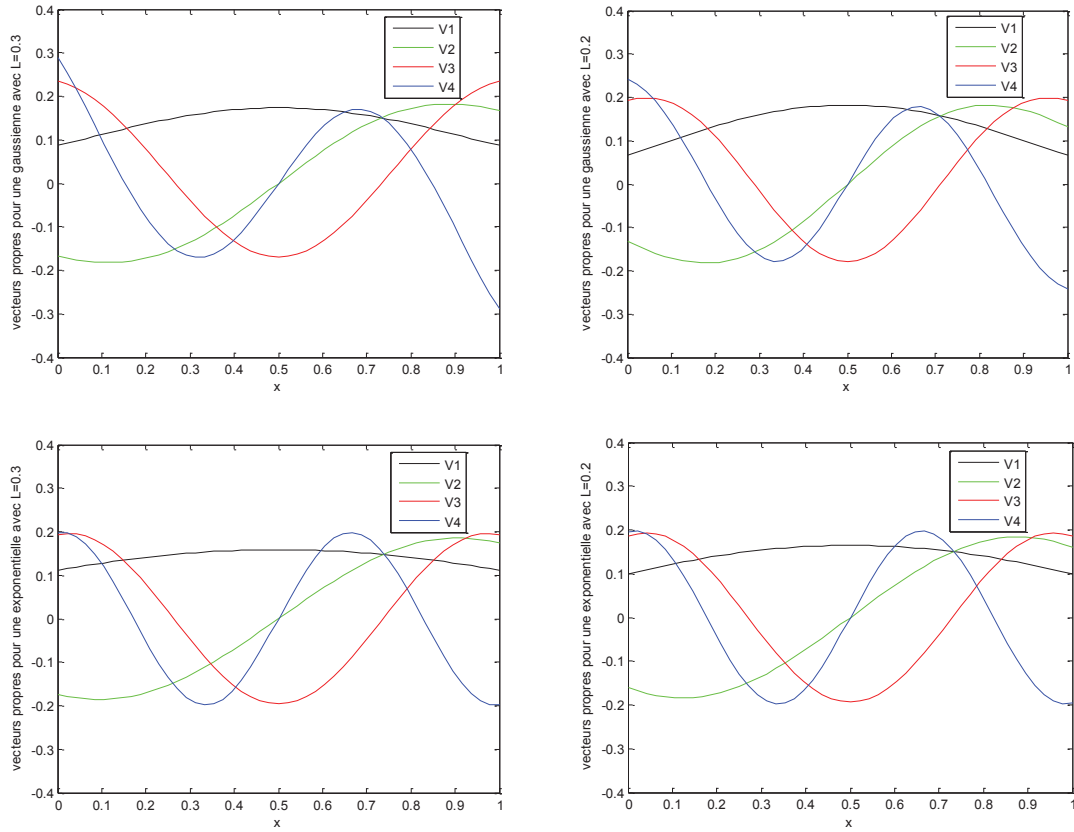


Figure 4.3 –quelques premières fonctions propres pour les deux fonctions de covariance

4.4.3 Cas test1 : Profil sinusoïdal de période 1

Conformément à ce qui est décrit dans la section 4.4.1, les observations sont générées artificiellement en prenant le profil suivant pour le champ log-diffusivité : $Y(x) = 0.5 \sin(2\pi x)$. Le choix de la fonction de covariance gaussienne avec $(\sigma^2 = 1, L = 0.2)$ conduit à ne retenir que les $K = 8$ premiers modes qui expliquent plus de $(1 - \varepsilon) = 99\%$ de la variance $\left(i.e. \sum_{i=1}^K \lambda_i > 1 - \varepsilon \right)$. Cependant, pour tester l'influence de K sur la qualité de l'inversion, différents nombres de modes sont considérés (correspondant à différentes valeurs de ε). Tout comme Marzouk et Najm, (2009), nous recherchons le champ sous la forme :

$$Y(\omega, x) = 0.1 + \sum_{k=1}^K \sqrt{\lambda_k} \xi_k(\omega) \varphi_k(x) \quad (4.20)$$

Les inconnues du problème, à savoir $\{\xi_k\}_{k=1}^K$, sont recherchées à l'aide d'un algorithme MCMC basé sur la densité à postériori (4.17) (décrit dans le chapitre III). Concernant la qualité de l'inversion, les résultats obtenus sont comparables et en accord avec les observations (Figure 4.4). Les valeurs moyennes prédites sont comparables aux mesures de $u_{mes}(x_p, t_q)$, $\forall q=1, \dots, 13, p=1, \dots, 9$ et les incertitudes prédites (en accord avec l'erreur de mesure $\sigma_e = 0.1$) englobent bien les observations. Par contre, la qualité de l'inversion vis à vis du champ du log-diffusivité dépend du nombre de modes retenus. Le meilleur résultat est obtenu pour $K=4$. Notons qu'un nombre plus réduit ($K=2$) n'offre pas un meilleur ajustement. Naturellement, Ceci peut être expliqué par le fait qu'avec $K=2$, on n'arrive pas à reproduire le degré de l'hétérogénéité recherché. Ce constat reste vrai pour une fonction de covariance exponentielle avec $L=0.2$ (Voir figure 4.5) et bien que nous ne le montrons pas pour la covariance exponentielle avec $L=0.3$. Cela signifie que la sélection des modes sur le seul critère de leur contribution à la variance du champ stochastique à priori $\left(i.e. \sum_{i=1}^K \lambda_i > 1 - \varepsilon \right)$ n'est pas satisfaisant.

Un nombre trop grand de modes retenus engendre un nombre de degré de libertés trop grand et conséquemment une plus grande variabilité du champ de log-diffusivité. Pourtant un choix trop grand de K , et donc un champ de diffusivité mal estimé, semble avoir peu d'impact sur la variable d'état prédite par le modèle aux points de mesures. Ce résultat vient appuyer le fait que le problème inverse possède une infinité de solutions. Il est donc primordial de régulariser davantage ce problème dans l'optique de déterminer au mieux le champ stochastique $Y(\omega, x)$.

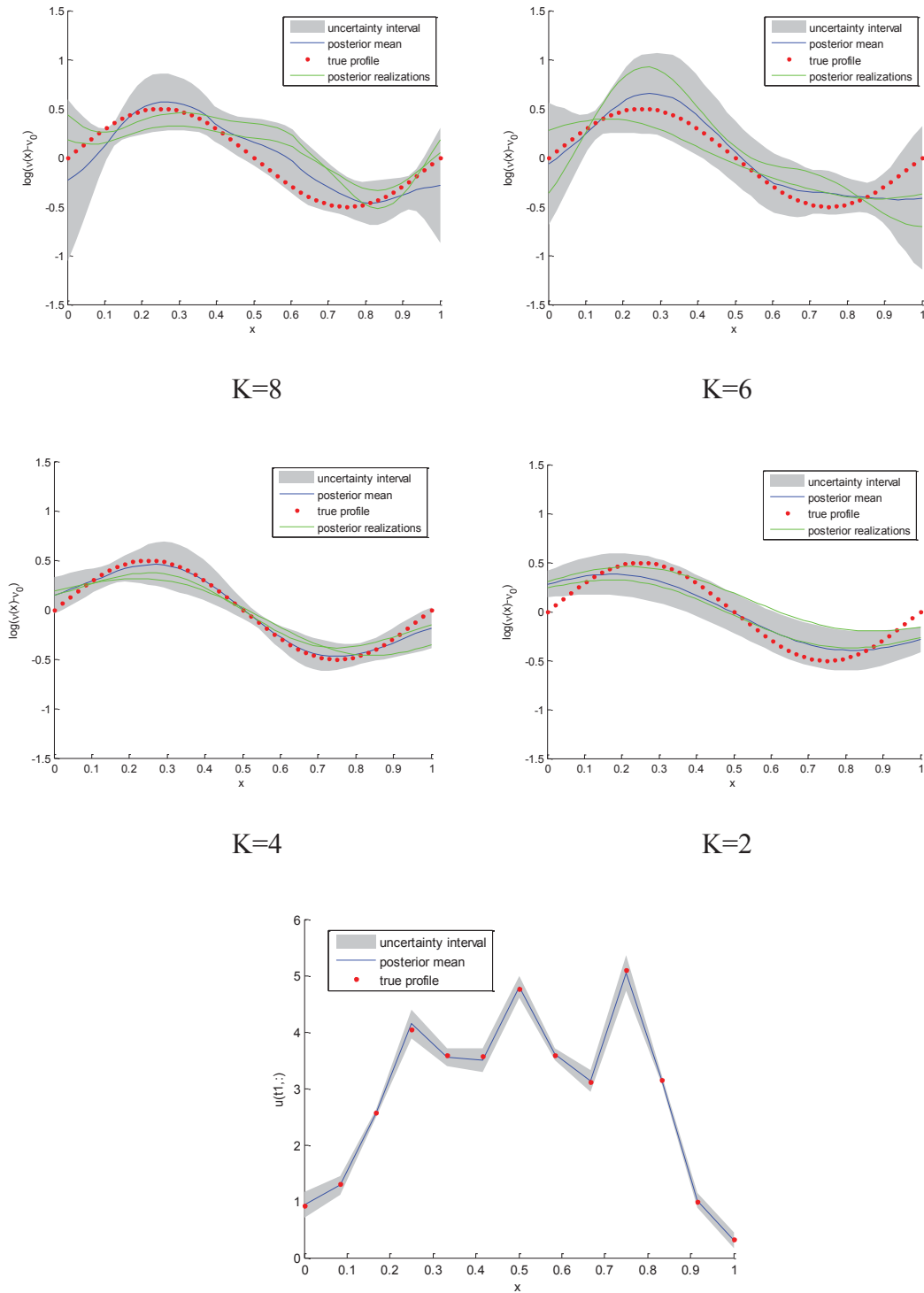


Figure 4.4 – Inversion du champ log-diffusivité à partir d’une covariance gaussienne de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure

