



الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

People's Democratic republic of Algeria

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي

Ministry of Higher Education and Scientific Research

جامعة عبد الحميد بن باديس - مستغانم

Abdel Hamid Ibn Badis University – Mostaganem

كلية العلوم و التكنولوجيا

Faculty of Sciences and Technology

قسم هندسة الطرائق

Department of Process Engineering



N° d'ordre : M2...../GC/2021

## MEMOIRE DE FIN D'ETUDES DE MASTER ACADEMIQUE

**Filière : Génie des procédés**

**Option : Génie Chimique**

**Thème :**

**Optimisation du pH, dose et température paramètres d'adsorption par une modélisation avec le plan de box-behnken**

Présenté par

1 - OMARI Ladjal

2 - MOKADEM Belmokhtar Abdennour

Soutenu le 11 / 07 / 2021 devant le jury composé de :

Président :	A. DJELLOUL	Professeur	Université de Mostaganem
Examinatrice :	F. BENDAHEMA	MCA	Université de Mostaganem
Examinatrice :	H. BENMEKKI	MAA	Université de Mostaganem
Examineur :	B. ABSAR	MCA	Université de Mostaganem
Encadrante :	Z. MEKIBES	MAA	Université de Mostaganem
Co-encadrante :	L. BESSAD	DOCTORANT	Université de Mostaganem

Année universitaire 2020 - 2021

# **REMERCIEMENT**

*En guise de reconnaissance, nous tenons à témoigner nos sincères remerciements à Dieu tout d'abord et à toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin au bon déroulement de notre projet de fin d'étude et à l'élaboration de ce modeste travail.*

*Nos vifs remerciements s'adressent également à Pr. DJELLOUL, professeur à l'Université Abdel Hamid Ibn Baddis, d'avoir accepté de présider ce travail.*

*On tient à remercier également les membres du jury, Mme. BENDEHMA Mme. BENMEKKI, Mr. ABSAR d'avoir accepté d'examiner ce travail.*

*Nos sincères gratitude à Mme. MEKIBES pour nous avoir encadré, on la remercie pour ses conseils, son aide et son intérêt incontestable qu'elle porte à tous les étudiants.*

*Nous tenons à remercier Mme. BESSAD Pour sa patience, ses conseils pleins de sens et pour le suivi et l'intérêt qu'ils ont portés à nos travaux.*

*Dans l'impossibilité de citer tous les noms, nos sincères remerciements vont à tous ceux et celles, qui de près ou de loin, ont permis par leurs conseils et leurs compétences la réalisation de ce mémoire.*

*Enfin, nous n'oserions oublier de remercier tous les enseignants du département de génie des procédés et de la faculté FST de l'université de Mostaganem ABD El Hamid Ibn Badis, pour le travail énorme qu'ils effectuent afin de créer les conditions les plus favorables pour le déroulement de nos études*

# **DEDICACES**

*Je tiens à dédier ce modeste travail :*

*A mes chers parents, pour tous leurs sacrifices, leurs amours, leurs tendresses, leurs soutiens, leurs prières tout au long de mes études, qui ont fait de moi, ce que je suis aujourd'hui.*

*A Mon père, qui peut être fier et trouver ici le résultat de longues années de sacrifices et de privations pour m'aider à avancer dans la vie. Puisse Dieu faire en sorte que ce travail porte son fruit ; Merci pour les valeurs nobles, l'éducation et le soutien permanent venu de toi.*

*A mes chers frères (Mounir et Yacine), pour leurs appuis et leurs encouragements, et qui n'ont cessé d'être là pour moi, des exemples de persévérance, de courage et de générosité.*

*A tous mes amis pour leurs soutiens tout au long de mon parcours universitaire.*

*Que ce travail soit l'accomplissement de vos vœux tant allégués, et le fruit de votre soutien infaillible.*

*Sans oublier mon binôme A. MOKADEM pour son grand effort, ses sacrifices et ses nuits blanches pour aboutir à ce travail.*

*Merci d'être toujours là pour moi.*

**L. OMARI**

# **DEDICACES**

*Avec l'expression de ma reconnaissance, je dédie ce travail à ceux qui je n'arriverais jamais à leur exprimer mon amour sincère.*

*A ma famille, elle qui m'a doté d'une éducation digne, son amour a fait de moi ce que je suis aujourd'hui.*

*Particulièrement à mon père, pour le goût à l'effort qu'il a suscité en moi, de par sa rigueur.*

*A toi ma mère, ceci est ma profonde gratitude pour ton éternel amour, que ce rapport soit le meilleur cadeau que je puisse t'offrir.*

*A ma chère grande sœur qui n'a pas cessée de me conseiller, encourager et soutenir tout au long de mes études.*

*A mes deux adorables petites sœurs qui savent toujours comment procurer la joie et le bonheur pour toute la famille*

*A mes grands-mères, mes oncles et mes tantes. Que dieu leur donne une longue vie.*

*Un grand merci également à mes amis, mon meilleur ami ; un frère que la vie m'a donné.*

*Merci pour leurs amours et leurs encouragements.*

*Sans oublier mon binôme L. OMARI pour son soutien moral, sa patience et sa compréhension tout au long de ce projet.*

**A. MOKADEM**

## Résumé

L'objectif de ce travail est d'optimiser les paramètres pH, dose et température influant le phénomène d'adsorption, en utilisant un charbon actif en poudre à base de déchet végétale à travers une modélisation par le plan d'expérience en utilisant le modèle de Box-Behnken afin d'obtenir un taux maximal d'élimination des polluants en l'occurrence l'Amoxicilline et le Paracétamol contenu dans la solution à dépolluer. Pour cela on a étudié à travers le logiciel MINITAB la variance dans le but de savoir quel est le facteur le plus significatif pour chaque polluant, et leurs influences sur le taux d'élimination, puis optimiser ces derniers pour connaître les paramètres à appliqués pour une meilleure adsorption.

## Abstract

The objective of this work is to optimize the pH, dose and temperature parameters influencing the adsorption phenomenon, using a powdered activated carbon based on vegetable waste through a modeling by the experimental design using the model box-behnken in order to obtain a maximum rate of elimination of pollutants, in this case Amoxicillin and Paracetamol contained in the solution to be decontaminated. For this we studied the variance through the MINITAB software in order to know which is the most significant factor for each pollutant, and their influences on the elimination rate, then to optimize the latter to know the parameters applied for a better adsorption.

## ملخص

الهدف من هذا العمل هو تحسين معاملات الأس الهيدروجيني والجرعة ودرجة الحرارة التي تؤثر على ظاهرة الامتزاز، باستخدام مسحوق الكربون المنشط مستخلص من مصدر نباتي من خلال نمذجة التصميم التجريبي باستخدام نموذج box-behnken من أجل الحصول على أقصى معدل من التخلص من الملوثات، وفي هذه الحالة الأموكسيسيلين والباراسيتامول هما الملوثان المتواجدان في المحلول المراد تطهيره. لهذا قمنا بدراسة التباين من خلال برنامج MINITAB بهدف معرفة العامل الأكثر أهمية لكل ملوث ، وتأثيراته على معدل الإزالة ، ثم تحسينه لمعرفة المعلمات الواجب تطبيقها من أجل امتصاص أفضل.

