

Étude et optimisation d'un procédé de collage grâce à la méthodologie de Taguchi

M. Billiau-Loreau, C. Porte et A. Delacroix

CNAM, Laboratoire de Chimie Industrielle, 292 rue Saint Martin, 75141 Paris Cedex 03, France

As part of a study of a fiber gluing process, the influence of four variables (fiber treatment: 2 levels; treatment duration, solvent addition type, solvent addition ratio: 4 levels) were linked to the following responses: gluing strength, gluing regularity and liquid film propensity to form drops on fiber. With Taguchi methodology, the responses and their dispersions have been studied through Signal/Noise ratios, carrying out only 16 experiments (128 were needed for the complete design). Results lead us to process optimization.

L'étude d'un stockage provisoire d'une fibre rigide sur un support conique, a conduit, dans un premier temps, à formuler une colle comprenant des charges solides [1,2]. La formulation d'une colle à base de charges liquides s'est ensuite imposé : l'application d'une colle comportant uniquement des charges liquides réduit les problèmes liés à la sédimentation des charges et au nettoyage du système d'enduction. Comme nous souhaitons étudier le collage et en optimiser les performances, les différents facteurs susceptibles d'influencer le procédé ont été répertoriés. Il s'agit de l'enduction (vitesse, moyens, ...) ainsi que des caractéristiques de la fibre (rugosité, nature, diamètre, ...) et de la colle (type de résine, proportion de résine, types et proportions de solvant ajouté, tension de surface, ...).

Du fait du procédé, certains facteurs sont maintenus à des niveaux constants (paramètres concernant l'enduction, diamètre de la fibre, ...). Par contre, l'état de la fibre en surface (rugosité et nature) peut être modifié ainsi que la composition de la colle. Nous avons donc conduit notre étude du procédé en alliant surface de la fibre et formulation. Afin d'organiser nos essais et d'en diminuer le nombre, nous avons choisi d'utiliser la méthodologie de Taguchi [3,4].

Création et réalisation du plan d'expérience

Définition des réponses

Pour caractériser chaque essai, nous mesurons trois paramètres : il s'agit de la force et de la régularité de collage, obtenues lors du pelage de la fibre, et du temps de goutte.

Un pelage à 90° de la fibre est effectué, 24 heures après enduction et bobinage de la fibre.

La force de collage, F , est obtenue en moyennant la force de pelage durant une traction.

L'écart entre le maximum et le minimum de la force de pelage observé pendant une traction caractérise la régularité de collage, R .

Le temps de gouttes, G , correspond à la durée au bout de laquelle le film liquide de colle déposé sur la fibre se transforme en gouttes. Pour le mesurer, la fibre est plongée dans la colle puis très doucement retirée. Dès que le contact entre la fibre et la colle est rompu, un chronomètre est déclenché. Il est arrêté dès que des gouttes sont visibles sur la fibre.

Pour chaque essai, chaque réponse est constituée d'un échantillon de 10 mesures. À ces réponses, nous avons adjoint les rapports Signal/Bruit (Tab. I).

Le but de l'étude est de trouver des conditions opératoires telles que :

- la force de collage soit comprise entre 1 et 1,5 gf (Eq. 1) ; l'unité du système international correspondant à la force est le newton et la correspondance des unités est la suivante : $1 \text{ gf} = 9,80665 \times 10^{-3} \text{ N}$, soit $1 \text{ gf} \approx 0,01 \text{ N}$;

$$1,0 \text{ gf} < F < 1,5 \text{ gf} \quad (1)$$

- la régularité du collage soit optimale, c'est-à-dire présentant un écart de force de collage minimal ;
- le temps de goutte soit maximal ;
- les rapports Signal/Bruit soient les plus élevés possibles, (prédominance de la performance sur les bruits du procédé).