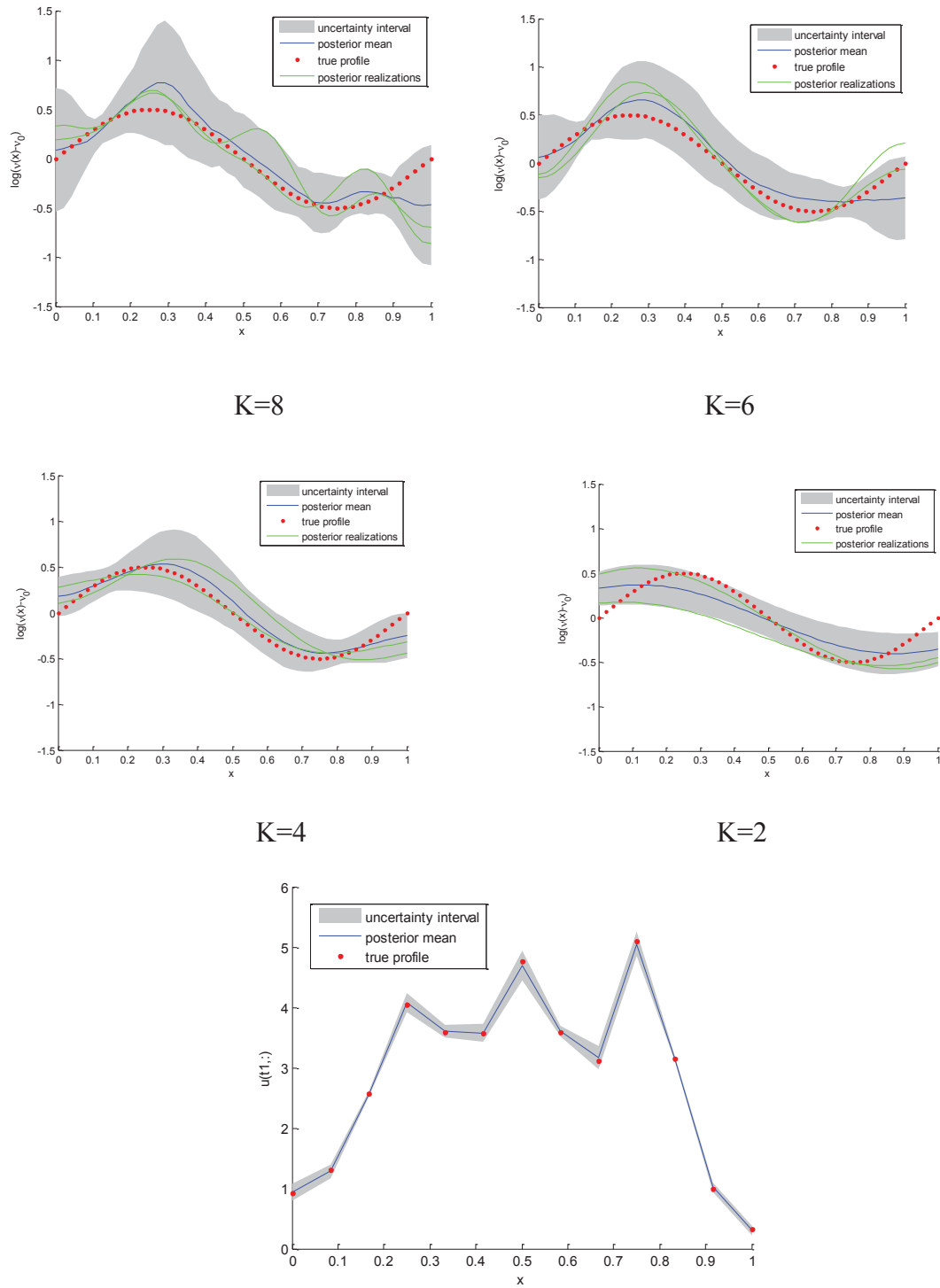
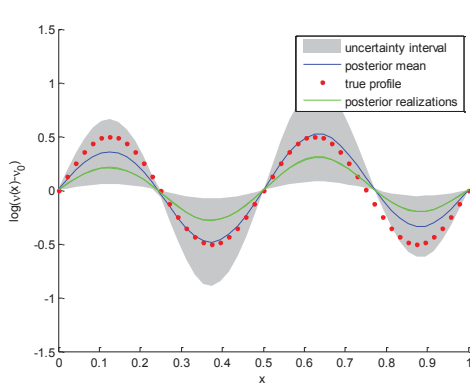


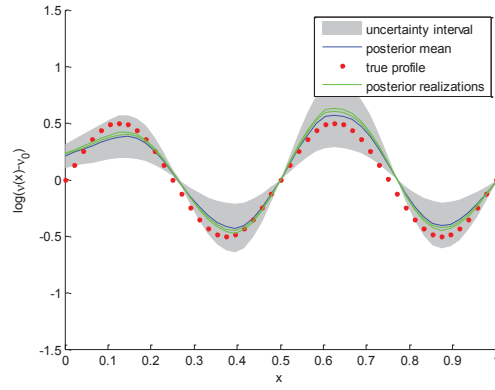
Figure 4.5 – Inversion du champ log-diffusivité à partir d'une covariance exponentielle de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure

4.4.4 Cas test 2: profil sinusoïdal de période 2

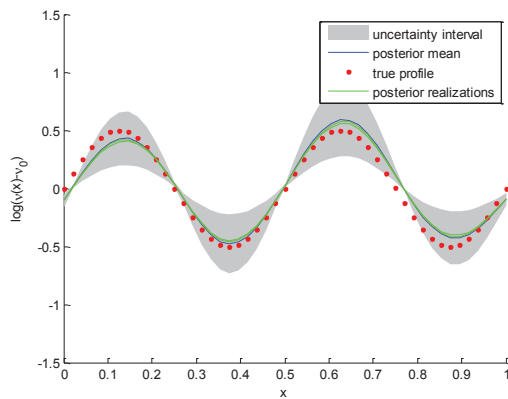
On considère un cas test où les observations sont générées artificiellement en prenant le profil suivant pour le champ log-diffusivité : $Y(x) = 0.5 \sin(4\pi x)$. Comme dans le cas test 1, on teste l'influence de K sur la qualité de l'inversion. Le même constat que pour le cas test 1 est vérifié. Les résultats obtenus sont en adéquation avec les observations (Figure 4.6). Les champs moyens à posteriori sont comparables aux mesures de $u_{mes}(x_p, t_q)$, $\forall q = 1, \dots, 13, p = 1, \dots, 9$ et les observations sont bien contenues dans l'intervalle d'incertitudes. Contrairement au cas test 1, le meilleur résultat est obtenu pour $K = 6$. Quatre modes ne suffisent pas à reproduire l'hétérogénéité du champ de conductivité.



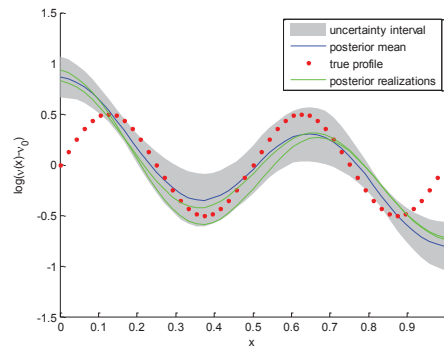
K=10



K=8



K=6



K=4

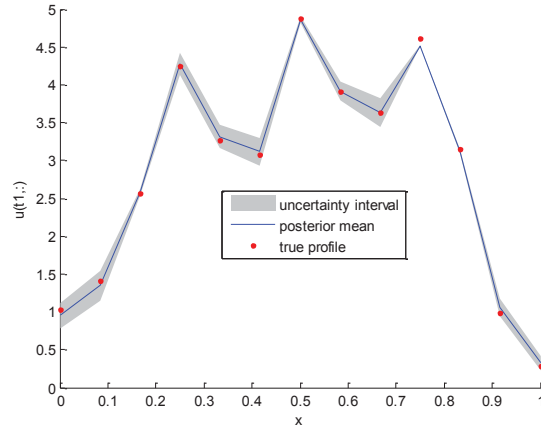


Figure 4.6– Inversion du champ log-diffusivité à partir d’une covariance gaussienne de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure

4.4.5 Méthode de sélection des modes

Nous venons de montrer que le choix des modes à retenir pour l’inversion d’un champ stochastique ne peut pas être dicté uniquement par la fonction de covariance postulée a priori. Il ne peut pas non plus se baser sur une analyse de sensibilité globale a priori parce qu’une telle analyse mettra en évidence l’influence des premiers modes propres (cf. Fontaine et al., 2010). De plus, nous avons montré que la forme de la fonction propre était plus importante que la valeur propre elle-même (encore que celle-ci joue un rôle important dans la régularisation du problème inverse). En vérité, l’intérêt de la décomposition de Karhunen-Loève est qu’elle fournit une base orthonormale dans $L^2(D)$. Aussi, l’inversion du modèle revient à rechercher la solution du problème (le champ log-diffusivité) sous la forme d’une projection sur cette base. Une telle démarche est similaire au problème de l’ajustement d’un nuage de points sur un polynôme. Dans cette problématique, le modélisateur est confronté au problème du choix du degré de polynôme. Un degré trop faible peut conduire à un mauvais ajustement avec des écarts très grands, un degré de polynôme trop grand à un sur-apprentissage. Le risque dans ce dernier cas est d’apprendre le bruit. Un compromis est donc à faire entre le choix du degré de liberté et la réduction de l’écart entre les prédictions du modèle et les observations. Un tel compromis est généralement recherché à l’aide d’un critère de sélection de modèle de type : critère de Schwartz (Schwartz., 1978), connu aussi sous la dénomination de Bayesian Information Content (BIC), ou le critère d’Akaike (Akaike, 1973).

La sélection de modèle s'apprécie au travers de diverses et successives optimisations (moindres carrées, moindres carrées généralisées, . . .). Soit, $\{\xi_k^*\}_{k=1}^K$ un jeu de paramètres optimal au sens du maximum de vraisemblance (maximisant (4.14)) ou au sens du maximum à postérieur (maximisant (4.17)), le champ de log-diffusivité estimé s'écrit (on suppose $\mu_Y = 0$),

$$Y(x) = \sum_{k=1}^K \sqrt{\lambda_k} \xi_k^* \varphi_k(x) \quad (4.21)$$

Une telle décomposition est de type ANOVA du fait de l'orthonormalité des fonctions propres (4.3). Aussi $\lambda_k (\xi_k^*)^2$, représente une variance partielle du champ stochastique. Il est possible de se baser sur la valeur relative de la variance partielle de chaque mode pour détecter les modes insignifiants. Ces derniers peuvent être retirés des modes à inverser, ce qui fournit un nombre plus restreints de modes à inverser à nouveau. Telle est la méthodologie que nous proposons pour effectuer successivement des optimisations à degrés de liberté variables. Le choix optimal des modes à retenir au final est donné par le critère de sélection choisi.

Dans la suite, nous nous basons sur le critère de Schwartz, défini par,

$$BIC(K) = -2 \ln(p(u_{mes} | \xi, \sigma_e^2)) + K \ln(N_{obs}) \quad (4.22)$$

où, nous rappelons que $p(u_{mes} | \xi, \sigma_e^2)$ est la fonction de vraisemblance, K est le nombre paramètres à inverser et N_{obs} le nombre d'observations. La solution finale et optimale $\{\xi_k^{opt}\}_{k=1}^{K^{opt}}$ est celle qui minimise le BIC . Ce dernier est un compromis entre la minimisation de la vraisemblance (erreur) et la minimisation du nombre d'inconnues K . Une fois la sélection effectuée, l'évaluation de la densité à postérieur par les chaînes de Markov fournit l'ensemble des solutions du problème inverse. L'algorithme proposé pour l'inversion d'un champ stochastique est donc le suivant :

1. Choisir une fonction de covariance $C_Y(d) = \left(\frac{\|d\|}{L} \right)$. Se donner σ_e^2 (éventuellement, ce dernier peut être fixe ou recherché durant les phases d'optimisations successives en maximisant la vraisemblance ou la densité à posteriori).
2. Calculer ses valeurs propres et fonctions propres. Déterminer K sur la base du critère $\sum_{i=1}^K \lambda_i > 0.95$ par exemple.