## *Les abréviations*

BTEX : Benzène-Toluène-Ethylbenzène-Xylènes

I : Iode

Br : Brome

Cl : Chlore

H : Hydrogène

F : Fluor

pH : Potentiel Hydrogène

T : Température (°C)

°C : Degré Celsius

g : Gramme

$X_i$  : Les facteurs

$Y_i$  : La réponse

k : Nombres de facteurs complet

p : Nombres de facteurs aliasés

P : Probabilité

F : test de fisher

BB : Box-Behnken

$R^2$  : Coefficient de détermination

$R^2_{\text{prév}}$  : Coefficient de détermination prévu

## *Liste des figures*

<b>Figure 1</b> : Principe du phénomène de l'adsorption.....	<b>03</b>
<b>Figure 2</b> : Cinétique d'adsorption.....	<b>06</b>
<b>Figure 3</b> : Illustration de l'effet d'un facteur.....	<b>11</b>
<b>Figure 4</b> : Illustration d'une interaction.....	<b>12</b>
<b>Figure 5</b> : Diagramme de Pareto des effets normalisés de l'Amoxicilline .....	<b>18</b>
<b>Figure 6</b> : Diagramme de Pareto des effets normalisés du Paracétamol.....	<b>19</b>
<b>Figure 7</b> : Diagramme des effets principaux pour l'Amoxicilline .....	<b>21</b>
<b>Figure 8</b> : Diagramme des effets principaux pour le Paracétamol .....	<b>22</b>
<b>Figure 9</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et dose sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline.....	<b>23</b>
<b>Figure 10</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la température T(°C) sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline.....	<b>24</b>
<b>Figure 11</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs température T(°C) et la dose sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline.....	<b>24</b>
<b>Figure 12</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la Dose sur le taux d'élimination du Paracétamol.....	<b>25</b>
<b>Figure 13</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la dose sur le taux d'élimination du Paracétamol.....	<b>25</b>
<b>Figure 14</b> : Diagramme des effets d'interactions des facteurs température T(°C) et la dose sur le taux d'élimination du Paracétamol.....	<b>26</b>
<b>Figure 15</b> : Graphique de contour de taux d'élimination de l'Amoxicilline, pH et la dose..	<b>27</b>
<b>Figure 16</b> : Graphique de contour de taux d'élimination de l'Amoxicilline, pH et la température T(°C).....	<b>27</b>
<b>Figure 17</b> : Graphique de contour de taux d'élimination de l'Amoxicilline, la dose et la température T(°C).....	<b>28</b>
<b>Figure 18</b> : Graphique de contour de taux d'élimination du Paracétamol, la dose et le pH..	<b>29</b>
<b>Figure 19</b> : Graphique de contour de taux d'élimination du Paracétamol, pH et la température T(°C).....	<b>29</b>
<b>Figure 20</b> : Graphique de contour de taux d'élimination du Paracétamol, dose et la température T(°C).....	<b>30</b>

<b>Figure 21</b> : diagramme d'évolution du taux d'élimination de l'Amoxicilline (expérimental / prédit).....	<b>31</b>
<b>Figure 21</b> : diagramme d'évolution du taux d'élimination du Paracétamol (expérimental / prédit).....	<b>31</b>
<b>Figure 23</b> : Optimisation des réponses pour l'Amoxicilline.....	<b>32</b>
<b>Figure 24</b> : Optimisation des réponses pour le Paracétamol.....	<b>32</b>



## *Liste des tableaux*

<b>Tableau 1</b> : Facteurs et domaine d'étude du plan de Box-Behnken.....	<b>17</b>
<b>Tableau 2</b> : Plan de Box-Behnken avec les réponses expérimentales.....	<b>18</b>
<b>Tableau 3</b> : Récapitulatif du modèle pour l'Amoxicilline.....	<b>19</b>
<b>Tableau 4</b> : Récapitulatif du modèle pour le Paracétamol.....	<b>20</b>
<b>Tableau 5</b> : Analyse de la variance pour l'Amoxicilline.....	<b>20</b>
<b>Tableau 6</b> : Analyse de la variance pour le Paracétamol .....	<b>21</b>
<b>Tableau 7</b> : Plan de Box-Behnken avec les réponses prédites.....	<b>30</b>

# Sommaire

Introduction Générale.....	01
<b>Chapitre I : Adsorption</b>	
I. Adsorption.....	03
I.1. Le principe d'une séparation.....	03
I.2. Définition de l'adsorption .....	03
I.2.1 Adsorption physique (physisorption).....	03
I.2.2. Adsorption chimique (chimisorption).....	04
I.3. Utilisation de l'adsorption .....	04
I.4. Définition du charbon actif .....	04
I.4.1. Utilisation des charbons actif .....	05
I.4.2. Exemples d'application .....	05
I.5. Cinétique d'adsorption .....	05
I.6. Les facteurs influençant l'adsorption .....	06
I.6.1. La température .....	06
I.6.2. Effet de pH .....	06
I.6.3. La dose.....	06
<b>Chapitre II : Les plans d'expériences</b>	
II. Les plans d'expériences .....	09
II.1. Introduction .....	09
II.2. Classification des plans d'expérience .....	09
II.3. La surface de réponse .....	10
II.4. Vocabulaire .....	10
II.4.1. Facteur .....	10
II.4.2. Réponses .....	11
II.4.3. Matrice d'expérience .....	11
II.4.4. Effet d'un facteur .....	11
II.4.5. Interaction .....	12
II.4.6. Modèle mathématique .....	12
II.5. Plans de Box-Behnken .....	12
II.5.1. Avantage du modèle de Box-Behnken .....	13
II.6. Technique d'analyse .....	13
II.6.1. Analyse de la variance .....	13
II.6.2. Probabilité P .....	13
II.6.3. Coefficients de détermination ( $R^2$ ) .....	13
II.7. Estimation des effets d'interaction .....	14
II.8. Représentation Graphique des Résultats .....	14
II.8.1. Tracé des moyennes .....	15
II.8.2. Tracé de surface .....	15
II.9. Conclusion .....	15
<b>Chapitre III : Modélisation</b>	
III.1. Le principe du travail .....	17