Tableau I. Rapport Signal/Bruit

Réponse	Rapport Signal/Bruit associé
F	$S/N(F) = 10 \cdot \log \left(\left(\frac{m_F}{s_F} \right)^2 - \frac{1}{n_F} \right)$
R	$S/N(R) = -10 \cdot \log (m_R^2 + s_R^2)$
G	$S/N(G) = -10 \cdot \log \left(\frac{1}{m_G^2} \left(1 + 3 \cdot \frac{s_G^2}{m_G^2} \right) \right)$

Notations

- Y réponse étudiée,
- $S/N(Y)$ rapport Signal/Bruit associé à la réponse Y ,
- m_Y moyenne des répétitions de mesures de la réponse Y ,
- s_Y écart type des répétitions de mesures de la réponse Y ,
- n_Y nombre de répétitions de mesures de la réponse Y .

Définition des variables

Nous avons choisi d'agir par deux moyens principaux : le traitement de la surface de la fibre et la dilution de la colle. Le traitement de la fibre sera variable en **type** et en **durée**. La colle sera diluée par **ajout** de solvant en **proportions** variées.

En ce qui concerne le traitement, correspondant à la variable T , nous avons choisi deux types de traitement en fonction de leur agressivité : le mélange sulfochromique, noté Sulfo., et un mélange de solvants: diméthyladipate, diméthylglutarate et diméthylsuccinate, noté Solv.

Il a été constaté que la fibre est fortement dégradée pour une exposition au mélange sulfochromique d'une durée de 5 minutes. En conséquence, nous avons limité à 2 minutes le temps de séjour dans le bain de traitement. La durée du traitement, variable D , sera fixée selon les niveaux suivants : 30, 60, 90 et 120 secondes.

Pour choisir les solvants à additionner à la colle, le constat suivant a été fait : la colle, une résine silicone dans du xylène, est faiblement polaire et le revêtement de la fibre est polaire. De plus, la polarité de la fibre risque de s'accroître après le traitement par le mélange sulfochromique. Comme un collage est meilleur [5] lorsque les polarités de l'adhésif et du substrat sont semblables, la polarité globale de la colle a été modifiée par ajout de solvant. Les solvants, variable A , ont été sélectionnés en fonction de leur moment dipolaire croissant : le *n*-heptane, le propanol-2, l'acétone et la tétraméthylurée (Tab. II). L'analyse en composantes principales de Carlson [6] effectuée sur 103 solvants, montre que le comportement des solvants est gouverné par la polarité et la polarisabilité. La première composante principale, définie comme étant la polarité, dépend essentiellement du moment dipolaire et de la constante diélectrique. La seconde composante, la polarisabilité, est fonction de la densité et de l'indice de réfraction. Les solvants choisis ont été reportés dans le plan défini par ces deux composantes (Fig. 1) d'après les scores calculés par Carlson [6]. Leur répartition dans ce plan montre leur grande diversité.

Pour que le mélange final soit homogène, il convient qu'il présente une seule phase. Or, lorsque la proportion de solvant augmente, au-delà de 20 % en volume, il y a parfois formation d'une seconde phase ce qui en est le cas avec la tétraméthylurée. Par conséquent, la proportion maximale de solvant ajoutée sera limitée à cette teneur et la variable P prendra les modalités suivantes : 5, 10, 15 et 20 %.

Création du plan

Nous nous sommes proposé un modèle symbolique d'étude simple tenant compte uniquement des effets des variables étudiées (Eq. 2).

$$Y = I + T + D + A + P \quad (2)$$

où T est la variable correspondant au type de traitement,
 D la durée du traitement,
 A la nature du solvant ajouté et
 P la proportion volumique de solvant ajouté.

Le nombre de paramètres indépendants est fonction du modèle linéaire et du nombre de niveaux des variables, ce qui correspond à $p = 11$. La condition d'orthogonalité du plan, nous impose un nombre d'expériences multiple de 16.

Tableau II. Choix des solvants

Solvants choisis	Moment dipolaire [Debye]	Scores (d'après Carlson [7])	
		t_1	t_2
<i>n</i> -Heptane (Hep.)	0 *	-3,71	-0,92
Propanol-2 (Pro.)	1,58 *	0,90	-2,16
Acétone (Acé.)	2,88 *	0,85	-2,44
Tétraméthylurée (TMU)	3,47 **	1,47	0,74

* : Handbook of chemistry and physics, 76th edition, 1995-96.