3. Estimer $\xi^* = \arg \max \left(p(u_{mes} | \xi, \sigma_e^2) \right)$
4. Evaluer $BIC(K)$ et les variances partielles du champ stochastique $V_k = \lambda_k (\xi_k^*)^2$.

Sélectionner les $K_1 \{ \lambda_k, \varphi_k \}_{k=1}^{K_1}$ modes tels que : $\frac{\sum_{k=1}^{K_1} V_k}{\sum_{k=1}^K V_k} \geq 0.99$

si $K_1 = K$, poser $K_1 = K - 1$

5. Si $K_1 > 1$, poser $K = K_1$ et aller à 3, sinon stop.

Finalement les K^{opt} modes à retenir pour l'inversion avec les chaines de Markov sont ceux minimisant le BIC .

4.4.6 Application de la méthode de sélection des modes au cas test 2

Dans cette partie, on applique la méthode de sélection des modes sur le cas test 2 en prenant une fonction de covariance gaussienne avec $L = 0.2$ et $\sigma^2 = 1$. Initialement, la décomposition du Karhunen-Loève (4.21) est tronquée aux $K = 10$ premiers modes. On représente sur la figure 4.7, le BIC en fonction du nombre du mode retenu. A la fin de l'algorithme de sélection des modes, le BIC minimal est obtenue quand seulement 2 modes sont gardés (qui sont les modes 4 et 6, voir figure 4.7).

Les résultats de l'inversion avec MCMC en utilisant seulement les modes 4 et 6 retenus sont représentés sur la figure 4.8. On remarque que le champ moyen à posteriori de diffusivité est contenu dans l'intervalle d'incertitude. La forme de ce champ reproduit bien le vrai profil. La figure 4.8 montre une bonne concordance entre les concentrations estimées et les mesures.

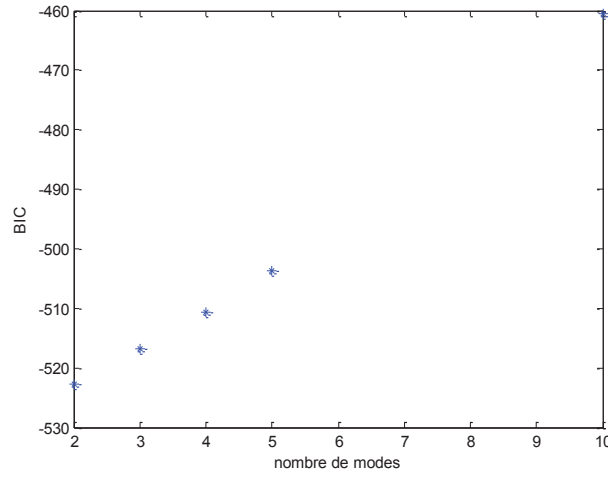
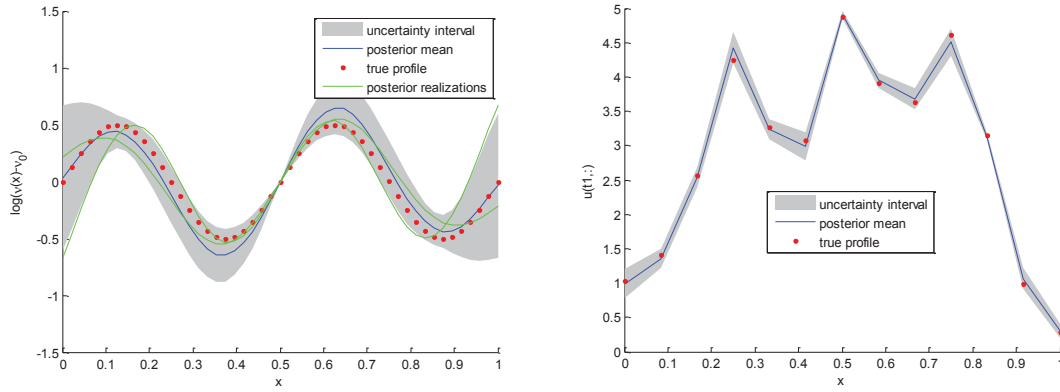


Figure 4.7– profil du BIC en fonction du nombre du mode retenu (cas test 2)


 Figure 4.8– Inversion du champ log-diffusivité à partir des modes retenus par la méthode de sélection. A gauche, les champs trouvés sont comparés au champ réel. A droite, l'incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure

4.5 Application sur un problème d'écoulement 2D

4.5.1 Description du problème

On considère un problème d'écoulement dans un milieu poreux hétérogène, qui satisfait l'équation aux dérivées partielles qui combine la relation de Darcy et l'équation de continuité, définie sur le domaine bidimensionnel $D = [0, a]^2$, avec $a=1000$:

$$\begin{aligned} u(x, y) &= -K(x, y) \nabla p(x, y) \\ \nabla(u) &= q \text{ sur } D \end{aligned} \quad (4.23)$$

avec $K(x, y)$ le champ de conductivité hydraulique hétérogène à déterminer.

Le problème (4.23) est résolu numériquement avec la méthode des éléments finis mixtes hybrides. Une discrétisation uniforme en espace est adoptée avec $\Delta x = \Delta y = 10$. Les observations sont générées artificiellement en résolvant le problème direct avec un champ de log-conductivité $\log(K)$ issu d'un processus gaussien stationnaire de moyenne nulle et de fonction de covariance gaussienne C_Y , tel que :

$$C_Y(x, y) = \sigma^2 \exp \left(-\frac{(x - x')^2}{(2L_1)^2} - \frac{(y - y')^2}{(2L_2)^2} \right) \quad (4.24)$$

avec $L_1 = L_2 = 150$

On considère alors $n=9$ mesures bruitées des variables $p(x, y)$ et $\log(K)$. Les bruits ajoutés sont normalement distribués, $p_1 \sim N(0, \sigma_1^2 I_n)$ avec $\sigma_1^2 = 1.0$ pour $p(x, y)$ et $p_2 \sim N(0, \sigma_2^2 I_n)$ avec $\sigma_2^2 = 0.1$ pour $\log(K)$. On représente sur la figure 4.9 le champ de conductivités utilisée pour générer les mesures, ainsi que l'emplacement des points de mesures, utilisées dans la suite pour l'inversion.

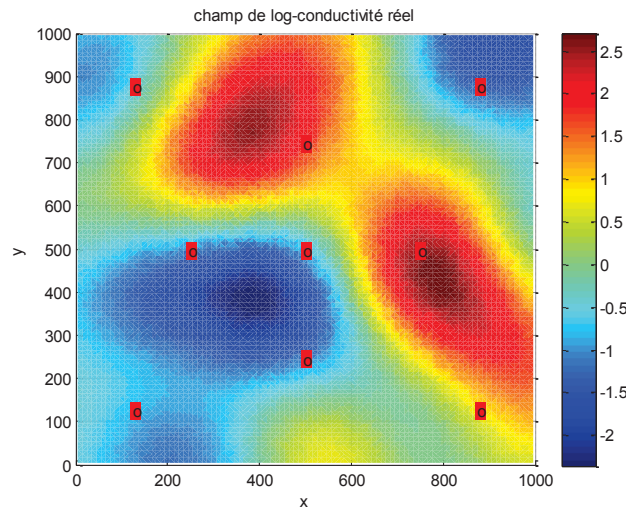


Figure 4.9 –Distribution de champ $\log(K)$ généré par une fonction de covariance gaussienne (équation(4.24)) . Les cercles roses représentent l'emplacement des points de mesures, utilisées dans la suite pour l'inversion

4.5.2 Choix de la fonction de covariance

On se propose de déterminer $K(x, y)$ à partir des observations en postulant que $\log(K(x, y))$ est généré par un processus gaussien de moyenne nulle et de fonction de covariance exponentielle C_Y

$$C_Y(x, y) = \sigma^2 \exp\left(-\frac{(x - x')}{2L_1} - \frac{(y - y')}{2L_2}\right) \quad (4.25)$$

où $L_1 = L_2 = a/6$ et $\sigma^2 = 1$.

Donc, dans ce cas, on utilise une fonction de covariance exponentielle (différente de celle utilisée pour générer le vrai champ de conductivité). Les six premières fonctions propres sont représentées sur la figure 4.10.

La formulation Bayésienne du problème inverse conduit à définir la fonction de vraisemblance suivante,

$$p(u_{mes} | \xi, \sigma_1^2, \sigma_2^2) \propto \exp\left(-\frac{SS_1(\xi)}{2\sigma_1^2} - \frac{SS_2(\xi)}{2\sigma_2^2}\right) \quad (4.26)$$

où, $SS_1(\xi) = \sum_{p=1}^n (p_{mes}(x_p, y_p) - p_{mod}(x_p, y_p))^2$ désigne la somme des écarts quadratiques entre la mesure p_{mes} et la prédiction du modèle p_{mod} (solution numérique de (4.26)) et $SS_2(\xi) = \sum_{p=1}^n (Log(K_{mes}(x_p, y_p)) - Log(K_{mod}(x_p, y_p)))^2$ désigne la somme des écarts quadratiques entre la mesure K_{mes} et la prédiction du modèle K_{mod} (solution numérique de (4.25)). La densité de probabilité à priori des coefficients de la décomposition de Karhunen-Loève est celle définie dans l'équation (4.15).

