

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



UNIVERSITÉ SALAH BOUBNIDER, CONSTANTINE 03
FACULTÉ DE GÉNIE DES PROCÉDÉS
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHARMACEUTIQUE

N° d'ordre :.... ..

Série :.... ..

Mémoire

PRÉSENTÉ POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE MASTER
EN GÉNIE DES PROCÉDÉS
OPTION : GÉNIE PHARMACEUTIQUE

ADSORPTION DU ROUGE DE CRESOL SUR CHARBON ACTIF, ETUDE EXPERIMENTALE, MODELISATION PAR PLAN D'EXPERIENCE EN UTILISANT DESIGN EXPERT

Présenté par :

HAMNI ZEINEB
MENNOUCHI SELSABIL
BOUMEZAAR DARINE
BOULMAALI RIHAM

Dirigé par :

Mme SAMAI Messaouda
MCB

Année universitaire
2024-2025
Session : juin

ABSTRACT

Abstract

This work aims to study the adsorption of Cresol Red and the active ingredient, which is Paracetamol, from an aqueous solution. The work is divided into four parts:

The first part is the study of the adsorption of RC and PA focused on the parameters influencing adsorption by calculating the elimination rate (R%). The study revealed that adsorption is of low efficiency for an initial pollutant concentration below 4 mg/l; the initial amount of the three adsorbents used is less than 0,1 g; the contact time between the adsorbate and the adsorbent is less than 25 minutes. On the other hand, under optimal conditions, a very high yield is observed for the RC equal to 88,22% at 120 minutes for an initial concentration of 6 mg/l and 0,1 g of activated carbon. In addition, the PA reacts in the same manner under the previous condition with a yield of 98,6%.

In the second part, we will focus only on the Langmuir and Freundlich models that correspond to our experimental results, for the adsorption of RC and PA with activated carbon, bentonite, and kaolin, the obtained Adj R² values are respectively 0,998-0,989-0,979 for RC and 0,997-0,995-0,994 for PA. The isotherms follow the Freundlich law on bentonite and the Langmuir law on activated carbon and kaolin.

The third part represents the kinetic model that studies the adsorption phenomenon of RC and PA. According to the results, it is observed that the pseudo-first-order kinetics is the best model for studying the adsorption kinetics of the dye and paracetamol on the three chosen adsorbents with an Adj R² equal to 0,998-0,976-0,975 respectively for CHA, BENT, and KAL for the dye and 0,970-0,995-0,972 for the paracetamol.

In the fourth part, we relied on BOX-BEHNKHEEN experimental design modeling to determine the optimal factors for the following: contact time; amount of activated carbon; initial concentration of the dye. After modeling, we found that the best yields are between 75 and 120 minutes for the contact time. For the initial amount of activated carbon, the yield values are significant above 0,1 g, and in the case of the initial concentration of RC, an increase is observed starting from 6 mg/l.

Keywords: Adsorption, Cresol Red, Paracetamol, activated carbon, bentonite, kaolin, BOX-Behnken.

Résumé

Ce travail a pour but l'étude de l'adsorption du Rouge de Crésol et du principe actif qui est le Paracétamol à partir de solution aqueuse. Le travail se divise en quatre parties :

La première partie, c'est l'étude de l'adsorption du RC et du PA focalisés sur les paramètres influençant l'adsorption par le calcul du taux d'élimination (R%). L'étude a dévoilé que l'adsorption est de faible rendement pour une concentration initiale du polluant inférieur à 4 mg/l ; la quantité initiale des trois adsorbants utilisés est inférieure à 0.11 g ; le temps de contact entre l'adsorbat et l'adsorbant inférieur à 25 min. Par contre, dans les conditions optimales, un rendement très élevé est remarquée pour le RC égale à 88,22% à 120 min pour une concentration initiale égale à 6 mg/l et 0.1 g du charbon actif. Aussi le PA réagit de la même manière dans la condition précédente avec un rendement de 98,6 %.

La deuxième partie, nous nous intéresserons seulement aux modèles type L de Langmuir et Freundlich qui répond à nos résultats expérimentaux, pour l'adsorption du RC et du PA avec le charbon actif, la bentonite et le kaolin, les valeurs obtenues des R^2 Adj sont respectivement de 0,998-0,989-0,979 pour le RC et de 0,997-0,995-0,994 pour le PA. Les isothermes obéissent à la loi de Freundlich sur la bentonite et de Langmuir sur le charbon actif et le kaolin.

