

Caractérisation thermophysique de matériaux polymères en utilisant un signal d'excitation pseudo-aléatoire : méthode par conduction.

Laurent IBOS^{1*}, Jean-Luc BODNAR², Yves CANDAU¹

¹Université Paris-Est, CERTES / OSU Efluve, 61 Av. du Général de Gaulle - 94010 Créteil Cedex

²GRESPI/ ECATHERM, UFR Sciences Exactes et Naturelles, BP 1039, 51687 Reims Cedex 02

* (auteur correspondant : ibos@u-pec.fr)

Résumé - Parmi les différentes formes d'excitation peuvent être utilisées pour la caractérisation thermophysique de matériaux, les signaux pseudo-aléatoires sont les moins utilisés. On leur préfère fréquemment des excitations impulsionnelle, en échelon, en créneau de puissance ou bien encore sinusoïdales. De plus, les travaux relatant l'usage d'excitations par signal PRBS pour la détermination de propriétés thermophysiques utilisent soit des sources radiatives, soit une mesure optique, soit les deux [1]. Ce travail concerne donc l'utilisation d'une excitation PRBS en conduction pour la détermination de la conductivité et de la diffusivité thermique de matériaux polymères à l'état solide. Le banc expérimental utilisé (DICO) a été initialement mis au point pour une caractérisation thermophysique utilisant une excitation de forme sinusoïdale [2,3]. Une modification y a été apportée afin de pouvoir utiliser une excitation aléatoire. Le signal d'excitation est généré par un module à effet Peltier. L'échantillon est placé entre deux plaques métalliques au centre desquelles sont insérés des thermocouples. Les signaux temporels de température (face avant et arrière de l'échantillon ; Cf. fig. 1-gauche) sont tout d'abord ajustés par un modèle paramétrique ARMA. Puis, la réponse harmonique du système est reconstruite à partir de ce modèle. La modélisation des transferts thermiques (1D) est réalisée en utilisant la méthode des quadripôles thermiques [4]. L'estimation des propriétés thermophysiques est réalisée par minimisation de l'écart quadratique entre les fonctions de transfert théorique et expérimentale [2,3]. Les réponses obtenues par excitation PRBS et sinusoïdale sont similaires (Cf. fig. 1-droite). De ce fait, l'écart relatif entre les propriétés thermophysiques identifiées à partir de ces deux types d'excitation est inférieur aux incertitudes statistiques. L'excitation PRBS permet de disposer d'une résolution spectrale accrue pour une durée de mesure donnée.

- [1] J.L. Bodnar, S. Brahim, P. Grossel, V. Detalle, Int. J. of Thermophys., 33, 1976-1981, 2012
- [2] A. Boudenne, L. Ibos, E. Géhin, Y. Candau, J. Phys. D: Appl. Phys., 37, 132-139, 2004
- [3] L. Ibos, R. Tlili, A. Boudenne, M. Fois, N. Dujardin, Y. Candau, Actes du congrès SFT 2013
- [4] D. Maillet, A. Degiovanni, J.C. Batsale, C. Moyne, S. Andre, Thermal Quadripoles: Solving the Heat Equation through Integral Transforms, John Wiley & Sons, 2000