On suppose que les paramètres σ_1^2, σ_2^2 sont fixes. Ce choix est justifié par le fait qu'on est face à un problème 2D avec peu de données, et que les mesures varient sur des échelles différentes. En vertu du théorème de Bayes (4.7), la densité de probabilité à posteriori s'écrit, alors :

$$p(\xi | p_{mes}, K_{mes}, \sigma_1^2, \sigma_2^2) \propto \exp\left(-\frac{SS_1(\xi)}{2\sigma_1^2} - \frac{SS_2(\xi)}{2\sigma_2^2}\right) \prod_{i=1}^K \exp\left(-\frac{\xi_i^2}{2}\right) \quad (4.27)$$

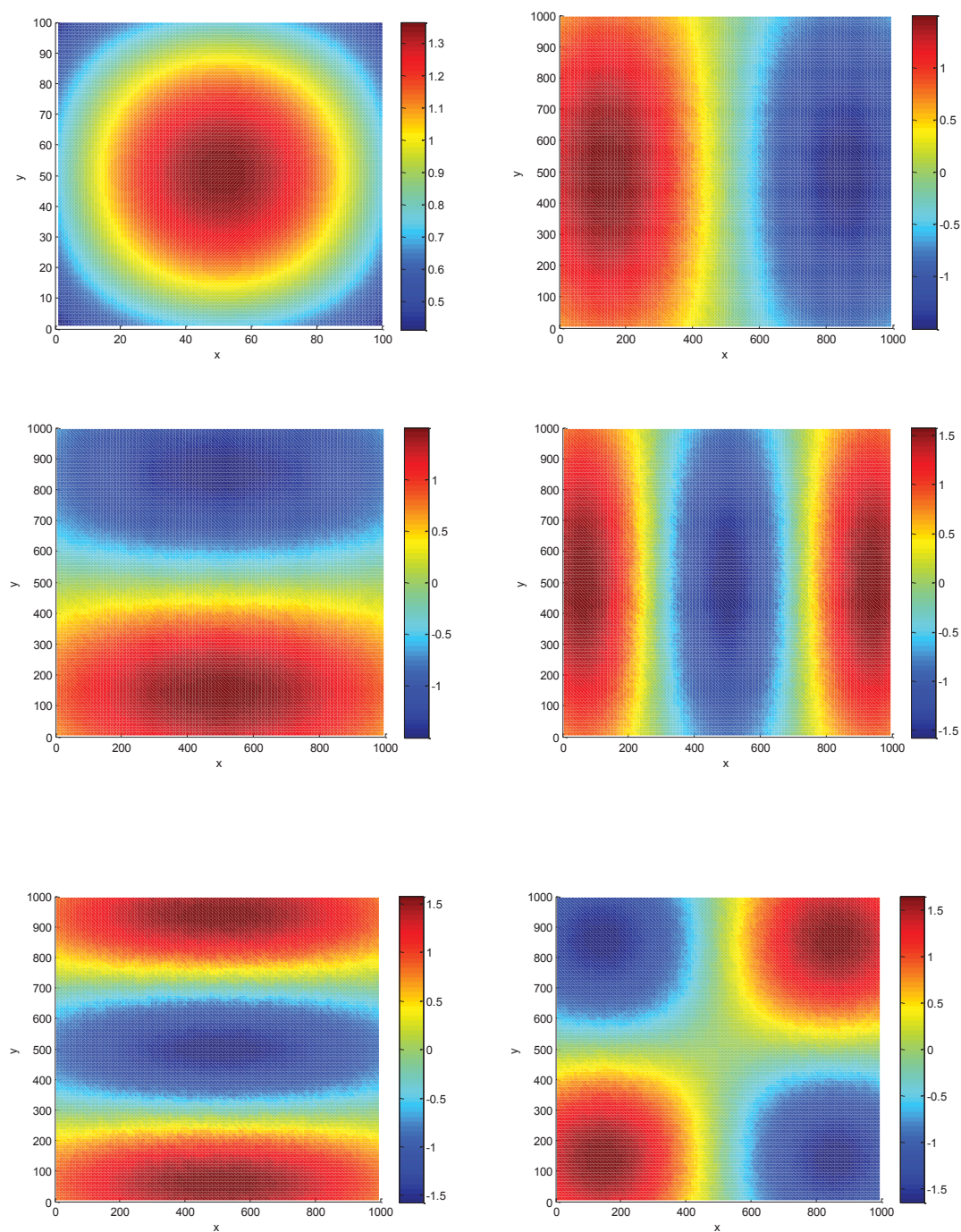


Figure 4.10 – Les six premières fonctions propres la fonction de covariance

4.5.3 Cas test1 : écoulement de base de gauche à droite

On considère dans un premier temps un problème d'écoulement de gauche à droite. Les conditions aux limites imposées sont : flux imposé $q = 20$ sur $x_1 = 0$, et pression imposée $p = 0$ en $x_1 = 1000$. Les limites inférieure et supérieure sont imperméables. Le terme source q est nul. Initialement, la décomposition du Karhunen-Loève (4.25) est tronquée aux $K = 400$ premiers modes. Initialement, l'application de la stratégie de réduction de la dimension, conduit alors à ne considérer que 26 modes, puis 17 à la deuxième itération et ainsi de suite. L'application du critère de sélection basée sur le BIC nous conduit à ne retenir finalement que 13 modes pour l'inversion avec MCMC (Figure 4.11).

Nous représentons sur la figure 4.12, les résultats d'inversion en utilisant les MCMC. On remarque que les points de mesures pour la pression et la conductivité sont contenus dans l'intervalle d'incertitude associé (hormis un point ou deux). Le champ de log-conductivité a posteriori et le champ de pression à posteriori (les plus probables) obtenus par les simulations MCMC sont représentés respectivement sur les figures 4.13 et 4.14. On observe une bonne estimation du champ de pression sur tout le domaine principalement due à la configuration du problème étudié (conditions aux limites). Le champ de log-conductivité est relativement bien estimé hormis dans la région en bas et à droite du domaine (en limite du domaine). Les deux régions à fortes conductivités sont assez bien localisées.

A partir des simulations MCMC, nous traçons sur les figures 4.15, la largeur de l'intervalle d'incertitude pour le champ de pression et pour le champ de log-conductivité. La région estimée la plus incertaine pour le champ de pression se situe en haut et à gauche du domaine. Région où la pression est assez élevée. Pour ce qui est du champ log-conductivité, une plus grande incertitude est associée aux régions où les valeurs du champ sont grandes (en valeur absolue). Notons des canaux de faible incertitude se dessinent sur le champ log-conductivité passant au voisinage des points de mesure (Figure 4.15 à droite).

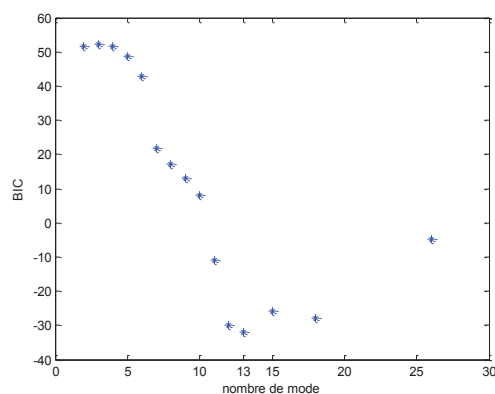


Figure 4.11 – profil du BIC en fonction du nombre du mode retenu (cas test 2). On commence avec 400 modes puis à la première itération il ne reste plus que 26 modes, et ainsi de suite

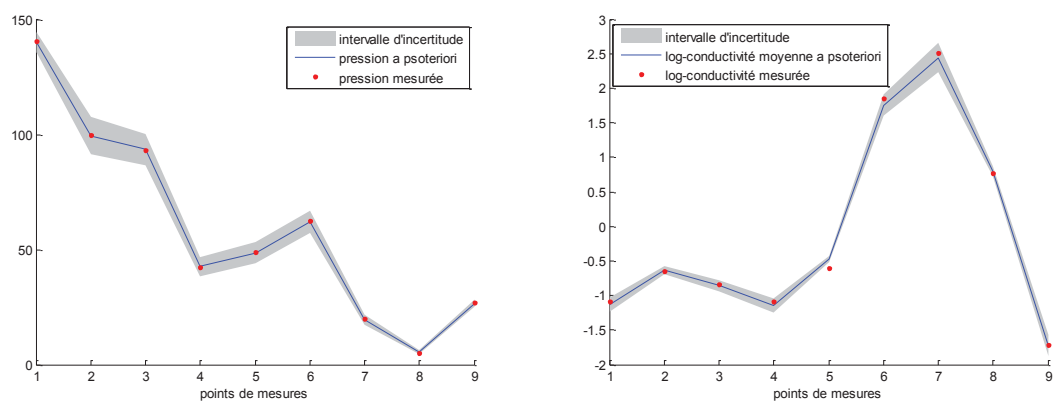


Figure 4.12 – Résultats d'inversion de MCMC. A gauche, les pressions aux différents points de mesure et l'incertitude associée. Adroite, le log-conductivité mesurée et l'intervalle d'incertitude associée

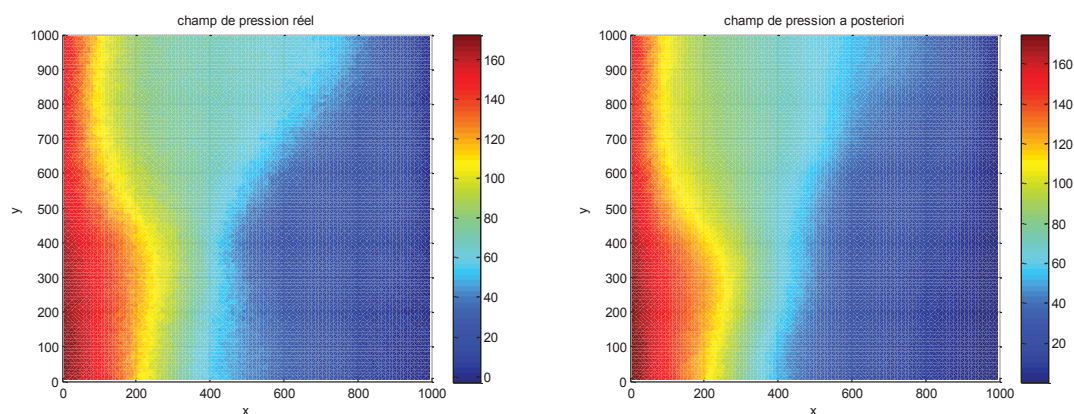


Figure 4.13 – A gauche, le vrai champ de pression. A droite, le champ de pression à posteriori (le plus probable)

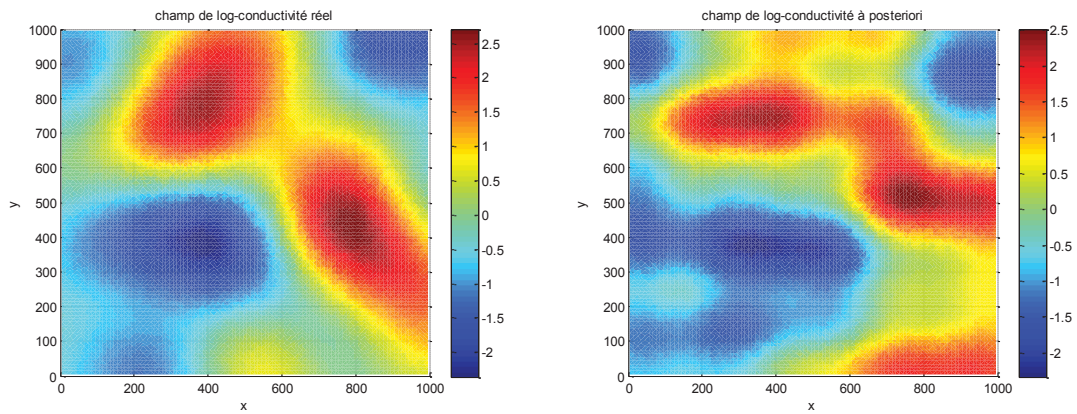


Figure 4.14 – A gauche, le vrai champ de log-conductiv  . A droite, le champ de log conductiv      posteriori (le plus probable)