La troisième partie qui représente le modèle cinétique qui étudie le phénomène d'adsorption du RC et du PA. D'après les résultats, on constate que, la cinétique pseudo-premier ordre est le meilleur modèle pour étudier la cinétique d'adsorption du colorant et du paracétamol sur les trois adsorbants choisis avec un R^2 Adj égale à 0,998-0,976-0,975 respectivement CHA, BENT, KAL pour le RC et de 0,970-0,995-0,972 pour le PA..

Dans la quatrième partie, on s'est appuyé sur la modélisation par plan d'expérience BOX-BEHNKHEN pour déterminer les optimales des facteurs suivants : temps de contact ; quantité du charbon actif ; concentration initiale du RC. Après modélisation nous avons trouvé que les meilleurs rendements sont à partir de 75 jusqu'à 120 min pour le temps de contact. Pour la quantité initiale du charbon actif, les valeurs du rendement sont important plus que 0.11 g, dans le cas de la concentration initiale du RC on observe une augmentation à partir de 6 mg/l.

Mots clés : Adsorption, Rouge de Crésol, Paracétamol, charbon actif, bentonite, kaolin, BOX-Behnkhén.

ملخص

هذا العمل يهدف إلى دراسة امتصاص صبغة أحمر الكريزول والمواد الفعالة مثل الباراسيتامول من محلول مائي. ينقسم العمل إلى أربع أجزاء :

الجزء الأول هو دراسة امتصاص أحمر الكريزول والباراسيتامول مع التركيز على العوامل المؤثرة على الامتصاص من خلال حساب مردود الإزالة (R%) أظهرت الدراسة أن الامتصاص يكون ذو كفاءة منخفضة لتركيز أولي للملوث أقل من 4 ملغ/لتر؛ والكمية الأولية للمواد الماصة الثلاثة المستخدمة أقل من 0,1 غ؛ ووقت التماس بين الممتص والماص أقل من 25 دقيقة. من ناحية أخرى، في الظروف المثلى، لوحظت كفاءة عالية جدًا لأحمر الكريزول تساوي 22,88% عند 120 دقيقة لتركيز أولي يساوي 6 ملغ/ل و 0,1 غ من الفحم النشط. كما أن الباراسيتامول يتفاعل بنفس الطريقة في الشرط السابق مع عائد قدره 6,98%.

في الجزء الثاني، سنعتمد فقط بالنماذج من نوع L من Freundlich و Langmuir التي تتوافق مع نتائجنا التجريبية، لامتصاص أحمر الكريزول والباراسيتامول باستخدام الفحم النشط، البنتونيت، والكاولين، القيم المحصل عليها من R2 Adj هي على التوالي 0,979-0,989-0,998 ل RC و 0,994-0,995-0,997 للباراسيتامول. تتبع الإيزوثرمات قانون Freundlich على البنتونيت وقانون Langmuir على الفحم النشط والكاولين .

الجزء الثالث الذي يمثل النموذج الحركي الذي يدرس ظاهرة الامتصاص لأحمر الكريزول والباراسيتامول . وفقًا للنتائج، نلاحظ أن الحركية الزائفة من الدرجة الأولى هي أفضل نموذج لدراسة حركية الامتصاص للصبغة والباراسيتامول على المواد الممتصة الثلاثة المختارة مع R2 Adj تساوي 0,975-0,976-0,998 على التوالي: الفحم النشط، البنتونيت، الكاولين للصبغة و 0,972-0,995-0,970 للباراسيتامول .

في الجزء الرابع، اعتمدنا على النمذجة باستخدام خطة تجريبية BOX-BEHNKHEN لتحديد الأمثل للعوامل التالية: زمن التلامس؛ كمية الفحم النشط؛ التركيز الابتدائي لأحمر الكريزول بعد النمذجة، وجدنا أن أفضل العوائد تتراوح بين 75 إلى 120 دقيقة لوقت التلامس. بالنسبة للكمية الأولية للفحم النشط، فإن قيم العائد تكون مهمة أكثر من 0,1 غرام، وفي حالة التركيز الأولي لأحمر الكريزول نلاحظ زيادة بدءًا من 6 ملغ/لتر.

الكلمات المفتاحية: الامتصاص، أحمر الكريزول، باراسيتامول، الفحم النشط، البنتونيت، الكاولين، BOX-BEHNKHEN.