III.2. La matrice .....	17
III.2.2. Diagramme de Pareto pour l'Amoxicilline .....	18
III.2.3. Diagramme de Pareto pour le Paracétamol .....	19
III.2.4. Le coefficient de détermination $R^2$ pour l'Amoxicilline.....	19
III.2.5. Equation de régression en unités non codées pour l'Amoxicilline.....	20
III.2.6. Le coefficient de détermination $R^2$ pour le paracétamol .....	20
III.2.7. Equation de régression en unités non codées du Paracétamol.....	20
III.3. Analyse de la variance (ANOVA) .....	20
III.3.1. L'analyse de la variance pour l'Amoxicilline.....	20
III.3.2. L'analyse de la variance pour le Paracétamol .....	21
III.3.3. Diagrammes des effets principaux .....	21
III.3.3.1. Pour l'Amoxicilline .....	21
III.3.3.2. Pour le Paracétamol .....	22
III.3.4. Diagrammes des effets d'interactions des facteurs sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline .....	23
III.3.5. Diagrammes des effets d'interactions des facteurs sur le taux d'élimination du Paracétamol .....	25
III.4. Les graphiques de contour .....	26
III.4.1. Les graphiques de contour pour l'Amoxicilline .....	27
III.4.2. Les graphiques de contour pour le Paracétamol .....	28
III.5. La matrice (prédite) .....	30
III.5.1. Evolution du taux d'élimination (expérimental / prédit) .....	31
III.6. Optimisation .....	32
III.6.1. Optimisation des réponses pour l'Amoxicilline.....	32
III.6.1. Optimisation des réponses pour le Paracétamol .....	32
Conclusion générale .....	34
Références bibliographiques	

---

# *Introduction Générale*

---

## Introduction générale

La pollution générée par les activités anthropiques représente une menace de plus en plus inquiétante vis-à-vis de l'homme et des écosystèmes. Les effluents industriels et les polluants résultant de l'utilisation intensive de pesticides et les produits chimiques toxiques constituent les causes majeures de pollution de l'environnement.

La mise au point des procédés de dépollution efficaces vise à réduire le pouvoir toxique des polluants. Parmi les nombreux procédés développés, l'adsorption est reconnue comme l'une des meilleures techniques de traitement des eaux usées. Elle permet en effet, d'éliminer plusieurs substances toxiques non biodégradables, tels que les métaux lourds et les colorants. Comme adsorbant l'utilisation des charbons actifs présente un bon marché seulement le coût relativement élevé des charbons actifs commerciaux et leur rapport coût/dépollution injustifié dans la plupart des cas [1] a retenu l'attention des chercheurs sur les adsorbants aussi performants que les charbons actifs commerciaux ce qui a constitué l'un des principaux thèmes de recherche. Les résultats de ces études et, bien d'autres encore, ont montré que les bio-adsorbants pourraient constituer une alternative aux charbons actifs dans les processus de traitement des eaux à l'échelle industrielle.

La technique de l'adsorption est la méthode la plus favorable pour l'élimination des micropolluants. Elle est devenue une méthode de choix, très efficace et simple dans son utilisation. Le principe du traitement par adsorption est de piéger les micropolluants par un matériau solide appelé adsorbant. Il existe, dans la littérature, plusieurs matériaux solides (argile, zéolite, alumine activées, et charbon actif...) qui peuvent être utilisés dans des procédés de traitement des eaux usées.

Notre travail au laboratoire avait pour objectif d'étudier l'optimisation du pH, dose et température paramètres d'adsorption, par une modélisation avec le plan de box-behnken nous avons divisé notre travail en deux parties :

- Une première basée sur la partie théorique qui regroupe différentes généralités sur l'adsorption, les charbons actifs et les types d'adsorption
- La deuxième consiste à mettre en œuvre la méthode d'optimisation des paramètres qui influent sur l'adsorption en utilisant le programme MINITAB 18 plus précisément le modèle « Box-Behnken »

Enfin, le mémoire est achevée par une conclusion générale.

---

# *Chapitre I : Adsorption*

---

## I. Adsorption

### I.1. Le principe d'une séparation

Le principe d'un procédé de séparation est d'utiliser une différence de propriétés entre le composé d'intérêt et le reste du mélange. Plus la différence de propriété sera grande, plus la séparation sera aisée. Ainsi, le choix du procédé de séparation commence par une bonne connaissance de la composition du mélange et des propriétés des différents composants.

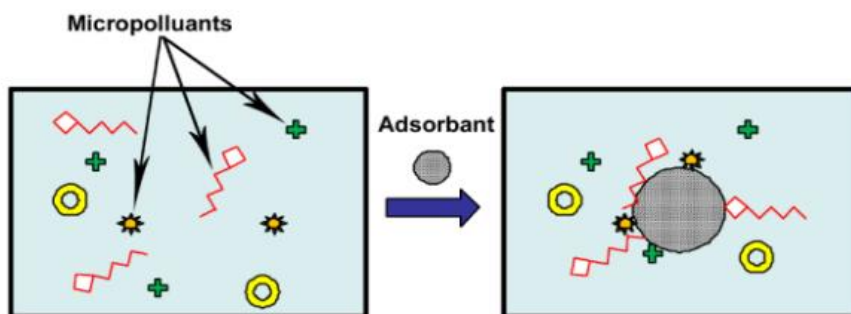


Figure 1 : Principe du phénomène d'adsorption

### I.2. Définition de l'adsorption

L'adsorption est un procédé de traitement, bien adapté pour éliminer une très grande diversité de composés toxiques dans notre environnement. Elle est essentiellement utilisée pour le traitement de l'eau et de l'air. Au cours de ce processus les molécules d'un fluide (gaz ou liquide), appelé adsorbat, viennent se fixer sur la surface d'un solide, appelé adsorbant. Ce procédé définit la propriété de certains matériaux de fixer à leur surface des molécules (gaz, ions métalliques, molécules organiques, etc.) d'une manière plus ou moins réversible. Au cours de ce processus, il y aura donc un transfert de matière de la phase aqueuse ou gazeuse vers la surface solide. Le solide acquiert alors des propriétés superficielles (hydrophobe ou hydrophile) susceptibles de modifier l'état d'équilibre du milieu (dispersion, floculation) [2]. La nature des liaisons formées ainsi que la quantité d'énergie dégagée lors de la rétention d'une molécule à la surface d'un solide permettent de distinguer deux types d'adsorption : adsorption physique et adsorption chimique.

#### I.2.1 Adsorption physique (physisorption)

Ce type d'adsorption résulte de l'établissement d'un échange de forces de faible énergie entre la surface d'un solide et des molécules à proximité de cette surface. Dans ce cas, la rétention est le résultat des liaisons de nature électrostatique de type Van Der Waals. Du point de vue énergétique,

la physisorption se produit aux basses températures avec des énergies de l'ordre de 10 Kcal.mol<sup>-1</sup> tout au plus. Elle correspond à un processus réversible (équilibre dynamique d'adsorption et de désorption) et ne conduit pas à une modification de l'identité chimique de la molécule adsorbée. Dans le cas d'une telle adsorption, le temps de rétention de la substance adsorbée est court et la surface adsorbante peut être recouverte de multiples couches moléculaires de produit adsorbé.

### **I.2.2. Adsorption chimique (chimisorption)**

Dans ce cas, l'adsorption est due à la formation d'une liaison chimique, covalente plus permanente, entre l'adsorbat et la surface de l'adsorbant. Par rapport au premier, l'adsorption chimique se distingue par des énergies d'adsorption plus élevées (2 à 100 Kcal.mol<sup>-1</sup> contre quelques Kcal.mol<sup>-1</sup>), et par une fixation irréversible de l'adsorbat sur des sites d'adsorption très spécifiques. Dans ce type d'adsorption, le temps de rétention est long et seule la première couche liée à la surface adsorbant est chimiquement adsorbée, les autres couches, dans le cas où elles existent, sont retenues par physisorption. Il est à noter également que le phénomène d'adsorption constitue la première étape des réactions nécessitant l'emploi d'un catalyseur solide. Ce phénomène peut alors jouer un rôle prédominant dans la cinétique de réaction chimique.