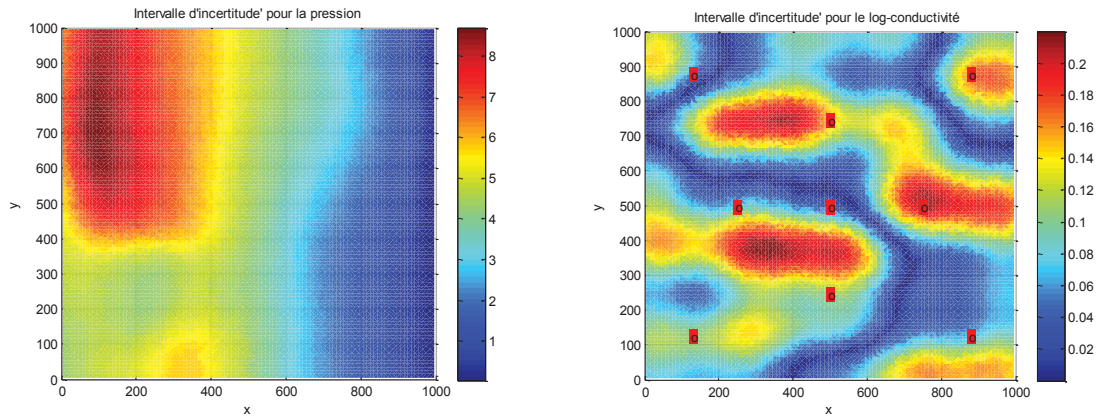


Figure 4.15– A gauche, la largeur de l'intervalle d'incertitude pour la pression et    droite la largeur de l'intervalle d'incertitude pour le log-conductiv   le cas test 1

4.5.4 Cas test2 : essai de pompage

Dans un second temps, on consid  re un essai de pompage. Les conditions aux limites impos  es sont : $p = 100$ sur ∂D . Le terme puit est $q = -20$ au centre du domaine. Comme dans le cas pr  c  dent, la d  composition du Karhunen-Lo  ve (4.25) est initialement tronqu  e aux $K = 400$ premiers modes. A la fin de l'algorithme de s  lection des modes, seulement 15 modes sont retenus, qui sont ensuite estim  s    l'aide des chaines de Markov.

Nous repr  sentons sur les figures 4.16, les r  sultats d'inversion. On remarque que les points de mesures pour la pression et la conductiv   sont contenus dans l'intervalle d'incertitude associ  . Le champ de log-conductiv      posteriori et le champ de pression   

posteriori (les plus probables) obtenus sont représentés respectivement sur les figures 4.17 et 4.18.

Dans cet exemple, les champs estimés sont moins précis que précédemment bien que très satisfaisants. L'algorithme d'inversion arrive à bien localiser la zone de forte conductivité située au voisinage du point de coordonnées (400,800) mais a du mal à localiser précisément la deuxième zone au voisinage de (800,400). D'ailleurs, l'incertitude sur le champ log-conductivité est plus grande dans cette région (figure 4.19 à droite). Nous mettons cela sur le compte des mesures considérées. En effet, les mesures en pression ne sont pas très informatives car pour la plupart localisées dans les zones plates (à faible variation). Seule la mesure n°5 de la pression se situe dans une zone à fort gradient de pression. Un choix plus judicieux des points de mesure augmenterait la qualité de l'inversion.

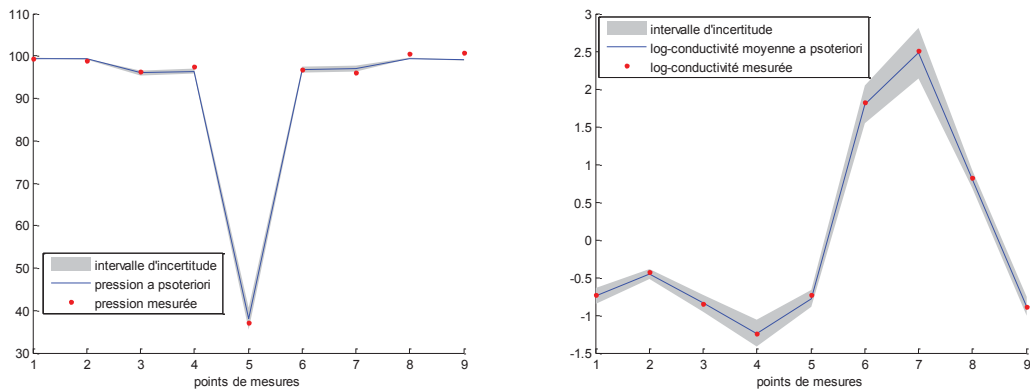


Figure 4.16 – Résultats d'inversion de MCMC. A gauche, les pressions aux différents points de mesure et l'incertitude associée. A droite, le log-conductivité mesurée et l'intervalle d'incertitude associée

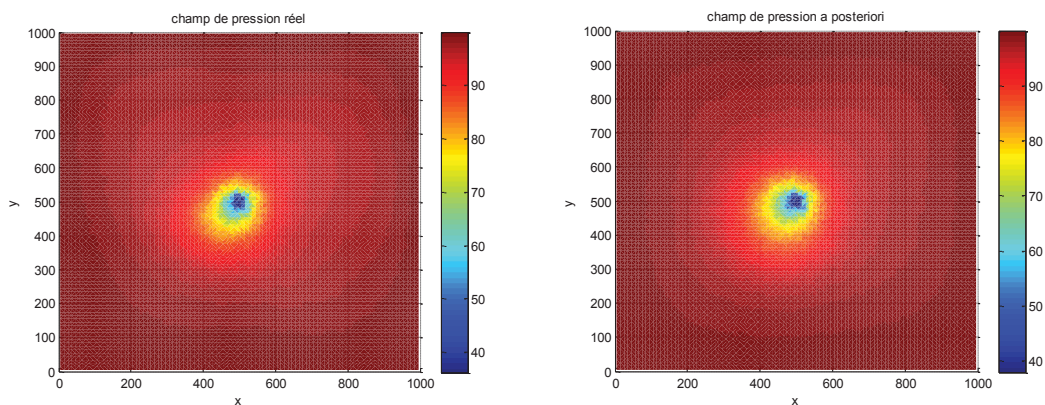


Figure 4.17 – A gauche, le vrai champ de pression. A droite, le champ de pression à posteriori (le plus probable)

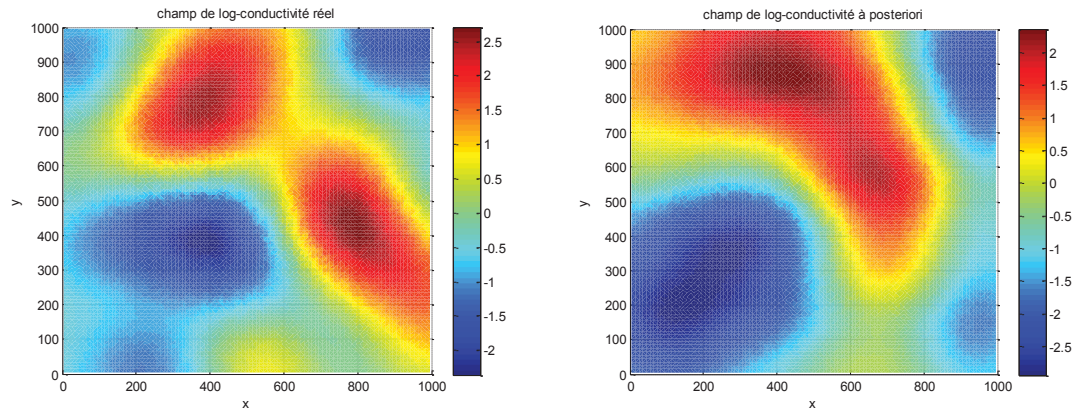


Figure 4.18 – A gauche, le vrai champ de log-conductivité. A droite, le champ de log conductivité à posteriori (le plus probable)

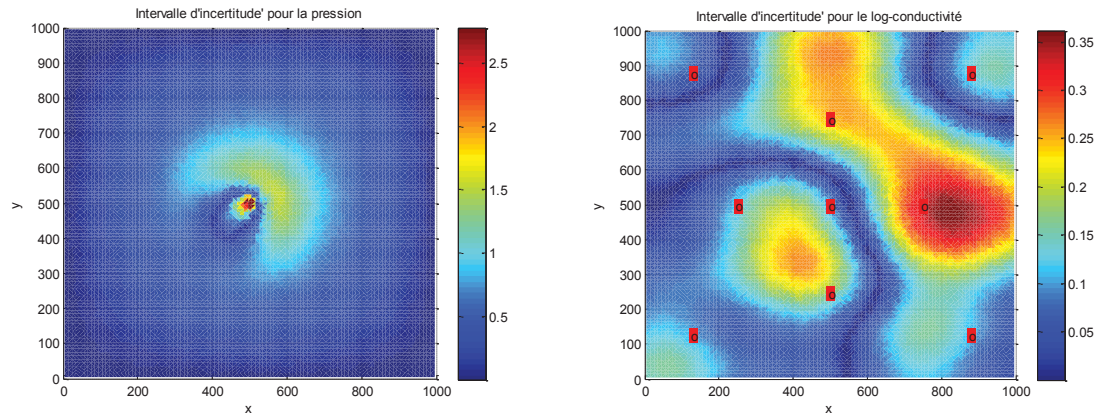


Figure 4.19 – A gauche, la largeur de l'intervalle d'incertitude pour la pression et à droite la largeur de l'intervalle d'incertitude pour le log-conductivité pour le cas test 2

4.6 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre appliqué la méthode de Marzouk et Najm, (2009) pour la détermination d'un champ de conductivité (resp diffusivité) pour des problèmes 1D et 2D. Cette méthode consiste à rechercher la solution du problème à partir d'une décomposition de Karhunen-Loève. Cette décomposition suppose que le logarithme du champ recherché est Gaussien et défini par une fonction de covariance $C_Y(d) = \sigma^2 \rho\left(\frac{\|d\|}{L}\right)$ postulée à priori.

Or, ce postulat conditionne le choix et le nombre d'inconnues pour le problème inverse. Cela conduit à des résultats très variables pour le champ inversé avec les chaînes de Markov. Ainsi, nous proposons d'utiliser un critère de sélection associé à une stratégie d'optimisation afin d'identifier les modes à retenir pour l'inversion. Cela permet de réduire la dimension du problème (le nombre d'inconnues) qui a pour intérêt de i) accélérer la convergence de l'algorithme MCMC, ii) identifier avec une précision acceptable le champ stochastique recherché (la conductivité ou diffusivité). L'application de cette stratégie à des tests numériques en 1D et 2D ont fourni des résultats encourageants.