SOMMAIRE

Remerciement.....	i
Liste des figures.....	ii
Liste des tableaux.....	iv
Liste des abréviations.....	v
Introduction Générale	1
Référence bibliographiques introduction	3

CHAPITRE I : Etude bibliographique

I.1	Introduction	4
I.2	Pollution des eaux.....	4
I.2.1	Source de la pollution	4
I.3	Généralités sur les colorants	5
I.3.1	Classification des colorants	6
I.3.2	Utilisation et application des colorants	6
I.3.3	Toxicité des colorants.....	7
I.3.4	Procédés d'élimination des colorants	7
I.4	Phénomène d'adsorption	9
I.4.1	Type d'adsorption	10
I.4.2	Mécanisme d'adsorption	11
I.4.3	Paramètres influant sur l'adsorption	12
I.4.4	Critères favorisant l'adsorption	13
I.4.5	Adsorption en milieu aqueux	13
I.4.5.1	Adsorption en mode statique	14
I.4.5.2	Modèles d'équilibre (isotherme d'adsorption en mode statique)	14
I.4.5.3	Classification des isothermes d'adsorption.....	17
I.4.5.4	Cinétique d'adsorption	18
I.4.6	Matériaux adsorbants.....	20
I.4.6.1	Charbon actif.....	20
I.4.6.2	Argiles.....	20
I.5	Plan d'expérience	21
I.5.1	Définition.....	22
I.5.2	Démarche d'un plan d'expérience.....	23
I.5.3	Généralités sur les plans d'expériences.....	23

I.5.3.1 Facteurs.....	23
I.5.3.2 Réponses.....	24
I.5.3.3 Interaction.....	24
I.5.3.4 Erreur.....	24
I.5.4 Stratégie de choix les plans d'expérience :.....	24
I.5.5 Types des plans d'expériences	25
I.5.6 Avantages des plans d'expériences	25
I.5.7 Plan d'optimisation BOX BEHNKEN	25
I.5.7.1 Propriétés des plans de Box-Behnken	26
I.5.7.2 Méthodologie pour élaborer un plan d'expériences.....	26
I.5.7.3 Technique d'analyse.....	27
I.5.7.4 Logiciels des plans d'expériences	27
I.5.8 Synthèse de quelques travaux sur l'adsorption des colorants	28
Référence bibliographiques chapitre I.....	29

CHAPITRE II :Procédure expérimentale

II.1 Introduction.....	32
II.2 Rouge de crésol.....	32
II.3 Paracétamol	33
II.4 Protocole expérimentale	34
II.4.1 Réactifs utilisés	34
II.4.2 matériaux adsorbants utilisés	35
II.4.2.1 Bentonite	35
II.4.2.3 Kaolin.....	35
II.4.3 Matériels et verreries utilisés	36
II.4.4 Préparation des solutions	36
II.5 Procédure d'adsorption	39
II.5.1 Description des essais.....	39
II.5.2 Rendement d'élimination	40
II.5.3 Cinétique d'adsorption	41
II.5.4 Isotherme d'adsorption	41
II.6 Conditions d'utilisation de plan d'expérience	42
II.6.1 Définition du logiciel DESIGN EXPERT.....	42
II.6.2 Ouverture du DESIGN EXPERT.....	43

Référence bibliographiques chapitre II	47
--	----

CHAPITRE III :Résultats et discussion

III.1 Introduction	48
III.2 Adsorption du RC et du PA	48
III.2.1 Effet de la masse d'adsorbant	48
III.2.2 Cinétique d'adsorption	49
III.2.3 Effet de la concentration initiale	52
III.2.4 Effet du temps de contact d'équilibre	53
III.2.5 Effet de la vitesse d'agitation	55
III.3 Isotherme d'adsorption	56
III.3.1 Isotherme de Langmuir	57
III.3.2 Isotherme de Freundlich	58
III.4 Ordre cinétique de l'adsorption.....	59
III.4.1 Modèle de pseudo premier ordre.....	60
III.4.2 Modèle de pseudo second ordre	61
III.5 Modélisation de plan d'expérience	63
III.5.1 Paramètres et niveaux pour l'adsorption des polluants	63
III.5.1.1 Plan Box-Behnken	64
III.5.1.2 Analyse statistique.....	64
III.5.2 Test de normalité.....	83
III.5.3 Graphiques de surface et de contour des réponses	85
III.5.4 Optimisation	93
Référence bibliographiques chapitre III	96
Conclusion Générale	97