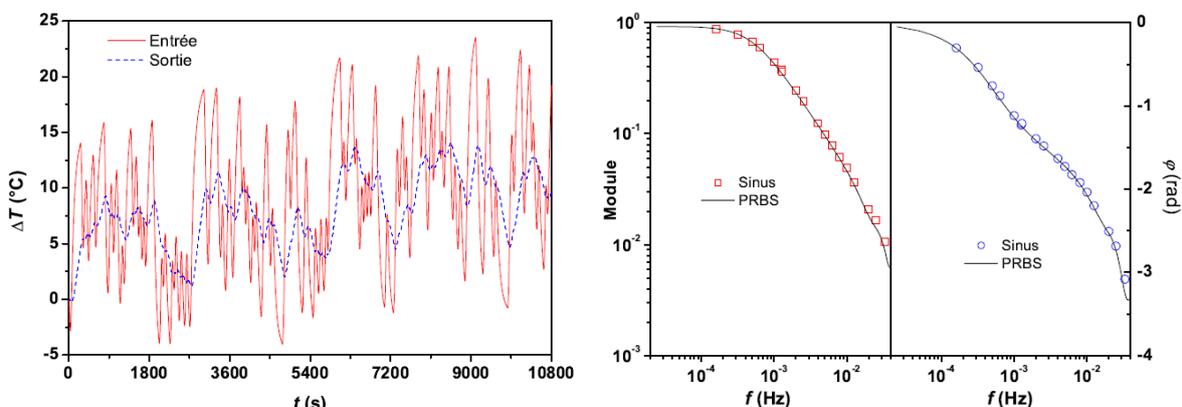


Figure 1 : Exemple de signaux temporels mesurés pour un échantillon d'EVA (à gauche) ; Comparaison des fonctions de transfert obtenues par excitation PRBS et sinusoïdale (à droite)

I. Introduction

Les signaux pseudo-aléatoires (PRBS) sont une des formes d'excitation utilisables pour la caractérisation thermophysique de matériaux [1-4], même si on leur préfère parfois des excitations impulsionnelle, en échelon, en créneau de puissance ou bien encore sinusoïdales. De plus, les travaux relatant l'usage d'excitations par signal PRBS pour la détermination de propriétés thermophysiques utilisent le plus souvent, soit des sources radiatives, soit une mesure optique, soit les deux [1-4]. Ce travail concerne donc l'utilisation d'une excitation PRBS en conduction pour la détermination de la conductivité et de la diffusivité thermique de matériaux polymères à l'état solide. L'article présentera tout d'abord le banc expérimental et la méthode de mesure utilisée. Puis, une comparaison des résultats obtenus en utilisation une excitation sinusoïdale et une excitation par signal pseudo-aléatoire sera présentée.

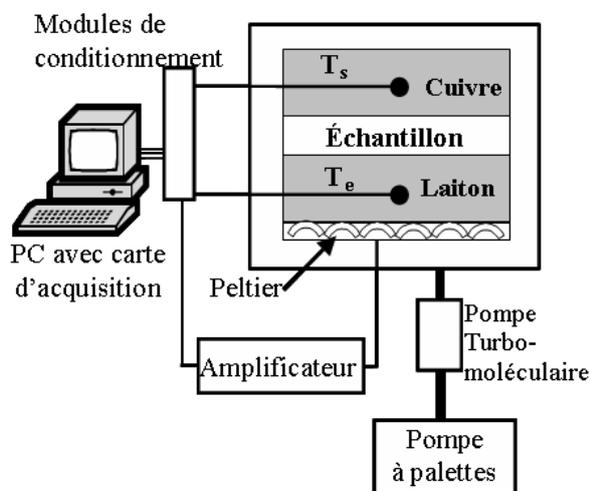


Figure 1 : Synoptique du banc expérimental DICO ; D'après [2]