** : Merck Index, 9th edition, 1976.

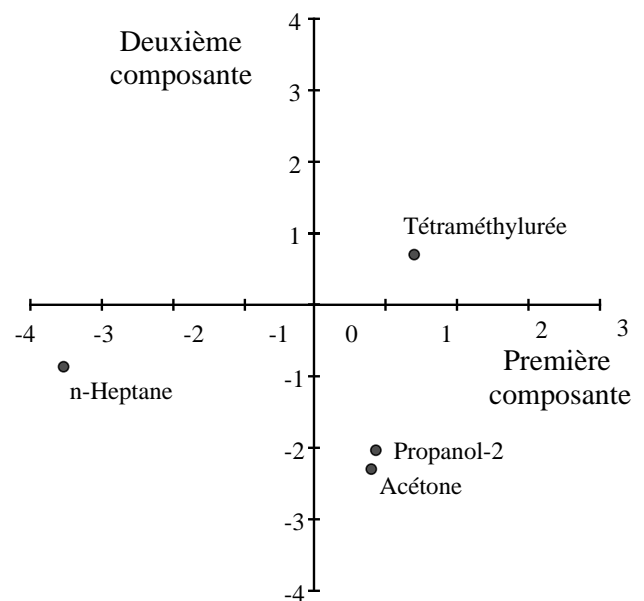


Figure 1. Répartition des solvants dans le plan des deux premières composantes principales de l'ACP de Carlson [6].

En conséquence, le plan comporte un nombre minimal de 16 expériences. Nous avons retenu le plan de taille minimale. Pour le générer, nous avons adopté le plan proposé par la table $L_{16}(4^5)$, (soit 5 variables à quatre niveaux) [3]. La première colonne a été attribuée à la variable T . Afin d'adapter cette colonne pour une variable à quatre niveaux à une variable à deux niveaux, nous avons effectué la modification suivante : les niveaux 3 et 4 sont renommés respectivement niveaux 1 et 2. Les variables D , P et A sont distribuées selon les colonnes 2, 3 et 4.

Les essais correspondant au plan d'expérience (Fig. 2, Tab. III) ont été effectués de manière aléatoire afin que les bruits extérieurs ou intérieurs au procédé ne perturbent pas le plan. Les valeurs reportées dans le tableau III, correspondent aux résultats de 10 essais pour chacune des expériences.

Tableau III. Plan d'expérience réalisé

Essai	T	D	P	A	F	S/N(F)	R	S/N(R)	G	S/N(G)
1	Sulfo.	30	5	Hep.	0,41 gf	-2,35 dB	1,45 gf	-5,05 dB	2,5 s	6,36 dB
2	Sulfo.	60	10	Pro.	1,05 gf	2,72 dB	2,65 gf	-9,69 dB	3,5 s	10,19 dB
3	Sulfo.	90	15	TMU	1,31 gf	5,67 dB	2,28 gf	-7,62 dB	3,0 s	7,97 dB
4	Sulfo.	120	20	Acé.	1,37 gf	5,64 dB	1,68 gf	-5,40 dB	7,4 s	14,25 dB
5	Solv.	30	10	TMU	0,89 gf	6,23 dB	1,62 gf	-4,46 dB	2,6 s	7,12 dB
6	Solv.	60	5	Acé.	1,61 gf	5,87 dB	2,05 gf	-6,94 dB	3,6 s	10,32 dB
7	Solv.	90	20	Hep.	1,88 gf	9,26 dB	2,26 gf	-7,48 dB	8,8 s	12,55 dB
8	Solv.	120	15	Pro.	2,53 gf	8,96 dB	3,63 gf	-11,53 dB	7,0 s	15,58 dB
9	Sulfo.	30	15	Acé.	0,90 gf	4,03 dB	2,12 gf	-7,37 dB	2,9 s	8,52 dB
10	Sulfo.	60	20	TMU	0,65 gf	3,65 dB	1,12 gf	-1,91 dB	2,3 s	5,93 dB
11	Sulfo.	90	5	Pro.	1,32 gf	3,06 dB	2,20 gf	-7,40 dB	4,2 s	10,27 dB
12	Sulfo.	120	10	Hep.	0,96 gf	2,86 dB	2,06 gf	-7,74 dB	3,9 s	9,15 dB
13	Solv.	30	20	Pro.	1,64 gf	6,92 dB	2,49 gf	-8,37 dB	6,4 s	13,33 dB
14	Solv.	60	15	Hep.	1,47 gf	8,84 dB	2,45 gf	-8,29 dB	6,9 s	16,27 dB
15	Solv.	90	10	Acé.	1,26 gf	2,34 dB	2,34 gf	-8,38 dB	9,2 s	16,89 dB
16	Solv.	120	5	TMU	1,14 gf	5,56 dB	2,42 gf	-7,98 dB	2,8 s	7,88 dB