### **I.3. Utilisation de l'adsorption**

L'adsorption est un traitement efficace pour enlever la matière organique, particulièrement quand la charge moléculaire est importante et la polarité est faible. Le charbon actif peut donc être utilisé pour enlever les phénols, les hydrocarbures saturés qui sont des molécules insolubles difficilement attaquables par l'ozone, les pesticides, les métaux lourds, les agents tensio-actifs...

### **I.4. Définition du charbon actif**

Le charbon actif, aussi nommé charbon activé, est un matériau constitué essentiellement de matière carbonée à structure poreuse.

On appelle charbon actif tout charbon ayant subi une préparation particulière et qui, de ce fait, possède à un haut degré la propriété de fixer et de retenir certaines molécules amenées à son contact. Il s'agit d'une structure amorphe composée principalement d'atomes de carbone, généralement obtenue après une étape de carbonisation d'un précurseur à haute température.

Un charbon actif présente en général une surface spécifique élevée qui lui confère un fort pouvoir adsorbant.



#### I.4.1. Utilisation des charbons actif

Il peut adsorber les substances solubles suivantes :

Adsorption des substances organiques et non polaires comme les huiles minérales, les BTEX, les poly-hydrocarbures aromatiques, les phénols (chlorure), Adsorption de substances halogénées : I, Br, Cl, H et F, odeurs, goût, levures, substances non polaires (non solubles dans l'eau), divers produits de fermentation.

#### I.4.2. Exemples d'application

- Traitement des eaux souterraines polluées ;
- Traitement contre les micropolluants, adsorption des traces de certains métaux lourds ;
- Rétention de chlore ;
- Le domaine de la médecine pharmaceutique ;
- Purification des gaz.

#### I.5. Cinétique d'adsorption

Le phénomène d'adsorption, contrôlé par la diffusion des molécules, atteint son équilibre relativement rapidement (quelques secondes à quelques minutes). Mais, peut se prolonger sur des temps très longs pour les adsorbants microporeux en raison du ralentissement de la diffusion des molécules dans ces structures de dimensions voisines du diamètre des molécules du fluide.

Le transfert d'une phase liquide contenant l'adsorbat vers une phase solide avec rétention de soluté à la surface de l'adsorbant se fait en plusieurs étapes [3]:

1. Transfert de masse externe (diffusion externe) qui correspond au transfert du soluté (molécules de la phase liquide) du sein de la solution à la surface externe des particules.
2. Transfert de masse interne dans les pores (diffusion interne) qui a lieu dans le fluide remplissant les pores ; les molécules se propagent de la surface des grains vers leur centre à travers les pores.
3. Diffusion de surface pour certains adsorbants, il peut exister également une contribution de la diffusion des molécules adsorbées le long des surfaces des pores à l'échelle d'un grain d'adsorbant.

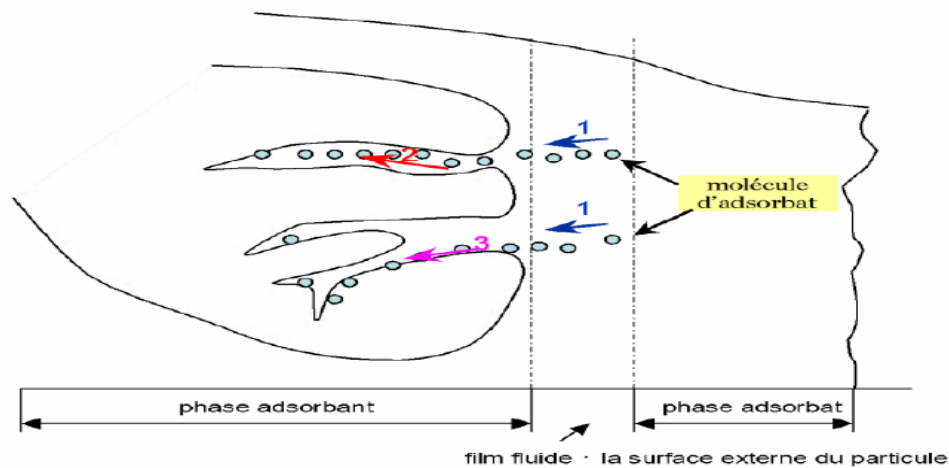


Figure 2 : Cinétique d'adsorption

## I.6. Les facteurs influençant l'adsorption

Quand un solide est mis en contact avec une solution, chaque constituant de cette dernière, le solvant et le soluté, manifeste une tendance à l'adsorption à la surface du solide. Il y'a donc une compétition en surface entre deux adsorptions qui sont concurrentielles. Le cas le plus intéressant est celui où l'adsorption du soluté est de loin plus importante que celle du solvant.

Donc la quantité adsorbée, dépend de nombreux facteurs dont les principaux sont:

### I.6.1. La température

L'adsorption est un processus exothermique et par conséquent son déroulement doit être favorisé à basse température.

### I.6.2. Effet de pH

Le pH joue un rôle primordial dans l'étude des phénomènes d'adsorption sur des substrats minéraux, Le potentiel de charges de surface des adsorbants, le comportement de l'adsorbat et le mécanisme d'interaction entre l'adsorbat et l'adsorbant utilisé changent selon le pH de la solution.

### I.6.3. La dose

L'influence de la dose de l'adsorbant varie selon les propriétés du polluant à adsorber, utiliser une plus grande quantité de dose ne garantit en aucun cas une meilleure adsorption, car au-delà d'une certaine masse, le taux d'élimination diminue indiquant probablement la présence d'un autre type d'interaction entre les molécules.

Donc il faut utiliser une certaine dose dans un intervalle de masse bien précis afin d'éviter un surdosage inefficace.

---

## ***Chapitre II : Les plans d'expériences***

---

## II. Les plans d'expériences

### II.1. Introduction

Traditionnellement, un chercheur effectue des expériences de manière séquentielle en faisant varier les paramètres les uns après les autres. Cette méthode donne des résultats mais elle est coûteuse en temps et nécessite la réalisation d'un grand nombre d'expérience.

Pour résoudre ce problème, il faut adopter une démarche rigoureuse dans la réalisation des essais. La méthode des plans d'expériences se base sur le fait qu'une expérience convenablement organisée, conduira fréquemment à une analyse et à une interprétation statistique relativement simple des résultats. La méthode des plans d'expériences vise à organiser de façon économique et rationnelle une expérience dépendant de plusieurs paramètres. Cette méthode permet d'assurer la qualité des résultats de l'expérience tout en apportant le maximum de renseignements pour un minimum d'expériences à réaliser [4].

Pour utiliser les plans d'expériences, nous devons aborder une méthodologie. Cette méthodologie s'articule selon les étapes suivantes :

- Formalisation du problème ;
- Planification ;
- Expérimentation ;
- Analyse des résultats ;
- Optimisation de la réponse.