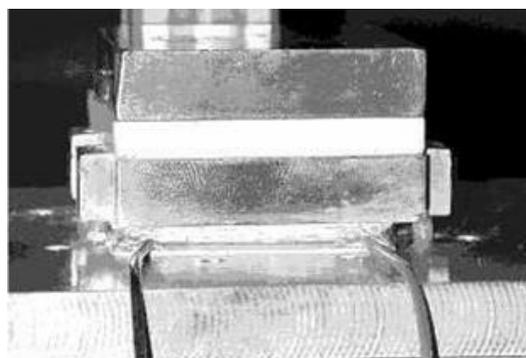


Figure 2 : Vue du porte-échantillon du banc expérimental DICO

II. Instrumentation et méthodes de mesures

II.1. Dispositif DICO

II.1.1 Présentation du banc de mesure

Le banc de mesure de propriétés thermophysiques DICO a été mis en place au CERTES il y a une dizaine d'années [5]. Ce banc de mesure est présenté schématiquement dans la figure 1. Le principe de la mesure repose sur une excitation thermique périodique imposée par un élément à effet Peltier, placé sous le porte-échantillon. L'échantillon, sous forme de plaque à l'état solide, est positionné entre deux plaques métalliques (en Laiton pour la plaque inférieure et en Cuivre pour la plaque supérieure) de section carrée de 44 mm de côté et d'épaisseur égale à 10 mm (Cf. figure 2). Un bon contact thermique entre ces différents éléments est assuré grâce à l'emploi d'une graisse thermoconductrice et les éléments sont maintenus en place grâce à un dispositif de serrage amovible. L'ensemble du porte-échantillon est placé dans une enceinte à vide dans laquelle il est possible d'atteindre un vide secondaire (de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4} mbar). Ceci permet de garantir que les mesures sont réalisées dans des conditions expérimentales constantes. En effet, le fait de travailler à très basse pression permet de minimiser les échanges de chaleur par convection. Enfin, la contre-plaque en Dural supportant le module à effet Peltier est munie d'une circulation de fluide caloporteur.

Récemment, le banc de mesure a été complété par l'adjonction d'un système de régulation de température par circulation de fluide qui permet d'étendre la gamme de mesure de -20 °C à 180 °C [6].

II.1.2 Principe de mesure

Le choix d'une excitation thermique en régime périodique permet d'obtenir au final une caractérisation complète des propriétés de transfert du matériau étudié, car il est possible de déterminer simultanément la conductivité thermique k et la diffusivité thermique a de l'échantillon. Le signal d'excitation (tension V délivrée au module à effet Peltier) est une somme de N (avec $1 \leq N \leq 5$) sinusoïdes de fréquences multiples d'une fréquence fondamentale f_0 et dont les amplitudes V_i et les phases φ_i sont déterminées empiriquement:

$$V(t) = \sum_{i=1}^N V_i \cdot \sin(2\pi f_0 2^{i-1} t + \varphi_i) \quad (1)$$

Les températures de part et d'autre de l'échantillon sont mesurées à l'aide de thermocouples de type K positionnés au centre de chaque plaque métallique. L'ensemble du dispositif est piloté via une application LabView®, commandant une carte d'entrées / sorties analogiques, permettant la génération du signal de commande appliqué à l'entrée de l'amplificateur de puissance alimentant le module à effet Peltier et la mesure des températures des deux thermocouples à une fréquence d'échantillonnage f_e modifiable (de l'ordre de 1 Hz). Le calcul de la transformée de Fourier des températures mesurées $T_e(t)$ (plaque avant en Laiton) et $T_s(t)$ (plaque arrière en Cuivre), permet de déterminer la fonction de transfert expérimentale $\mathbf{H}(f)$:

$$\mathbf{H}(f) = \frac{FFT(T_s(t))}{FFT(T_e(t))} \quad (2)$$

II.1.3 Modélisation thermique du dispositif

L'approche utilisée pour modéliser les transferts thermiques au sein du porte-échantillon est basée sur la méthode des quadripôles thermiques [7]. Cette méthode permet de relier dans le domaine fréquentiel les vecteurs d'état thermique (température, flux en un point) d'un système par des relations matricielles. En faisant l'hypothèse d'un transfert unidirectionnel au sein du porte-échantillon, on peut décomposer celui-ci en différentes couches empilées les unes sur les autres. Un quadripôle $[\mathbf{Q}_i]$ est ensuite associé à chaque couche i . Dans le cas général d'une plaque d'épaisseur e_i , de conductivité thermique k_i et de diffusivité thermique a_i , on obtient le quadripôle:

$$[\mathbf{Q}_i] = \begin{pmatrix} \cosh(q_i e_i) & \frac{\sinh(q_i e_i)}{k_i q_i} \\ \frac{\sinh(q_i e_i)}{k_i q_i} & \cosh(q_i e_i) \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad q_i = \sqrt{\frac{j\omega}{a_i}} = \sqrt{\frac{2j\pi f}{a_i}} \quad (3)$$