Toutefois, un problème persiste qui est le choix de la fonction de covariance à priori. En particulier, le choix approprié de la valeur de la variance σ^2 et des longueurs de corrélation L se pose. Bien que nous ne l'ayons pas montré, un choix inapproprié peut conduire à des résultats d'inversion insatisfaisants. Une idée consisterait à introduire ces grandeurs dans les inconnues du problème auxquelles seraient associée une densité de probabilité à priori. L'inconvénient d'une telle approche est qu'à chaque nouveau jeu de valeurs pour L , une décomposition de Karhunen-Loève est nécessaire. En combinaison avec un algorithme MCMC, une telle stratégie serait très couteuse en temps-calcul. Une autre idée serait de chercher les valeurs optimales de (σ^2, L) lors de l'étude préalable de sélection de modèle basée sur le critère de Schwartz. Cette piste sera explorée dans les travaux futurs.

Conclusion générale

Le travail présenté dans ce manuscrit s'articule autour de deux axes fondamentaux : l'analyse de sensibilité globale et la modélisation inverse pour les transferts en milieux poreux. Dans cette thèse, la méthode d'analyse de sensibilité globale, basée sur la décomposition de la variance, est privilégiée car elle est indépendante de la nature du modèle. Dans ce cadre, l'influence des paramètres incertains sur la sortie du modèle est évaluée à travers les indices de Sobol. Pour calculer ces indices, un développement sur le chaos polynomial est adopté. Ces polynômes sont également utilisés à la place du modèle direct pour faciliter la modélisation inverse.

Dans un premier temps, l'utilité de l'analyse de sensibilité globale est démontrée sur deux expériences de laboratoire de transport linéaire en milieux hétérogènes. Les deux expérimentations sont associées à deux régimes d'écoulement différents (permanent et transitoire). L'analyse de sensibilité permet d'étudier l'effet des paramètres liés au milieu (conductivités, dispersivités) et aux conditions aux limites sur la concentration en différentes régions du milieu poreux conduisant ainsi à classer les paramètres selon leurs régions d'influence. Pour ce faire, la concentration au niveau de chaque nœud du maillage est décomposée à l'aide d'un polynôme de chaos. Au travers de cette analyse, nous avons relevé que 1) dans certaines régions du domaine, la concentration est influencée par le débit et la conductivité hydraulique, 2) dans une autre région, la concentration est influencée uniquement par la conductivité et 3) il existe une troisième région où la concentration est très influencée par la dispersivité transversale. Par contre, des paramètres incertains tels que la dispersivité longitudinale n'ont aucune influence sur la concentration. Ces résultats montrent clairement l'intérêt de l'analyse de sensibilité car elle permet de savoir si un paramètre est influent ou pas, à quel endroit et à quel instant. Ceci peut donc être d'un grand intérêt pour la conception des expériences ou la programmation des campagnes de mesures.

La méthode d'analyse de sensibilité globale est ensuite utilisée pour des problèmes de transport réactif en milieu poreux saturé. Pour ces problèmes fortement non linéaires, l'ordre des polynômes de chaos doit être relativement élevé pour construire des métamodèles précis. Ceci nécessite souvent des plans d'expériences et donc des temps de calcul assez conséquents. Pour contourner cette difficulté, nous développons une stratégie efficace permettant de construire des polynômes de chaos creux où seuls sont calculés les coefficients dont la contribution sur la variance du modèle est significative. De même, l'estimation des paramètres est faite d'une façon itérative où les intervalles de variation des paramètres sont progressivement réduits autour de la valeur optimale en utilisant

l'information provenant de l'analyse de sensibilité. L'estimation des paramètres, faite ici avec les algorithmes génétiques, utilise les polynômes de chaos creux à la place du modèle numérique. Cette stratégie est appliquée avec succès à deux problèmes de transport réactif : un problème synthétique de transport avec sorption non linéaire de Freundlich et un problème de transport réactif sur site réel avec échange d'ions (Valocchi, 1981).

Les méthodes développées sont ensuite utilisées pour la caractérisation des paramètres hydrauliques d'un sol à partir d'expériences de drainage effectuées en laboratoire. Dans cette expérience le flux cumulé à la sortie de la colonne ainsi que les pressions et teneur en eau à différentes positions dans la colonne sont mesurées. Le modèle direct est dans ce cas basé sur l'équation non linéaire de Richards qui décrit l'écoulement dans la zone non saturée du sol. Les paramètres incertains dans cette expérience sont la teneur en eau résiduelle θ_r , ainsi que les deux paramètres de forme α et n de van-Genuchten. L'analyse de sensibilité, effectuée avec les polynômes du chaos, permet de montrer que la pression à la surface de la colonne est très sensible aux paramètres de forme α et n sur toute leur gamme de variation, par contre, cette sortie n'est pratiquement pas sensible à θ_r . Le flux cumulé est quant à lui, sensible à α et θ_r , mais insensible à n lorsque $n \geq 4$. Finalement, ces deux sorties sont utilisées dans l'étape d'estimation des paramètres. Cette dernière est effectuée avec une approche bayésienne où la densité de probabilité à posteriori est évaluée en utilisant les chaînes de Markov. Le modèle de Richards est remplacé par les polynômes du chaos pour accélérer les calculs. Les résultats de l'inversion montrent une bonne estimation avec un faible écart type pour les trois paramètres θ_r , α et n .

La dernière partie de la thèse est consacrée aux problèmes inverses quand les inconnues sont des champs stochastiques spatialement distribués. Ces champs, caractérisés par une fonction de covariance, sont typiquement rencontrés lors de la modélisation des transferts dans des milieux poreux à l'échelle régionale (par exemple, le champ de conductivité hydraulique). L'idée est dans ce cas de réduire la dimension du problème et de paramétrer le champ stochastique par le développement de Karhunen-Loève. Ce développement repose sur la décomposition en valeurs et vecteurs propres du champ de conductivité. Ainsi, le problème à champ stochastique est transformé en un problème à variables aléatoires indépendantes. Les résultats de l'estimation de paramètres pour ces champs montrent que la qualité de l'inversion est conditionnée par le choix de la fonction de covariance. Un algorithme permettant de sélectionner un nombre optimal de paramètres est développé afin de réduire le nombre d'inconnues. Couplée avec les MCMC, cette stratégie fournit des premiers résultats encourageants pour des problèmes d'écoulement en 1D et en 2D.

Bibliographie

1. Akaike H., (1973): Information theory as an extension of the maximum likelihood principle. *Second International Symposium on Information Theory*, 267-281
2. Anderson M., (1979): Using models to simulate the movement of contaminants through groundwater systems. *Critical Reviews in Environmental Controls*; 9:97-156.
3. Andrieu, C. and Robert, C. P., (2001): Controlled MCMC for optimal sampling. Technical report, Université Paris Dauphine, Ceremade 0125.
4. Andrieu C. and E. Moulines., (2006): On the ergodicity properties of some adaptive MCMC algorithms. *Annals of Applied Probability*, 16(3):1462-1505.
5. Archer, G.E.B., Saltelli, A., Sobol, I.M., (1997): Sensitivity measures, Anova-like techniques and the use of bootstrap. *Journal of Statistical Computation and Simulation*; 58(2):99–120.
6. Atchade, Y. F. and Rosenthal, J. S., (2005): On adaptive markov chain monte carlo algorithm. *Bernoulli*; 11:815-828.
7. Back T., Fogel D. B. et Michalewicz T., (2000): Evolutionary Computation: Basic algorithms and operators. *Institute of Physics Publishing, United Kingdom*, 339 p.
8. Bayarri M. J., J. O. Berger, R. Paulo, J. Sacks, J. A. Cafeo, J. Cavendish, C. H. Lin et J. Tu., (2007): A framework for validation of computer models. *Technometric*; 49:138-154.
9. Bear J., (1979). Hydraulic of groundwater, *Mc Grew-Hill Series in Water Resources and Environmental Engineering*, New-York.
10. Berveiller, M., (2005). Eléments finis stochastiques: approches intrusive et non intrusive : pour des analyses de fiabilité. Thèse de Doctorat de l'Université BLAISE PASCAL-Clermont II.
11. Beydoun H. et F. Lehmann., (2006). Drainage experiment and parameter estimation in unsaturated porous media. *Comptes Rendus Geosciences*; 338 :180-187.
12. Blatman, G., (2009): Adaptive sparse polynomial chaos expansions for uncertainty propagation and sensitivity analysis. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal - Clermont II.

13. Blatman G. et B. Sudret, (2010): Efficient computation of global sensitivity indices using sparse polynomial chaos expansions. *Reliability Engineering and System Safety*; 95:1216-1229.
14. Blatman, G. and B. Sudret, (2011): Adaptive sparse polynomial chaos expansion based on Least Angle Regression. *J. Comput. Phys.*; (230):2345–2367.
15. Bratley P., B. P. Fox et H. Niederreiter., (1992): Implementation and tests of low-discrepancy sequences. *ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation*; 2:195-213.
16. Brooks R.H., A.T. Corey, (1964): Hydraulic properties of porous media. *Colorado State Univ., Hydrology Paper*(3), 27p
17. Cameron R. H. and W. T. Martin, (1947): The orthogonal development of non-linear functionals in series of Fourier-Hermite functionals. *Annals of Mathematics*; 48(2):385–392.
18. Campolongo F., J. Cariboni et A. Saltelli, (2007) : An effective screening design for sensitivity analysis of large models. *Environmental Modelling and Software*; 22: 1509-1518.
19. Campolongo F., A. Saltelli et J. Cariboni, (2011): From screening to quantitative sensitivity analysis. A unified approach. *Computer Physics Communications* ; 182 :978-988.
20. Carrera J. et S. P. Neuman, (1986) : Estimation of aquifer parameters under transient and steady state conditions : 1. Maximum likelihood method incorporating prior information. *Water Resources Research*; 22:199-210.
21. Carsel R.F., R.S. Parrish, (1988): Developing joint probability distributions of soil water retention characteristics. *Water Resources Research*; 24:755-769.
22. Chaigne B., (2009): Méthodes hiérarchiques pour l'optimisation géométrique de structures rayonnantes. *Thèse de doctorat de l'Université de Nice-Sophia Anipolis*.
23. Chen M., D. Zhang, A. Keller, Z. Lu, (2005): Stochastic analysis of two phase flow in heterogeneous media by combining Karhunen–Loeve expansion and perturbation method. *Water Resources Research*; 41:1-14.
24. Cui T., C. Fox et M. A. O'Sullivan, (2011): Bayesian calibration of a large-scale geothermal reservoir model by a new adaptive delayed acceptance Metropolis Hastings algorithm. *Water Resources Research*; vol. 47, 26p.
25. Cukier R.I., C.M. Fortuin, K.E. Shuler, A.G. Petschek et J.H. Schaibly, (1973): Study of the sensitivity of coupled reaction systems to uncertainties in rate coefficients. I. Theory. *Journal of chemical Physics*; 59 : 3873-3878.