Interprétation

Estimation des modèles prédictifs

Au modèle symbolique de l'équation (2), nous avons associé un modèle prédictif (Eq. 3, Tab. IV). Les effets des variables sont estimés par l'équation (4).

$$Y = m + [t_1 \ t_2] \cdot [T] + [d_1 \ d_2 \ d_3 \ d_4] \cdot [D] + [a_1 \ a_2 \ a_3 \ a_4] \cdot [A] + [p_1 \ p_2 \ p_3 \ p_4] \cdot [P] \quad (3)$$

où m est la moyenne de la réponse sur tous les essais, t_i , d_i , a_i , p_i l'effet de la variable considérée au niveau i et $[T]$, $[D]$, $[A]$, $[P]$ la matrice de niveau de la variable.

avec par exemple,

$$a_i = \Sigma Y_{(\text{niveau de } A = i)} / \text{nombre de niveaux de } A \quad (4)$$

Les effets significatifs ont été déterminés par analyse de la variance (Tab. V).

Validation

Afin de valider ces modèles, nous avons choisi des points de vérification les plus adaptés au procédé. Comme critère de choix, nous avons retenu l'inégalité 1 (condition sur la force de collage) et la comparaison des résultats estimés aux valeurs moyennes de tous les essais (Eqs. (5) à (9)). Le sens de l'inégalité est donné par l'objectif poursuivi sur chaque réponse.

$$R < m_R \quad (5)$$

$$G > m_G \quad (6)$$

$$S/N(F) > m_{S/N(F)} \quad (7)$$

$$S/N(R) > m_{S/N(R)} \quad (8)$$

$$S/N(G) > m_{S/N(G)} \quad (9)$$

où m_Y est la moyenne des résultats pour la réponse Y .

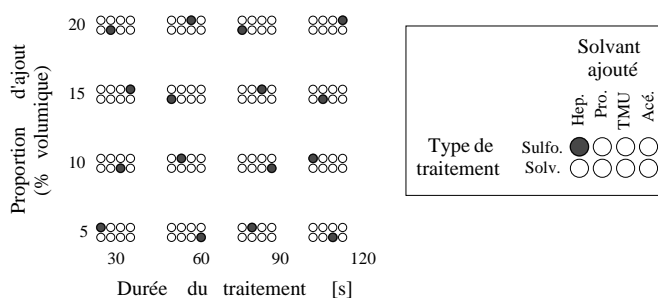


Figure 2. Plan d'expérience réalisé ramené au plan complet.

Nous avons calculé chacun des 128 essais potentiels en appliquant les modèles prédictifs, en tenant compte des effets significatifs uniquement. Nous avons appliqué aux réponses théoriques ainsi estimées les inégalités 1 et 5 à 9. Au regard de l'écart type sur la réponse estimée, nous n'aboutissons pas à une conclusion probante pour la première inégalité. Par contre, 16 essais vérifient simultanément les inéquations 5 à 9. Ce sont les essais caractérisés par les combinaisons de niveaux des variables suivantes : $T = 2$ (traitement par le bain de solvants), $A = 1$ ou 4 (l'heptane ou l'acétone en ajout) et $P = 1$ ou 4 (proportion d'ajout de 5 ou 20 %), la durée du traitement étant indifférente.