Cette formulation est appliquée aux deux plaques métalliques (Laiton et Cuivre) du porte-échantillon ainsi qu'à l'échantillon : $i = \{\text{Lai} ; \text{Cu} ; \text{Ech}\}$. Pour le cas de la couche de graisse thermique, que l'on considérera sans inertie, et des échanges en face arrière, on obtient les quadripôles suivants :

$$[\mathbf{Q}_{Gr}] = \begin{pmatrix} 1 & R_G \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad [\mathbf{Q}_h] = \begin{pmatrix} 1 & \frac{1}{h} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (4)$$

où R_G est la résistance thermique de la couche de graisse et h est le coefficient d'échange global prenant en compte les échanges par convection et par rayonnement. Le quadripôle associé à n couches en série est égal au produit matriciel des quadripôles associés à chaque couche:

$$[Q] = \prod_{i=1}^n [Q_i] \quad (5)$$

Ainsi, la relation entre les vecteurs température-flux aux deux points de mesure, en fonction de la fréquence de modulation f s'écrit:

$$\begin{pmatrix} \tilde{T}_e(f) \\ \tilde{\varphi}_e(f) \end{pmatrix} = [Q_1] \cdot \begin{pmatrix} \tilde{T}_0(f) \\ \tilde{\varphi}_0(f) \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} \tilde{T}_s(f) \\ \tilde{\varphi}_s(f) \end{pmatrix} = [Q_2] \cdot \begin{pmatrix} \tilde{T}_0(f) \\ \tilde{\varphi}_0(f) \end{pmatrix} \quad (6)$$

Où $\varphi_0(f)$ est le flux échangé en face arrière, $T_0(f)$ est la température de l'atmosphère résiduelle dans l'enceinte ($T_0(f) = 0$ car cette température ne varie pas au cours du temps) et :

$$\begin{aligned} [Q_1] &= [Q_{Lai}] \cdot [Q_{Gr}] \cdot [Q_{Ech}] \cdot [Q_{Gr}] \cdot [Q_{Cu}] \cdot [Q_h] \\ [Q_2] &= [Q_{Cu/2}] \cdot [Q_h] \end{aligned} \quad (7)$$

Le quadripôle $[Q_{Lai}]$ est relatif à la moitié de la plaque de Laiton située entre le thermocouple et l'échantillon; de même le quadripôle $[Q_{Cu/2}]$ est relatif à la partie de la plaque de Cuivre entre le thermocouple et la face arrière. Les valeurs des paramètres caractérisant chacune des couches sont données dans le tableau 1. Ces paramètres sont considérés comme fixes et connus *a priori*. Les propriétés thermophysiques de l'échantillon sont ensuite déterminées par identification connaissant son épaisseur. La fonction de transfert théorique est définie par:

$$\tilde{H}(f) = \frac{\tilde{T}_s(f)}{\tilde{T}_e(f)} \quad (8)$$

L'expression détaillée de cette fonction, obtenue à partir des relations (3) à (7), est décrite dans la référence [5]. L'hypothèse de transfert 1D a été vérifiée lors d'une étude précédente [5,8] ; cette étude a par ailleurs permis de valider les valeurs des paramètres h et R_G [8].

Couche	Quadripôle	k (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	a (m ² .s ⁻¹)	e (mm)	R_G (m ² .K.W ⁻¹)	h (W.m ⁻² .K ⁻¹)
Laiton	$[Q_{Lai}]$	100	0.33×10^{-4}	5	-	-
Cuivre	$[Q_{Cu}]$	389	1.14×10^{-4}	10	-	-
Cuivre	$[Q_{Cu/2}]$	389	1.14×10^{-4}	5	-	-
Graisse	$[Q_{Gr}]$	-	-	-	117×10^{-6}	-
Coeff. d'échange	$[Q_h]$	-	-	-	-	5

Tableau 1 : Valeurs des paramètres caractéristiques de chaque couche

II.2. Utilisation de signaux d'excitation aléatoires

II.2.1 Signal PRBS

Le principe des méthodes utilisant des signaux d'excitation aléatoires repose sur l'excitation du matériau à caractériser à l'aide d'un signal dont le spectre s'approche de celui d'un bruit blanc. Ensuite, la réponse du matériau est analysée de manière à reconstruire la réponse impulsionnelle et/ou la réponse harmonique de l'échantillon étudié [1]. Le signal d'excitation

choisi est un signal binaire pseudo-aléatoire (dit signal PRBS). Ce type de signal est construit à partir d'un polynôme primitif, soit de manière logicielle, soit de manière matérielle, à partir de bascules D. Un extrait de la séquence PRBS utilisée lors de cette étude est présenté sur la figure 3 ; la séquence complète a une durée de 40560 s, pour la période d'échantillonnage choisie: $\tau_e = 2\text{s}$.