Rappelons l'objectif de ce travail qui est l'étude des interactions entre les paramètres suivant : pH, la dose et la température  $X_i$  (ou facteurs) et le taux d'élimination  $Y_i$  (ou réponse).

Nous nous conduisons directement aux plans d'expériences pour nous permettre d'organiser au mieux les expériences et les essais de caractérisation avec sûreté et précision.

Dans le but de répondre à des préoccupations liées à la recherche d'un modèle, différents groupes de plans sont mis en œuvre [5, 6].

### II.2. Classification des plans d'expérience

- Les plans du premier degré : Ces plans dits factoriels ont une grande importance pratique, soit sous forme de plans complet, soit sous forme de plans fractionnaires.

- Les plans du second degré : Ils sont consacrés aux facteurs continus prenant plus de deux niveaux et dont l'interprétation est basée sur des modèles du second degré, il s'agit des plans composites, de Doehlert, Box-Behnken et autres. Ces plans se prêtent bien à une étude séquentielle des facteurs
- Les plans des mélanges : qui sont adaptés aux facteurs avec contraintes tels que les concentrations des constituants d'un mélange. Ils ne s'appliquent qu'aux facteurs continus [7].

Le plan qui fait l'objet de notre travail est le plan de Box-Behnken.

### II.3. La surface de réponse

Les niveaux  $X_i$  représentent les coordonnées d'un point expérimental et  $Y_i$  est la valeur de la réponse en ce point. La représentation géométrique du plan d'expériences et de la réponse nécessite un espace ayant une dimension de plus que l'espace expérimental. Un plan à deux facteurs utilise un espace à trois dimensions pour être représenté : une dimension pour la réponse, deux dimensions pour les facteurs.

A chaque point du domaine d'étude correspond à une réponse. A l'ensemble de tous les points du domaine d'étude correspond à un ensemble de réponses qui se localisent sur une surface appelée la surface de réponse.

On cherche à obtenir la meilleure précision possible sur la surface de réponse tout en limitant le nombre d'expériences.

### II.4. Vocabulaire

#### II.4.1. Facteur

Les facteurs sont les variables que l'on désire étudier et qui sont supposées avoir une influence sur le système. Ils peuvent être quantitatifs ou qualitatifs, continues ou discrets, contrôlables ou non contrôlables. Généralement, on prend en compte les facteurs caractérisés par une seule variable naturelle qualitative ou quantitative que l'on contrôle. Les facteurs sont limités par deux bornes, inférieure (bas) et supérieure (haut). On désigne le niveau bas par le signe (-1) et le niveau haut par le signe (+1) [8].

## II.4.2. Réponses

Une réponse expérimentale est une manifestation mesurable que l'on observe lorsque l'on fait varier les paramètres étudiés. Un phénomène peut être éventuellement décrit par plusieurs réponses expérimentales [9].

## II.4.3. Matrice d'expérience

La matrice d'expérience est un objet mathématique qui représente, sous forme codée ou non codée, l'ensemble des expériences à réaliser. C'est un tableau constitué de  $n$  lignes correspondant aux  $n$  expériences à réaliser et de  $K$  colonnes, correspondant aux  $K$  variables étudiées. L'élément  $X_{ij}$  de la matrice ainsi formée correspond à la valeur des niveaux que prend la  $j^{\text{ème}}$  variable à la  $i^{\text{ème}}$  expérience [10].

## II.4.4. Effet d'un facteur

L'effet d'un facteur  $X$  correspond à la variation de la réponse  $Y$  lorsque  $X$  passe d'une valeur au niveau  $(-1)$  à une autre valeur au niveau  $(+1)$ , comme indiqué sur la (figure 3).

Graphiquement, plus l'inclinaison est forte, plus l'effet est important, et cela donne déjà des Indications

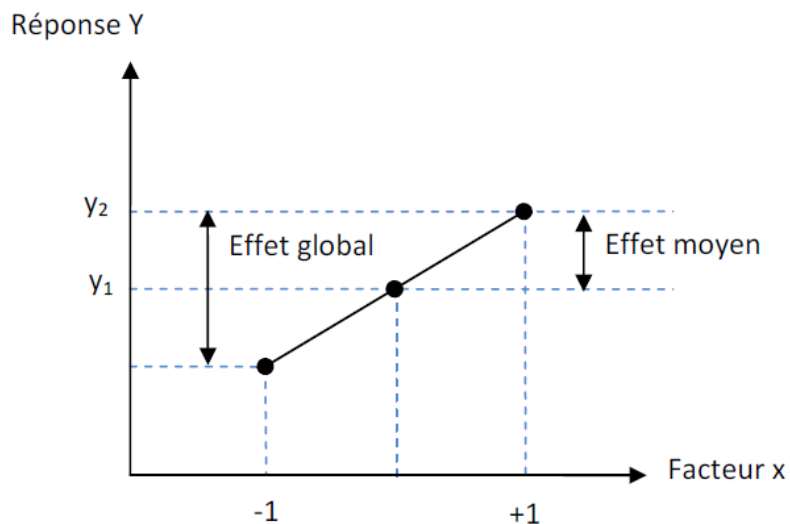


Figure 3 : Illustration de l'effet d'un facteur

### II.4.5. Interaction

L'effet d'un facteur dépendant de la valeur prise par un autre facteur est appelé interaction. Cette interaction se traduit sur un diagramme (Figure 4) par le fait que les deux droites ne sont pas parallèles. Plus les droites s'écartent de la parallèle, plus le degré d'interaction est élevé.

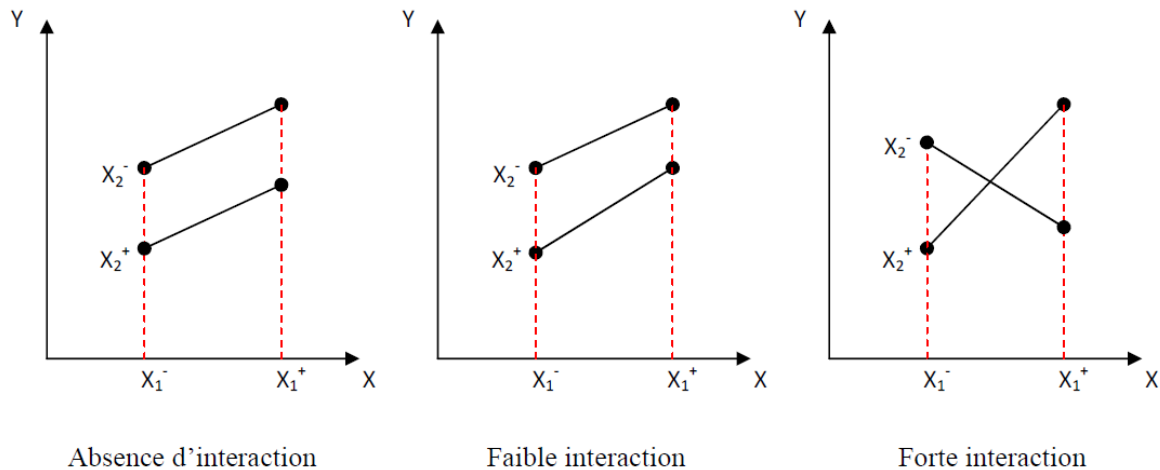


Figure 4: Illustration d'une interaction

### II.4.6. Modèle mathématique

C'est une relation mathématique qui montre le changement dans une réponse produite par le changement d'un ou plusieurs facteurs [11]. Le but de modéliser la réponse par un modèle mathématique est de pouvoir calculer ensuite toutes les réponses du domaine d'étude sans être obligé de faire les expériences. Ce modèle est appelé modèle postulé ou à priori [12].