26. Cukier R.I., J.H. Schaibly et K.E. Shuler, (1975): Study of the sensitivity of coupled reaction systems to uncertainties in rate coefficients. III. Analysis of the approximations. *Journal of chemical Physics*; 63: 1140-1149.
27. Cukier R.I., R.I. Levine et K.E. Shuler, (1978) : Nonlinear sensitivity analysis of multiparameter model systems. *Journal of Computational Physics* ; 26 :1-42.
28. Dubus, I.G., Brown, C.D., Beulke, S. (2000). Sensitivity analysis for leaching models used for pesticide registration in Europe. Cranfield University.
29. Efendiev Y., T. Y. Hou et W. Luo, (20006) : Preconditioning Markov chain Monte Carlo simulations using coarse-scale models. *SIAM Journal on Scientific Computing* ; 28 :776-803.
30. Efron, B., T. Hastie, I. Johnstone, and R. Tibshirani (2004). Least angle regression. *Annals of Statistics*; 32, 407-499.
31. Fahs, M. (2007). Modélisation du transport réactif multicomposants en milieu poreux saturé. Thèse de Doctorat. Université Louis Pasteur Strasbourg.
32. Fajraoui, N., Ramasomanana, F., Younes, A., Mara, T. A., Ackerer, P., and Guadagnini, A. (2011). Use of global sensitivity analysis and polynomial chaos expansion for interpretation of nonreactive transport experiments in laboratory-scale porous media, *Water Resources Research*, 47, W02521.
33. Fajraoui, N., Mara T.A., Younes A., and Bouhlila R. (2012): Reactive transport parameter estimation and global sensitivity analysis using sparse polynomial chaos expansion. *Water Air and Soil Pollution* 223:4183–4197.
34. Faure H., (1982) : Discrépance de suites associées à un système de numération (en dimension s). *Acta Arithmetica*; 41:337-351.
35. Fontaine V., M. A. Mamode et T. A. Mara, (2010) : Probabilistic collocation for efficient uncertainty analysis in groundwater flow. In J. Carrera, *XVIII International Conference on Computational Methods in Water Resources*, 2010.
36. Gelman, A and Rubin, DB, (1992): Inference from iterative simulation using multiple sequences, *Statistical Science*; 7:457-511.
37. Gelman A., G. O. Roberts, and W. R. Gilks, (1996): Efficient Metropolis jumping rules. *Bayesian Statistics*; 5:599–607.
38. Ghanem, R. G., et Spanos, P. D., (1991): Stochastic finite elements, a spectral approach. Berlin: *Springer*.
39. Gilks, W. R., Richardson, S. and Spiegelhalter, D. J, (1996): Markov chain Monte Carlo in practice. *Interdisciplinary Statistics, Chapman & Hall*, London.

40. Goldberg, D. E. and Rudnick, M., (1991): Genetic algorithms and the variance of fitness. *Complex System*; 5:265–278.
41. Goldberg, D. E., Korb, B. and Deb, K., (1989): Messy genetic algorithms: Motivation, analysis, and first results. *Complex System*; 3:493–530.
42. Haario H., Saksman et J. Tamminen, (2001): An adaptive Metropolis algorithm. *Bernouilli*; 3:223-242.
43. Haario H., M. Laine, A. Mira et E. Saksman, (2006): DRAM : Efficient adaptive MCMC. *Statistics and Computing* ; 16:339-354.
44. Hadamard, J. (1952): Lectures on Cauchy's problem in linear partial differential equations, New Haven, CT: Yale University Press
45. Hastings H., (1970): Monte Carlo sampling methods using Markov chains and their applications. *Biometrika* ; 57:97-10.
46. Higdon D., J. Gattiker, B. Williams et M. Rightley, (2008): Computer model calibration using high-dimensional output. *Journal of American Statistical Association*; 103:570-583.
47. Homma T, A. Saltelli, (1996): Importance measures in global sensitivity analysis. *Reliability Engineering and System Safety*; 52:1-17.
48. Holland, J. H., (1975): Adaptation in Natural and Artificial Systems, University of Michigan Press, Ann Arbor, MI.
49. Huang S., S. Mahadevan et R. Rebba, (2007) : Collocation-based stochastic finite element analysis for random field problems. *Probabilistic Engineering Mechanics*; 22:194-205.
50. Iman R.L. et W.J. Conover., (1982): A Distribution-Free Approach to Inducing Rank Correlation Among Input Variables. *Communications in Statistics - Simulation and Computation*, 11(3):311-334.
51. Iman R.L. et J.M. Davenport., (1982): Rank correlation plots for use with correlated input variables. *Communications in Statistics - Simulation and Computation*, 11(3):335-360.
52. Iooss B., (2011) : Revue sur l'analyse de sensibilité globale de modèles numériques. *Journal de la Société Française de Statistique*; 152(1):3-25.
53. Iskrev N.. Local identification in DSGE models, (2010):. *Journal of Monetary Economics*; 57:189-202.
54. Isukapalli, S. S. (1999) : Uncertainty Analysis of Transport-Transformation Models. Ph. D. thesis, The State University of New Jersey.

55. Joe S. et F. Y. Kuo, (2008) : Constructing Sobol sequences with better two-dimensional projections. *SIAM Journal on Scientific Computing*; 30:2635-2654.
56. Jones D.R., (2001) : A taxonomy of global optimization methods based on response surfaces. *Journal of Global Optimization* ; 21:345-383.
57. Katz G. E., G. E., B. Berkowitz, A. Guadagnini et M. W. Saaltink, (2010) : Experimental and modeling investigation of multicomponent reactive transport in porous media. *J. Contaminant Hydrology*,.
58. Kennedy M. C. et A. O'Hagan, (2001): Bayesian Calibration of Computer Models. *Journal of the Royal Statistical Society* ; 63:425-464.
59. Kern M., (2002) : Problèmes inverses : *Cours de l'école supérieure d'ingénieurs LEONARD DE VINCI*.
60. Klotz, D., K. P. Seiler, H. Moser, and F. Neumajer, (1980): Dispersivity and velocity relationship from laboratory and field experiments. *Journal of Hydrology*; 45:16-184.
61. Konz M., P. Ackerer, A. Younes, P. Huggenberger et E. Zechner, (2009) : Two-dimensional stable-layered laboratory-scale experiments for testing density-coupled flow models. *Water Resources Research* ; vol. 45, page W02404.
62. Kool, J.B., J.C. Parker, and M.Th. van Genuchten., (1987): Parameter estimation for unsaturated flow and transport models: A review. *Journal of Hydrology*; 91:255–293.
63. Laine M, (2008) : Adaptive MCMC Methods with applications in environmental and geophysical models. PhD thesis, Finnish Meteorological Institute, Finland, 2008.
64. Laloy E., B. Rogiers, J. A. Vrugt, D. Mallants et D. Jacques, (2013): Efficient posterior exploration of a high-dimensional groundwater model from two-stage Markov chain Monte Carlo simulation and polynomial chaos expansion. *Water Resources Research*; 49:2664-2682.
65. Lamboni M., B. Iooss, A.-L. Popelin et F. Gamboa, (2013) : Derivative-based global sensitivity measures : general links with Sobol' indices and numerical tests. *Mathematics and Computers in Simulation*; page to appear, 2013.
66. Leamer E.E., (1990): Let's take the con out of econometrics and sensitivity analysis would help. *Modelling Economic Series. Oxford : Clarendon Press*, 1990.
67. Lehmann, F., and P. Ackerer. 1997. Determining soil hydraulic properties by inverse method in one-dimensional unsaturated flow. *Journal Environmental Quality*; 26:76–81.
68. Le Maître O., M. T. Reagan, H. N. Najm, R. G. Ghanem et O. M. Knio, (2002) : A stochastic projection method for fluid flow : II. Random Process. *Journal of Computational Physics*; 181:9-44.

69. Li W. et A. Cirpka, (2006) : Efficient geostatistical inverse methods for structured and unstructured grids. *Water Resources Research* ; vol. 42, page W06402.
70. Li H. et D. Zhang, (2007) : Probabilistic collocation method for flow in porous media : comparisons with other stochastic methods. *Water Resources Research*; vol. 43, page W09409.
71. Li W., Z. Lu et D. Zhang, (2009) : Stochastic analysis of unsaturated flow with probabilistic collocation method. *Water Resources Research*, vol. 45, page W08425.
72. Loève M., (1977): Probability theory. *Springer-Verlag*, Berlin, 1977.
73. Lu Y. et S. Mohanty, (2001) : Sensitivity analysis of a complex proposed geologic waste disposal system using the Fourier Amplitude Sensitivity method. *Reliability Engineering and System Safety*; 72 :275-291.
74. Lu Z., D. Zhang, (2006): Accurate efficient quantification of uncertainty for flow in heterogeneous reservoirs using the KLME approach. *Society of petroleum engineers Journal*; 11:239-247.
75. Ma X. et N. Zabaras, (2009) : An efficient Bayesian inference approach to inverse problems based on an adaptive sparse grid collocation method. *Inverse Problems*; vol. 25, page 035013.
76. Ma X. et N. Zabaras, (2008). A stabilized stochastic finite element second-order projection method for modeling natural convection in random porous media. *Journal of Computational Physics*; 227 :8448-8471.
77. Majdalani S., (2007) : Modélisation numérique et expérimentale du transport préférentiel de particules dans les sols non saturés. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble.
78. Mara T. A. et O. Rakoto Joseph, (2008): Comparison of some efficient methods to evaluate the main effect of computer model factors. *Journal of Statistical Computation and Simulation*; 78 :167-178
79. Mara T. A. et S. Tarantola, (2008) : Application of global sensitivity analysis of model output to building thermal simulations. *Journal of Building Simulation*; 1 :290-302.
80. Mara T. A., (2009): Extension of the rbd-fast method to the computation of global sensitivity indices. *Reliability Engineering and System Safety*; 94 :1274-1281.
81. Marino S., I. B. Hogue, C. J. Ray et D. E Kirschner, (2008) : A methodology for performing global uncertainty and sensitivity analysis in systems biology. *Journal of Theoretical Biology* ; 254(1) :178-196.