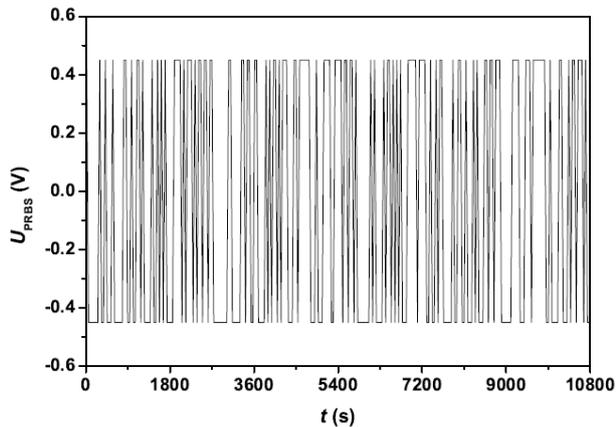


Figure 3 : Exemple de séquence PRBS

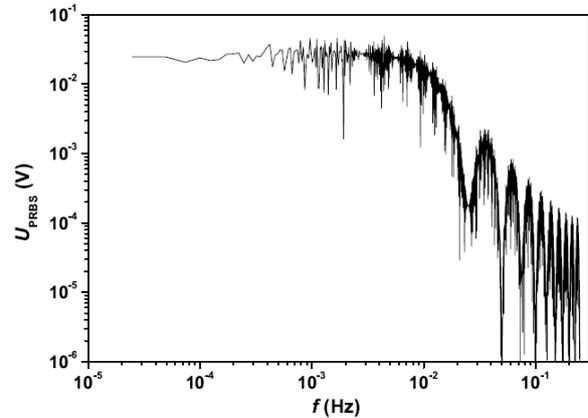


Figure 4 : Spectre d'un signal PRBS

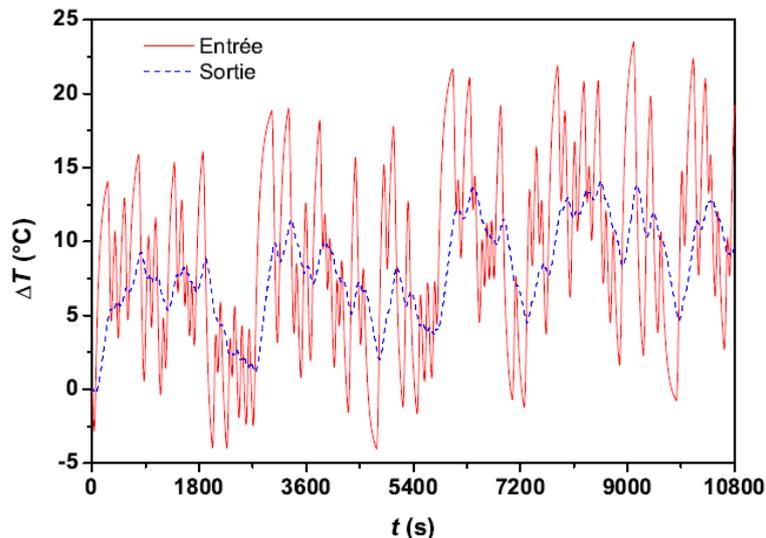


Figure 5 : Exemple de signaux d'entrée et de sortie mesurés suite à une excitation PRBS

Le spectre de ce signal est présenté sur la figure 4. On remarque que ce signal possède un spectre semblable à celui d'un bruit blanc pour $f < 0.01\text{ Hz}$. Par ailleurs, lorsque la fréquence augmente, on constate la présence de plusieurs lobes; la fréquence maximale dans le premier lobe est ici égale à $f_{\text{MAX}} = 0.025\text{ Hz}$. Ce type de signal a été utilisé pour exciter un échantillon d'Ethylène-Vinyl-Acétate (EVA) en utilisant le dispositif DICO en remplaçant tout simplement le signal d'excitation harmonique par une séquence PRBS, le reste du dispositif étant inchangé. Les signaux mesurés sur les plaques avant (entrée) et arrière (sortie) du porte-échantillon sont présentés sur la figure 5.