### II.5. Plans de Box-Behnken

Dans le cas de plans  $2^{(k-p)}$ , Plackett et Burman (1946) ont développé des plans hautement fractionnés permettant d'obtenir le nombre maximum d'effets (principaux) avec le minimum d'essais. L'équivalent pour un plan  $3^{(k-p)}$  est un plan dit de **Box-Behnken** (Box et Behnken, 1960 ; et aussi Box et Draper, 1984). Ces plans ne possèdent pas de générateurs de plan simple (ils sont construits en combinant des plans factoriels à deux niveaux avec des plans incomplets de blocs), et possèdent des interactions confondues complexes. Ces plans ont toutefois l'avantage d'être économiques et donc particulièrement utiles lorsque les essais expérimentaux à réaliser sont coûteux.



### II.5.1. Avantage du modèle de Box-Behnken

Le modèle de Box-Behnken (BB) présente donc l'avantage d'être moins coûteux en temps (nombre d'essais réduits) et ressources à investir pour l'expérimentation. Le modèle de BB ne permet pas de tester les traitements pour lesquels tous les facteurs sont placés simultanément à leur niveau élevé ou bas. La matrice de Box-Behnken minimise donc les combinaisons situées dans les extrémités du domaine de variation des facteurs où l'on observe en général une réponse non satisfaisante (réponse élevée ou faible). Ceci peut être avantageux lorsque les points situés sur les coins du cube représentent des combinaisons de niveaux de facteurs qui sont chères ou impossible de tester en raison des contraintes physiques du processus [13 - 15].

Le plan de BB connaît de nombreuses applications dans plusieurs domaines scientifiques. Il a été utilisé, dans plusieurs branches de la chimie (chimie analytique, spectrophotométrie, chromatographie etc...) dans le but d'optimiser plusieurs processus chimique et physique [16, 17].

En microbiologie [18] et en phytopathologie [19], le plan de BB est utilisé pour évaluer l'influence des facteurs environnementaux sur la croissance des micro-organismes agroalimentaires.

## II.6. Technique d'analyse

### II.6.1. Analyse de la variance

L'analyse de la variance (ANOVA) est un outil essentiel dans la détermination de la signification d'un effet ou d'un modèle mathématique. Le principe de l'analyse de la variance est basé sur le calcul de l'écart total entre les différentes mesures  $Y_i$  du plan d'expériences et la moyenne de ces mesures [20].

### II.6.2. Probabilité P

La statistique la plus importante dans le tableau de l'analyse de la variance est la valeur de P. Cette valeur peut prendre des valeurs comprises seulement entre 0 et 1. Si elle est inférieure à 0,05 ; on conclut que l'effet est significatif et si elle est inférieure à 0,01 ; il est possible de conclure que le facteur est hautement significatif.

### II.6.3. Coefficients de détermination ( $R^2$ )

On définit le coefficient de détermination  $R^2$  comme étant la fraction des variations de la réponse expliquée par le modèle seul.

Le  $R^2$  est donc une mesure de la qualité du modèle qui prend des valeurs comprises entre 0 et 1. S'il est proche de 1, le modèle permet de retrouver les valeurs des réponses mesurées. S'il est égal à 0, le modèle n'explique rien.

Plus la valeur de coefficient de détermination s'approche de 1 plus notre modèle est représentatif (meilleur).

### **II.7. Estimation des effets d'interaction**

Comme dans le cas des plans  $2^{(k-p)}$ , l'effet d'interaction linéaire-par-linéaire peut s'interpréter comme la moitié de la différence de l'effet principal linéaire d'un facteur aux réglages supérieurs et inférieurs d'un autre. De la même manière, les interactions par les composantes quadratiques peuvent s'interpréter comme la moitié de la différence entre l'effet quadratique principal d'un facteur aux paramétrages respectifs d'un autre ; c'est-à-dire, soit le réglage inférieur ou supérieur (interaction quadratique / linéaire), soit les paramétrages intermédiaire ou supérieurs et inférieurs combinés (interaction quadratique / quadratique).

En pratique, et du point de vue de "l'interprétabilité des résultats", nous cherchons autant que possible à éviter les interactions quadratiques.

Par exemple, une interaction quadratique / quadratique (A / B) signifie que l'effet non-linéaire du facteur A dépend de façon non-linéaire du réglage du facteur B.

Nous voyons donc qu'il existe une interaction réellement complexe entre les facteurs dans nos données, ce qui rendra d'autant plus difficile la compréhension et l'optimisation du processus. Une transformation non-linéaire des valeurs de la variable dépendante (par exemple, en réalisant une transformation logarithmique) permet parfois de résoudre ce problème.

### **II.8. Représentation graphique des Résultats**

Les tracés diagnostiques (par exemple, tracé des résidus) décrits dans le cadre des plans  $2^{(k-p)}$  sont également disponibles pour les plans  $3^{(k-p)}$ . Il est toujours bon, avant d'interpréter les résultats, d'examiner préalablement la distribution des valeurs des résidus du modèle final ajusté. L'ANOVA suppose que les résidus (erreurs) sont distribués normalement.

**II.8.1. Tracé des moyennes**

Lorsqu'une interaction comporte des facteurs catégoriels (par exemple, le type de machine, un opérateur spécifique sur une machine, ou des paramètres distincts sur une machine), le meilleur moyen de comprendre les interactions consiste à examiner le tracé des moyennes de l'interaction respective.

**II.8.2. Tracé de surface**

Lorsque les facteurs d'une interaction sont de nature continue, il peut être utile d'examiner les tracés de surface représentant la surface de réponse du modèle ajusté. Notez que ce graphique contient également l'équation de prévision (dans la métrique originale des facteurs), produisant la surface de réponse respective

**II.9. Conclusion**

L'approche par les plans d'expériences, consiste à organiser la démarche expérimentale et l'analyse décisionnelle en appliquant plusieurs outils et tests statistiques.

L'utilisation et l'intérêt des plans d'expériences conduit à établir un plan comportant le maximum de précision dans les résultats avec un minimum d'expériences.

---

## ***Chapitre III : Modélisation***

---

### III.1. Le principe du travail

Dans ce travail nous avons choisi le plan de Box-Behnken. Ce choix est notamment motivé par le faible coût demandé : 15 expériences doivent être calculées. Ce nombre est faible par rapport à un plan factoriel complet, à 3 niveaux par facteur, qui nécessite 27 expériences.

Les trois facteurs retenus pour le plan de Box-Behnken (tableau 1) sont le pH, la dose et la température T (°C).