En utilisant les modèles prédictifs complets (avec les effets non significatifs au sens de l'analyse de la variance), 4 essais vérifient en même temps les inéquations 1 et 5 à 9 ; ils correspondent aux combinaisons suivantes : $T1D4A1P4$, $T2D1A1P4$, $T2D1A4P4$ et $T2D2A1P4$. Or, nous avons remarqué que, après un traitement de 2 minutes par le mélange sulfochromique, soit $T1D4$, le diamètre de la fibre est diminué fortement : le revêtement externe de la fibre a été ôté et met en cause l'intégrité des propriétés de la fibre. En conséquence, nous délaissions l'essai $T1D4A1P4$.

Les 3 essais restants correspondant à : *T2D1A1P4*, *T2D1A4P4* et *T2D2A1P4* ont été effectués et les résultats expérimentaux comparés avec les valeurs théoriques (Tab. VI).

Deux cas présentent une divergence entre la valeur estimée par le modèle prédictif et la valeur expérimentale.

- Pour le premier essai de vérification, la valeur réelle du rapport Signal/Bruit de la force de collage est très proche de la limite haute de l'intervalle (10,89 dB pour 10,82 dB estimé).
- Le troisième essai de vérification a un rapport Signal/Bruit très faible. Ceci s'explique par les conditions

opératoires : pendant les mesures, de fortes perturbations électrostatiques ont rendu la ligne de base très fluctuante. La force de collage moyenne sur dix essais n'en a pas été affectée, ce qui n'est pas le cas de la dispersion des essais. Il en résulte un rapport Signal/Bruit très inférieur à la valeur attendue.

En tenant compte de l'écart type, les estimations des différents modèles prédictifs sont cohérentes avec les résultats réels obtenus, ce qui valide les modèles.

Détermination des meilleures conditions opératoires

Ces essais de vérification sont globalement meilleurs que les essais déjà effectués. En appliquant les inégalités 1 et 5 à 9 sur les essais réalisés (ceux du plan et les essais de vérification) nous avons sélectionné les deux meilleurs essais : l'essai 4 (*T1D4A4P4*, Tab. III) et l'essai de vérification 1 (*T2D1A1P4*, Tab. VI). Or, nous avons constaté la modification des propriétés de la fibre avec un traitement de deux minutes par le mélange sulfochromique, soit l'essai 4. Par conséquent, dans la perspective d'une mise à l'échelle industrielle, les meilleures conditions opératoires, *T2D1A1P4*, consistent à nettoyer la fibre avec le bain de solvants pendant 30 secondes et à utiliser une colle additionnée d'heptane dans une proportion volumique de 20 %.

Conclusion

Devant un procédé complexe, nous voulions déterminer les conditions optimales de fonctionnement en un nombre restreint d'expériences. L'étude du procédé a permis de dégager quatre variables, discrètes et continues pouvant prendre de deux à quatre modalités.

Tableau IV. Coefficients estimés du modèle prédictif complet.

Coef.	F	S/N(F)	R	S/N(R)	G	S/N(G)
<i>m</i>	1,27 gf	4,95 dB	2,18 gf	-7,23 dB	4,8 s	10,79 dB
<i>t</i> ₁	-0,27 gf	-1,79 dB	-0,23 gf	0,71 dB	-1,1 s	-1,71 dB
<i>t</i> ₂	0,27 gf	1,79 dB	0,23 gf	-0,71 dB	1,1 s	1,71 dB
<i>d</i> ₁	-0,31 gf	-1,24 dB	-0,26 gf	0,92 dB	-1,2 s	-1,96 dB
<i>d</i> ₂	-0,07 gf	0,32 dB	-0,11 gf	0,52 dB	-0,7 s	-0,11 dB
<i>d</i> ₃	0,17 gf	0,13 dB	0,09 gf	-0,49 dB	1,5 s	1,13 dB
<i>d</i> ₄	0,21 gf	0,79 dB	0,28 gf	-0,95 dB	0,4 s	0,94 dB
<i>a</i> ₁	-0,09 gf	-0,30 dB	-0,12 gf	0,09 dB	0,7 s	0,29 dB
<i>a</i> ₂	0,37 gf	0,47 dB	0,56 gf	-2,02 dB	0,5 s	1,55 dB
<i>a</i> ₃	-0,27 gf	0,33 dB	-0,32 gf	1,74 dB	-2,1 s	-3,56 dB
<i>a</i> ₄	-0,01 gf	-0,50 dB	-0,12 gf	0,19 dB	0,9 s	1,72 dB
<i>p</i> ₁	-0,15 gf	-1,91 dB	-0,15 gf	0,39 dB	-1,5 s	-2,08 dB
<i>p</i> ₂	-0,23 gf	-1,41 dB	-0,01 gf	-0,34 dB	0,0 s	0,05 dB
<i>p</i> ₃	0,28 gf	1,93 dB	0,44 gf	-1,47 dB	0,2 s	1,30 dB
<i>p</i> ₄	0,10 gf	1,39 dB	-0,28 gf	1,42 dB	1,3 s	0,73 dB