II.2.2 Méthode d'analyse

La méthode d'analyse utilisée repose sur une analyse paramétrique, qui consiste à reconstruire la réponse du matériau à l'aide d'un modèle de comportement paramétrique. Le choix s'est porté sur un modèle de type ARMA. Un système ARMA est défini par une fonction de transfert en z , $G(z)$:

$$G(z) = \sum_{m=0}^q b_m z^{-m} / \left(1 - \sum_{n=1}^p a_n z^{-n} \right) \quad (9)$$

L'équation de récurrence correspondant à ce modèle s'écrit:

$$s_i = \sum_{n=1}^p a_n s_{i-n} + \sum_{m=0}^q b_m e_{i-m} \quad (10)$$

La sortie du système s_i à l'instant d'échantillonnage $i\tau_e$ est liée linéairement aux états précédents d'entrée et de sortie du système. Ce type de système peut donc être assimilé à un filtre linéaire. Les coefficients a_n et b_m du filtre doivent être déterminés à partir des mesures.

II.2.3 Calcul des paramètres et de la fonction de transfert thermique

Le problème à résoudre pour le calcul des paramètres a_n et b_m , peut être formulé de manière matricielle:

$$\mathbf{A}\mathbf{X} = \mathbf{B} \quad (11)$$

avec:

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & \cdots & 0 & e_1 & 0 & \cdots & 0 \\ s_1 & 0 & \cdots & 0 & e_2 & e_1 & \cdots & 0 \\ s_2 & s_1 & \cdots & 0 & e_3 & e_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ s_{k-1} & s_{k-2} & \cdots & s_{k-p} & e_k & e_{k-1} & \cdots & e_{k-q} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ s_{N-1} & s_{N-2} & \cdots & s_{N-p} & e_N & e_{N-1} & \cdots & e_{N-q} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{B} = \begin{bmatrix} s_1 \\ s_2 \\ s_3 \\ \vdots \\ s_k \\ \vdots \\ s_N \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \mathbf{X} = \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ a_p \\ b_0 \\ b_1 \\ \vdots \\ b_q \end{bmatrix} \quad (12)$$

où N est le nombre d'échantillons des signaux d'entrée \mathbf{e} et \mathbf{s} . Le calcul du vecteur de paramètres \mathbf{X} est donc effectué de la manière suivante:

$$\mathbf{X} = (\mathbf{A}^\top \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^\top \mathbf{B} \quad (13)$$

Une fois les paramètres du modèle paramétrique déterminés, le calcul de la fonction de transfert thermique s'effectue en modifiant l'équation (9) sachant que:

$$z = e^{j\omega\tau_e} = e^{2j\pi f\tau_e} \quad (14)$$

On obtient donc:

$$G(f) = \sum_{m=0}^q b_m e^{-2j\pi m f\tau_e} / \left(1 - \sum_{n=1}^p a_n e^{-2j\pi n f\tau_e} \right) \quad (15)$$

Le calcul de la fonction de transfert \mathbf{G} ne peut être effectué que pour des fréquences f comprises entre 0 et $f_e/2$, où f_e est la fréquence d'échantillonnage.

III. Comparaison des méthodes aléatoire et périodique

III.1. Comparaison des fonctions de transfert

La figure 6 présente une comparaison des modules et phases des fonctions de transfert thermique obtenues par méthode aléatoire et par méthode périodique. Pour la méthode

aléatoire, le nombre de paramètres du modèle ARMA a été fixé à $p = 7$ et $q = 27$ et la fréquence d'échantillonnage utilisée est $f_e = 0.5$ Hz. On remarque un bon accord entre les deux méthodes d'excitation choisies.