Le plan de Box-Behnken nous permet d'examiner les trois facteurs (pH, la dose et T (°C)), avec plus de détails afin de déterminer les conditions optimales pour une adsorption maximale. Les résultats de ce plan subiront un traitement statistique nécessaire.

**Tableau 1** : Facteurs et domaine d'étude du plan de Box-Behnken.

Niveaux	-1	0	+1
Facteurs			
pH	2	7	12
Dose (g)	0,0250	0,1125	0,2000
T (°C)	25	35	45

### III.2. La matrice

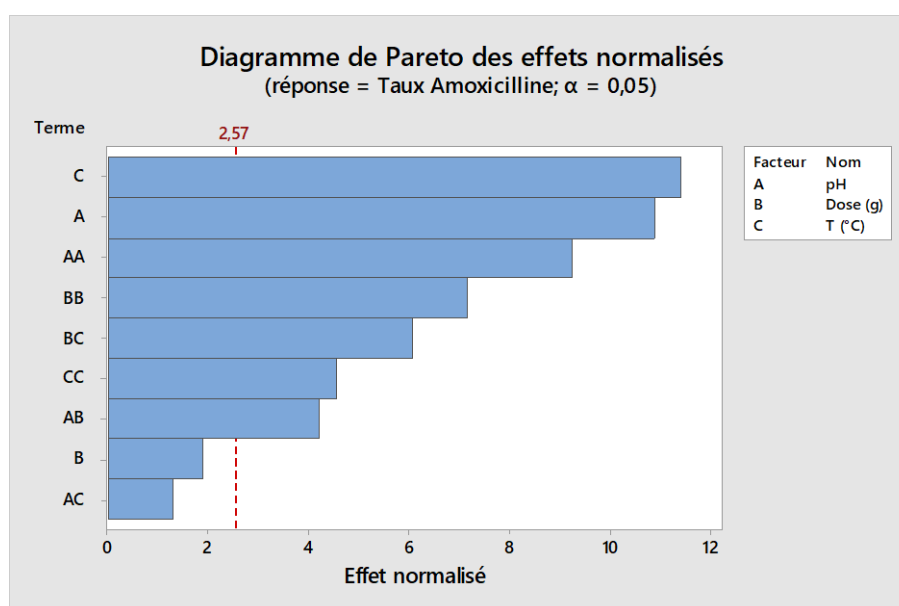
Le plan de Box-Behnken pour trois facteurs, composé de quinze essais dont trois au centre du domaine (essais 13, 14 et 15) et des réponses expérimentales (taux d'élimination de l'Amoxicilline et le taux d'élimination du Paracétamol) est représenté ci-après (tableau 2).

**Tableau 2** : Plan de Box-Behnken avec les réponses expérimentales.

Numéros d'essais	pH	Dose (g)	T (°C)	Taux d'élimination de l'Amoxicilline %	Taux d'élimination du Paracétamol %
7	2	0,1125	45	82,50	95,20
13	7	0,1125	35	85,00	94,23
6	12	0,1125	25	26,60	86,70
1	2	0,0250	35	75,00	85,00
10	7	0,2000	25	54,40	93,50
8	12	0,1125	45	58,60	97,20
12	7	0,2000	45	72,20	98,23
3	2	0,2000	35	60,18	80,00
2	12	0,0250	35	26,82	50,35
15	7	0,1125	35	85,25	94,73
11	7	0,0250	45	87,35	93,60
4	12	0,0250	35	45,20	90,60
14	7	0,1125	35	86,00	94,00
9	7	0,0250	25	26,72	61,73
5	2	0,1125	25	60,80	95,10

Les données de ce tableau subiront un traitement statistique pour estimer les coefficients du modèle mathématique.

### III.2.2. Diagramme de Pareto pour l'Amoxicilline

**Figure 5** : Diagramme de Pareto des effets normalisés de l'Amoxicilline

Ce diagramme (figure 5) permet d'extraire les paramètres les plus importants. Parmi tous les facteurs étudiés et au niveau de confiance choisi ( $\alpha = 0,05$ ), le pH et la température T(°C) apparaissent comme des facteurs très influents, la dose peut d'après ce même diagramme avoir un effet sur la réponse.

### III.2.3. Diagramme de Pareto pour le Paracétamol

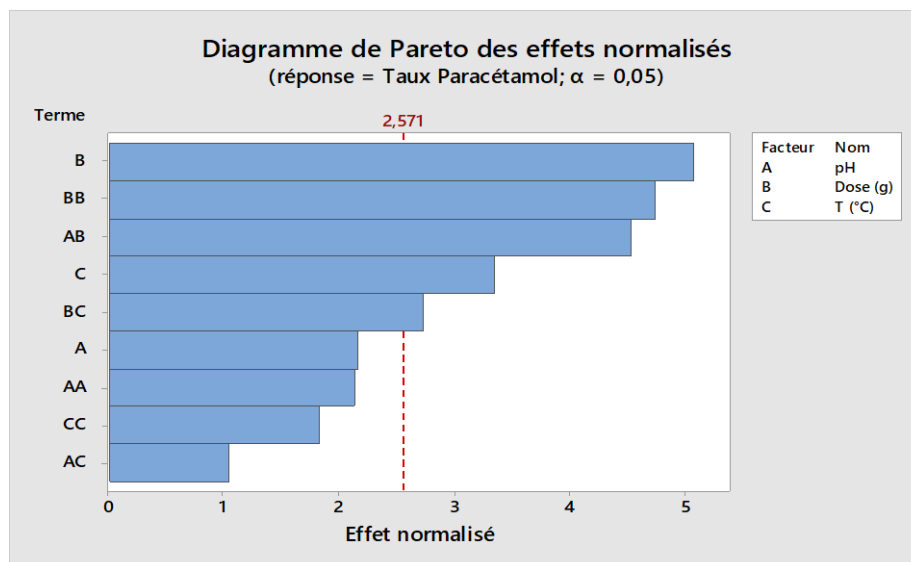


Figure 6 : Diagramme de Pareto des effets normalisés du Paracétamol

D'après le Figure 6 (diagramme de Pareto) la dose reste le paramètre le plus influant sur l'adsorption du paracétamol par le charbon actif, la température influence également mais d'une manière beaucoup moins importante et de même pour le pH.

### III.2.4. Le coefficient de détermination $R^2$ pour l'Amoxicilline

La valeur du coefficient de détermination  $R^2 = 98,90 \%$  est bonne et  $R^2_{\text{prév}} = 82,44 \%$  (Tableau 3), ce qui indique que le modèle est relativement bien expliqué. Donc il existe une bonne corrélation entre les valeurs mesurées et les valeurs calculées.

Tableau 3 : Récapitulatif du modèle pour l'Amoxicilline.