82. Marzouk Y. et H. N Najm, (2009). Dimensionality reduction and polynomial chaos acceleration of Bayesian inference in inverse problems. *Journal of Computational Physics* ; 228(6) :1862-1902.
83. Matthies H. G. et A. Keese, (2005): Galerkin methods for linear and nonlinear elliptic stochastic partial differential equations. *Computer Methods in Applied Mechanics & Engineering* ; pages 1295-1331.
84. McKay M.D., R.J. Beckman et W.J. Conover, (1979): A comparison of three methods for selecting values of input variables in the analysis of output from a computer code. *Technometrics*; 21 :239-245.
85. McMahon, A., Heathcote, J., Carey, M., Erskine, A., Barker, J. (2001). Guidance on assigning values to uncertain parameters in subsurface contaminant fate and transport modelling. *National Groundwater and Contaminant Land Centre Report*, NV/99/38/3.
86. Mercer J., (1909): Functions of positive and negative type and their connection with the theory of integral equations. *Philosophical Transactions of the Royal Society*; 209 :415-446.
87. Metropolis N.A., A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller et E. Teller, (1953): Equations of state calculations by fast computing machines. *Journal of Chemical Physics* ; 21 :1087-1091.
88. Mira A., (2001): On Metropolis-Hastings algorithm with delayed rejection. *Metron* ; 3(4):231-241.
89. Morris M. D., (1991): Factorial sampling plans for preliminary computational experiments. *Technometrics*, 33 :161-174.
90. Nataf A., (1962) : Determination des distributions dont les marges sont données. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*; 225 :42-43.
91. Oakley J. E. et A. O'Hagan, (2004) : Probabilistic sensitivity analysis of complex models : A Bayesian approach. *Journal Royal Statistical Society*; 66 :751 :769.
92. Plischke E., (2010): An effective algorithm for computing global sensitivity indices (EASI). *Reliability Engineering and System Safety*; 95:354-360.
93. Raftery, A.E. and Lewis, S.M., (1992): One long run with diagnostics: Implementation strategies for Markov chain Monte Carlo. *Statistical Science*; 7:493-497.
94. Rosenblatt M., (1952) : Remarks on the multivariate transformation. *Annals of Mathematics and Statistics*; 43 :470-472.
95. Sacks J., W. J. Welch, T. J. Mitchell et H. P. Wynn., (1989): Design and analysis of computer experiments (with discussion). *Statistical Science*; 4 :409-435.

96. Saltelli A., Tarantola S., Chan K., (1999) : A quantitative model-independent method for global sensitivity analysis of model output. *Technometrics*; 41:39-56.
97. Saltelli A., M. Ratto, S. Tarantola et F. Campolongo, (2006): Sensitivity analysis practices: Strategies for model-based inference. *Reliability Engineering and System Safety*; 91 :1109-1125.
98. Saltelli A., (2002): Making best use of model evaluations to compute sensitivity indices. *Computational Physics Communications* ; 145 :280-297.
99. Satterthwaite, F. E., (1959) : Random balance experimentation. *Technometrics* ; 1 :111-137.
100. Schaibly J.H., et K.E. Shuler., (1973): Study of the sensitivity of coupled reaction systems to uncertainties in rate coefficients. II. Applications. *J. Chemical Physics* ; 59 :3879 :3888.
101. Schwartz G., (1978) :Estimating the dimensions of a model. *Annal of Statistics*; 6 :461-464.
102. Shuang-Zhang, T., & Shahrouz, A. (2005): A slope limiting procedure in discontinuous Galerkin finite element method for gas dynamics applications. *International Journal of Numerical Analysis and Modeling*; 2:163–178.
103. Sobol, I.M., (1967): On the distribution of points in a cube and the approximate evaluation of integrals. *Computational Mathematics and Mathematics Physics*; 7:86-112
104. Sobol, I.M., (1993): Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Mathematical Modeling and Computational Experiment*; 1:407-414.
105. Sobol, I. M., (1998): On quasi-Monte Carlo integration. *Mathematics and Computers in Simulation* ; 47 :103-112.
106. Sobol, I.M., (2001): Global Sensitivity indices for nonlinear mathematical models and their Monte Carlo estimates. *Mathematics and Computers in Simulation*; 55:271-280.
107. Sobol, I. M., et S. Kucherenko, (2009) : Derivative based global sensitivity measures and their link with global sensitivity indices. *Mathematics and Computers in Simulation* ; 79:3009-3017.
108. Sobol, I. M., et S. Kucherenko, (2010): A new derivative based importance criterion for groups of variables and its link with the global sensitivity indices. *Computer Physics Communications*; 181 :1212-1217
109. Sudret, B., (2008): Global sensitivity analysis using polynomial chaos expansions. *Reliability Engineering and System Safety* ; 93 :964-979.

110. Tarantola, S., D. Gatelli et T. A. Mara, (2006): Random balance designs for the estimation of first-order sensitivity indices. *Reliability Engineering and System Safety* ; 91 :717-727.
111. Tarantola A., (2005): Inverse problem. theory and methods for model parameter estimation. *SIAM, Philadelphia*, 2005.
112. Tatang, M. A., W. W. Pan, R. G. Prin et G. J. McRae., (1998): An efficient method for parametric uncertainty analysis of numerical geophysical model. *Journal Geophysics Research*; 102:21925-21932.
113. Tissot J. Y. et C. Prieur., (2012): Bias correction for the estimation of sensitivity indices based on random balance designs. *Reliability Engineering and System Safety* ; 107 :205-213.
114. Tryoen, J., (2011): Méthodes de Galerkin stochastiques adaptatives pour la propagation d'incertitudes paramétriques dans les systèmes hyperboliques. Thèse de Doctorat de l'Université Paris-Est.
115. Valocchi A. J., R. L. Street et P. V. Roberts, (1981): Transport of ion exchanging solutes in ground water : chromatographic theory field simulation. *Water Resources Research*; 17:1517-1527.
116. Van Genuchten M.TH., (1980): A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America Journal*; 44:892-898
117. Vogel T., M.TH. Van Genuchten, M. Cislerova, (2001): Effect of shape of the soil hydraulic functions near saturation on variably-saturated flow predictions. *Advances Water Resources.*; 24:133-144.
118. Vrugt J. A., et A. H. Weerts., (2001): Information content of data for identifying soil hydraulic parameters from outow experiments. *Soil Science Society America Journal* ; 65 :19-27.
119. Vrugt J. A. et W. Bouten., (2002): Validity of first-order approximations to describe parameter uncertainty in soil hydrologic models. *Soil Science Society America Journal*; 66:1740-1751.
120. Wan X. et G. E. Karniadakis., (2009): Solving elliptic problems with non-Gaussian spatially dependent random coefficients. *Computational Methods in Applied Mechanical Engineering*; 198 :1985-1995.
121. Wiener N., (1938): The homogeneous chaos. *American Journal of Mathematics*; 60:897-936.
122. Xiu, D., & Karniadakis, G. E. (2003). A new stochastic approach to transient heat conduction modeling with uncertainty. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46(24), 4681–4693.

123. Xu C. et G. Z. Gertner., (2008): A general first-order global sensitivity analysis method. *Reliability Engineering and System Safety*; 93:1060-1071.
124. Younes A., P. Ackerer, F. Lehman, (2006): A new efficient Eulerian-Lagrangian localized adjoint method for solving the advection-dispersion equation on unstructured meshes. *Advances in Water Resources*; 29:1056-1074.
125. Younes A., P. Ackerer, S. Ahmed, R. Bouhlila, (2010): A technique for improving the accuracy of quadrangular Mixed Finite Elements for Darcy's flow on heterogeneous domains. *Computers & Fluids*; 39(2):189-196.
126. Younes A., Mara, T. A., Fajraoui, N., Lehmann, F., Belfort, B., and Beydoun, H. (2013). Use of Global Sensitivity Analysis to Help Assess Unsaturated Soil Hydraulic Parameters. *Vadoze Zone Journal*. Vol. 12 No. 1. doi: 10.2136/vzj2011.0150
127. Zhang D. et Z. Lu., (2004): An efficient high-order perturbation approach for flow in random porous media via Karhunen-Loève and polynomial expansions. *Journal of Computational Physics*; 194:773-794.

Liste des figures

Chapitre 2

Figure 2.1 – Exemple de graphe de Morris. Les facteurs influents sont localisés loin de l’origine.

Figure 2.2 – Procédure itérative pour construire un PC creux (extraite de Blatman, 2009)

Figure 2.3 – Procédure LAR pour construire un PC creux (extraite de Blatman, 2009)

Chapitre 4

Figure 4.1 – Problème de diffusion proposé par Marzouk et Najm, 2009. Il s’agit d’un problème 1D avec conditions limites de type flux nul. Les cercles rouges représentent les termes sources.

Figure 4.2 – Sommes cumulées des valeurs propres normalisées pour différentes fonctions de covariances. Quatre modes suffisent à décrire un champ gaussien de longueur de corrélation $L = 0.3$.

Figure 4.3 – Quelques premières fonctions propres pour les deux fonctions de covariance.

Figure 4.4 – Inversion du champ log-diffusivité à partir d’une covariance gaussienne de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure.

Figure 4.5 – Inversion du champ log-diffusivité à partir d’une covariance exponentielle de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure.

Figure 4.6 – Inversion du champ log-diffusivité à partir d’une covariance gaussienne de longueur de corrélation $L = 0.2$ et pour différentes valeurs de K . En haut, les champs trouvés sont comparés au champ réel. En bas, incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure.

Figure 4.7 – Profil du BIC en fonction du nombre du mode retenu (cas test 2).

Figure 4.8 – Inversion du champ log-diffusivité à partir des modes retenus par la méthode de sélection. A gauche, les champs trouvés sont comparés au champ réel. A droite, l'incertitude prédite pour $u(x, t = 0.01)$ aux différents points de mesure.

Figure 4.9 – Distribution de champ $\log(K)$ généré par une fonction de covariance gaussienne. Les cercles roses représentent l'emplacement des points de mesures, utilisées dans la suite pour l'inversion.

Figure 4.10 – Les six premières fonctions propres la fonction de covariance

Figure 4.11 – Profil du BIC en fonction du nombre du mode retenu (cas test 2). On commence avec 400 modes puis à la première itération il ne reste plus que 26 modes, et ainsi de suite

Figure 4.12 – Résultats d'inversion de MCMC. A gauche, les pressions aux différents points de mesure et l'incertitude associée. Adroite, le log-conductivité mesurée et l'intervalle d'incertitude associée.

Figure 4.13 – A gauche, le vrai champ de pression. A droite, le champ de pression à posteriori (le plus probable)

Figure 4.14 – A gauche, le vrai champ de log-conductivité. A droite, le champ de log conductivité à posteriori (le plus probable)

Figure 4.15 – A gauche, la largeur de l'intervalle d'incertitude pour la pression et à droite la largeur de l'intervalle d'incertitude pour le log-conductivité le cas test 1

Figure 4.16 – Résultats d'inversion de MCMC. A gauche, les pressions aux différents points de mesure et l'incertitude associée. A droite, le log-conductivité mesurée et l'intervalle d'incertitude associée

Figure 4.17 – A gauche, le vrai champ de pression. A droite, le champ de pression à posteriori (le plus probable)

Figure 4.18 – A gauche, le vrai champ de log-conductivité. A droite, le champ de log conductivité à posteriori (le plus probable)

Figure 4.19 – A gauche, la largeur de l'intervalle d'incertitude pour la pression et à droite la largeur de l'intervalle d'incertitude pour le log-conductivité pour le cas test 2

Liste des tableaux

Chapitre 1

Tableau 1.1 : Valeur moyenne des paramètres du modèle de van Genuchten pour 12 classes de sol.

Chapitre 2

Tableau 2. 1 : Polynômes associés à chaque type de variable (extrait de Tryoen,2011)