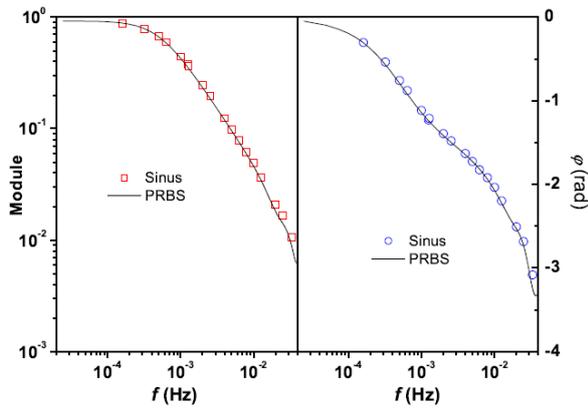


Figure 6 : Comparaison des fonctions de transfert thermique obtenues par excitation aléatoire et méthode périodique pour un échantillon d'EVA

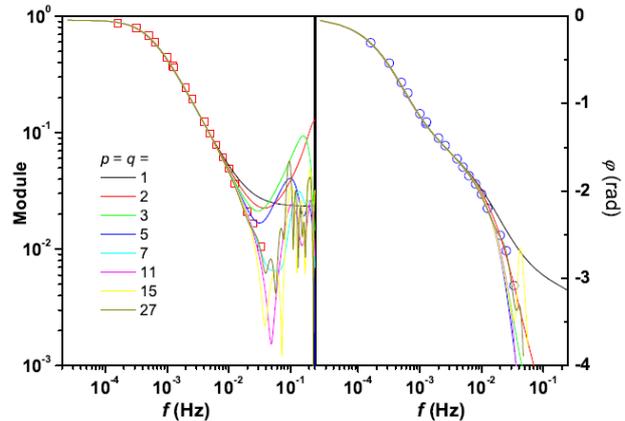


Figure 7 : Différentes fonctions de transfert thermiques obtenues par excitation aléatoire pour différentes valeurs p et q

Pour des fréquences inférieures à 0.01 Hz, le choix du nombre de paramètres a peu d'influence sur le module et la phase de la fonction de transfert obtenus. Ce résultat est illustré sur la figure 7, pour quelques valeurs de p et q (avec à chaque fois $p = q$). Une étude plus systématique de l'influence des valeurs p et q du nombre de paramètres a été entreprise. Cette étude est détaillée dans la référence [9]. Pour chaque couple de valeurs p et q ($1 \leq p \leq 32$ et $1 \leq q \leq 32$), différents résidus ont été calculés :

- entre sortie mesurée et sortie du modèle calculée en utilisant les entrées et sorties précédentes mesurées;
- entre sortie mesurée et sortie du modèle calculée en utilisant les entrées mesurées et les sorties précédentes estimées;
- entre les modules des fonctions de transfert obtenues par les deux méthodes;
- entre les phases des fonctions de transfert obtenues par les deux méthodes.

A partir de ces résultats, il est apparu que le choix des valeurs $p = 7$ et $q = 27$ permettait d'obtenir les estimations les plus proches des mesures réalisées par excitation sinusoïdale (résidus faibles) et de conserver des pôles de la fonction de transfert de module assez faible. Il conviendra de vérifier si ces valeurs sont utilisables quelque soit l'échantillon étudié pour une séquence PRBS donnée.

Enfin, on notera également que les amplitudes de température imposées au dispositif sont importantes (environ 25 °C), de manière à conserver des amplitudes de température mesurables sur la face arrière du porte-échantillon. Une étude plus approfondie doit être entreprise pour déterminer l'amplitude minimale du signal d'excitation permettant de conserver une amplitude du signal de sortie suffisante pour réaliser une estimation correcte de la fonction de transfert sur tout le domaine de fréquence.