Tableau V. Analyse de la variance : détermination des variables significatives.

Variable	F	S/N(F)	R	S/N(R)	G	S/N(G)
T	significative	significative	significative	—	significative	significative
D	—	—	—	—	—	—
A	—	—	significative	significative	significative	significative
P	—	—	significative	—	—	—

Tableau VI. Validation des modèles à l'aide de trois points expérimentaux : valeurs expérimentales, valeurs estimées accompagnées de leurs écarts types.

Vérif.	T	D	P	A	F	S/N(F)	R	S/N(R)	G	S/N(G)
1	Solv.	30	20	Hep.	1,31 gf (1,54 ± 0,69)	10,89 dB (6,74 ± 4,08)	2,14 gf (2,01 ± 1,56)	-7,70 dB (-7,14 ± 4,29)	7,9 s (6,6 ± 5,2)	17,35 dB (12,79 ± 7,78)
2	Solv.	30	20	Acé.	1,73 gf (1,54 ± 0,69)	6,26 dB (6,74 ± 4,08)	2,41 gf (2,01 ± 1,56)	-9,03 dB (-7,04 ± 4,29)	10,0 s (6,8 ± 5,2)	17,11 dB (14,22 ± 7,78)
3	Solv.	60	20	Hep.	1,23 gf (1,54 ± 0,69)	-0,87 dB (6,74 ± 4,08)	2,26 gf (2,01 ± 1,56)	-8,28 dB (-7,14 ± 4,29)	10,3 s (6,6 ± 5,2)	18,72 dB (12,79 ± 7,78)

L'utilisation de la méthodologie de Taguchi a alors permis de créer un plan d'expériences fractionnaire économique, 16 expériences contre 128 pour le plan complet, qui a donné accès à des modèles prédictifs, validés expérimentalement. La performance de chacune des réponses étudiées a été prise en compte par les rapports Signal/Bruit.

La détermination des conditions optimales a été effectuée par comparaison des résultats avec chaque résultat moyen obtenu. De toutes les combinaisons de niveaux du plan complet, la meilleure configuration en a été extraite tout en respectant les contraintes opératoires et industrielles.

Remerciements

Cette étude a été réalisée grâce au soutien de l'ANVAR (Dossier J 96 09 120 QJJ) et de la Société Filotex - Alcatel France.

Références

1. Billiau-Loreau, M.; Delacroix, A.; Porte, C.; Rageot, A. Utilisation de méthodes d'optimisation pour la formulation d'une colle *Double Liaison-Phys., Chim. Econ. Peint. Adhes.* **1996**, 43(481), 13-23.
2. Billiau-Loreau, M.; Delacroix, A.; Porte, C. Optimisation de la formulation d'une colle par les plans d'expériences, résultats non encore publiés.
3. Alexis, J. Pratique industrielle de la méthode Taguchi - les plans d'expériences, AFNOR, Paris, 1995.
4. Pillet, M. Introduction aux plans d'expériences par la méthode Taguchi, Les éditions d'organisation, Paris, 1992.
5. Huntsberger, J. R. The mechanisms of adhesion, in Patrick R.L. Ed., Treatise on adhesion and adhesives (Vol. 1: theory), Marcel Dekker Inc, New York, 1967.
6. Carlson R., Design and optimization in organic synthesis, Data handling in science and technology - volume 8. Elsevier, Amsterdam, 1992.