III.2. Comparaison des estimations de propriétés thermophysiques

L'identification de la conductivité et de la diffusivité thermique est réalisée par minimisation de l'écart quadratique entre les parties réelles et imaginaires des fonctions de transfert thermique expérimentale et théorique, ce qui revient à minimiser le critère S , en utilisant l'algorithme de Levenberg-Marquardt [10] :

$$S(\hat{\theta}) = \sum_{i=1}^N \left[\left(\Re(H(f_i)) - \Re(\tilde{H}(f_i)) \right)^2 + \left(\Im(H(f_i)) - \Im(\tilde{H}(f_i)) \right)^2 \right] \quad (16)$$

Les incertitudes sur les paramètres identifiés (vecteur θ) sont calculées à partir des valeurs des éléments diagonaux de la matrice de variance-covariance. La procédure d'identification et de calcul des incertitudes statistiques ainsi qu'une étude de sensibilité sont détaillées dans les références [5,8,9]. Les valeurs estimées de k et a sont reportées dans le tableau 2. L'utilisation des mesures obtenues à partir d'une excitation PRBS permet d'obtenir des incertitudes statiques réduites par rapport à la méthode périodique.

	k	a
	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	$\times 10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$
Excitation sinusoïdale	0.272 (0.009)	0.168 (0.064)
Excitation aléatoire	0.265 (0.001)	0.120 (0.001)

Tableau 2 : Comparaison des estimations de conductivité et diffusivité thermique par excitation périodique et aléatoire pour un échantillon d'EVA ; incertitudes statistiques entre parenthèses

IV. Conclusion

Le principal intérêt de l'utilisation de la méthode aléatoire dans ce cas réside dans le fait que la résolution en fréquence de la fonction de transfert est beaucoup plus élevée qu'avec la méthode périodique et que cette fonction de transfert est obtenue en une seule expérience. Pour comparaison, quatre expériences différentes ont été nécessaires pour obtenir la fonction de transfert à l'aide de la méthode périodique, ce qui conduit au final à des durées de mesure du même ordre de grandeur. En revanche, un mauvais choix du nombre de paramètres du modèle ARMA provoque l'obtention de modules et phases de la fonction de transfert très différentes dans le domaine des hautes fréquences. Pour le matériau testé, les résultats obtenus par les deux méthodes sont en accord, aux incertitudes de mesure près. Les valeurs obtenues sont proches des valeurs attendues pour ce matériau : $k = 0.271 \pm 0.004 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et $a = (0.117 \pm 0.005) \times 10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ [9].

Références

- [1] J.L. Bodnar, S. Brahim, P. Grossel, V. Detalle, Int. J. of Thermophys., 33, 1976-1981, 2012
- [2] R.G. Gatto : Estimation of Instantaneous Heart Rate Using Video Infrared Thermography and ARMA Models, PHD, University of Illinois at Chicago, 2009
- [3] J.L. Battaglia, O. Cois, L. Puigsegur, A. Oustaloup, International Journal of Heat and Mass Transfer, 44, 2671-2680, 2001
- [4] S. Grieu, O. Faugeroux, A. Traoré, B. Claudet, J.L. Bodnar, Energy and Buildings, 43, 543-554, 2011
- [5] A. Boudenne, L. Ibos, E. Géhin, Y. Candau, J. Phys. D: Appl. Phys., 37, 132-139, 2004
- [6] L. Ibos, R. Tlili, A. Boudenne, M. Fois, N. Dujardin, Y. Candau, Actes du congrès SFT 2013
- [7] D. Maillat, A. Degiovanni, J.C. Batsale, C. Moyne, S. Andre, Thermal Quadrupoles: Solving the Heat Equation through Integral Transforms, John Wiley & Sons, 2000
- [8] A. Boudenne, L. Ibos, Y. Candau, Meas. Sci. Technol, 17, 1870-1876, 2006
- [9] L. Ibos, Métrologie thermique appliquée à la caractérisation thermophysique de composites et au contrôle de structures par thermographie, mémoire d'HDR, Université Paris-Est, décembre 2012
- [10] D. Marquardt, An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters, SIAM Journal Applied Math., 11, 431-441, 1963