$R^2$	$R^2_{\text{prév}}$
98,90 %	82,44 %

### III.2.5. Equation de régression en unités non codées pour l'Amoxicilline

Taux d'élimination de l'Amoxicilline =  $-154,3 + 3,66 \text{ pH} + 807 \text{ Dose} + 9,30 \text{ T} - 0,757 \text{ pH}^2 - 1917 \text{ Dose}^2 - 0,0932 \text{ T}^2 + 18,97 \text{ pH} * \text{Dose} + 0,0510 \text{ pH} * \text{T} - 13,67 \text{ Dose} * \text{T}$

### III.2.6. Le coefficient de détermination $R^2$ pour le paracétamol

La valeur du coefficient de détermination  $R^2 = 95,34 \%$  est acceptable et  $R^2_{\text{prév}} = 25,51 \%$  (Tableau 4), ce qui indique que 4,66 % n'est pas expliqué par le modèle.

**Tableau 4** : Récapitulatif du modèle pour le Paracétamol

$R^2$	$R^2_{\text{prév}}$
<b>95,34 %</b>	<b>25,51 %</b>

### III.2.7. Equation de régression en unités non codées du Paracétamol

Taux d'élimination du Paracétamol =  $97,1 - 2,40 \text{ PH} + 554 \text{ Dose} - 2,23 \text{ T} - 0,221 \text{ pH}^2 - 1608 \text{ Dose}^2 + 0,0475 \text{ T}^2 + 25,86 \text{ pH} * \text{Dose} + 0,0520 \text{ pH} * \text{T} - 7,75 \text{ Dose} * \text{T}$

## III.3. Analyse de la variance (ANOVA)

### III.3.1. L'analyse de la variance pour l'Amoxicilline

L'analyse de la variance (tableau 5), montre deux valeurs P et F des effets principaux. Ces deux valeurs indiquent que le modèle est significatif. C'est-à-dire au moins un facteur a un effet significatif sur la réponse.

**Tableau 5** : L'analyse de la variance pour l'Amoxicilline

Les facteurs	F	P	Signification
pH	4,34	0,038	Significatif
Dose (g)	0,62	0,556	Non significatif
T (°C)	2,74	0,105	Non significatif

En remarque que le facteur pH à une  $P = 0,038$  et  $F = 4,34$  donc il est significatif puisqu'il vérifie les deux conditions de  $P < 0,05$  et  $F > 1$ .



### III.3.2. L'analyse de la variance pour le Paracétamol

Tableau 6 : Analyse de la variance pour le Paracétamol

Les facteurs	F	P	Signification
pH	0,5	0,612	Non significatif
Dose (g)	4,96	0,027	Significatif
T (°C)	1,11	0,362	Non significatif

En remarque que la dose à une  $P = 0,027$  et  $F = 4,96$  donc ce facteur est le plus significatif, car il vérifie les deux conditions de  $P < 0,05$  et  $F > 1$ .

### III.3.3. Diagrammes des effets principaux

#### III.3.3.1. Pour l'Amoxicilline

Le diagramme des effets principaux nous renseigne sur l'influence simultanée de tous les facteurs sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline.

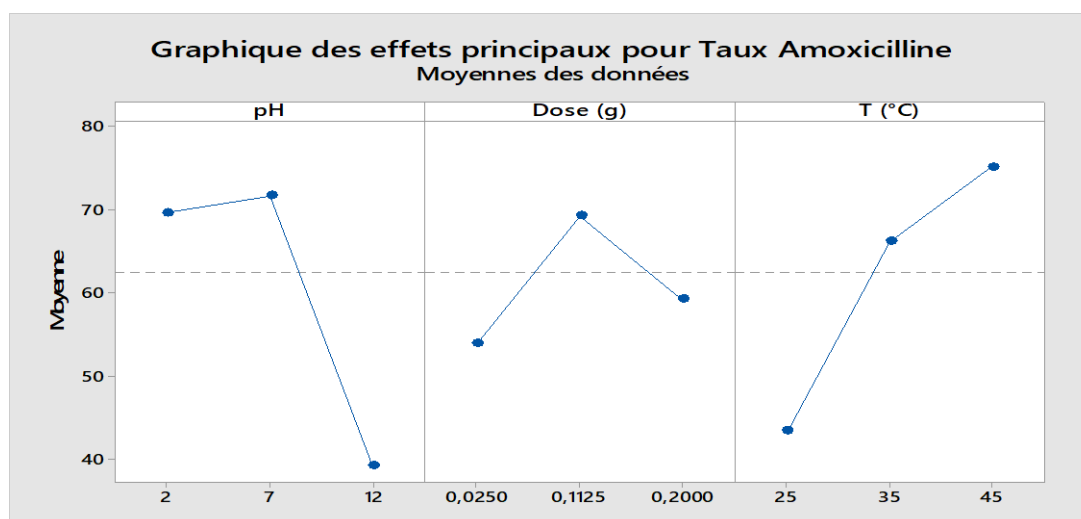
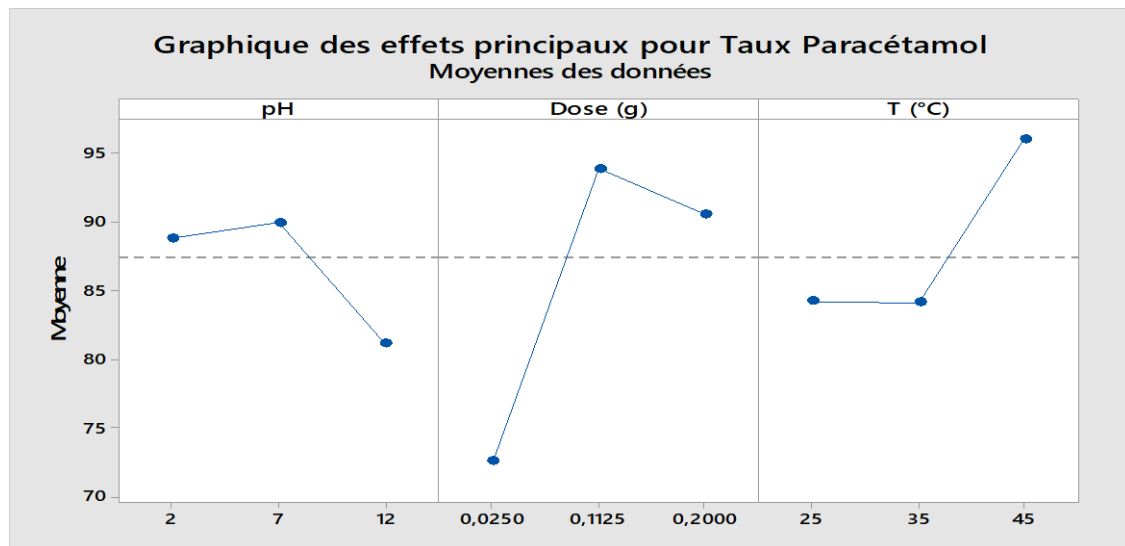


Figure 7 : Diagramme des effets principaux pour l'Amoxicilline

D'après la figure 7 on a :

- Le taux d'adsorption augmente pour un pH allant de 2 jusqu'à 7 puis diminue jusqu'à atteindre un pH = 12.
- Le taux d'adsorption augmente en augmentant la dose en partant de 0,025 g jusqu'à atteindre un seuil pour 0,1125 g puis il diminue en augmentant la dose.
- La température favorise le taux d'adsorption.

## III.3.3.2. Pour le Paracétamol



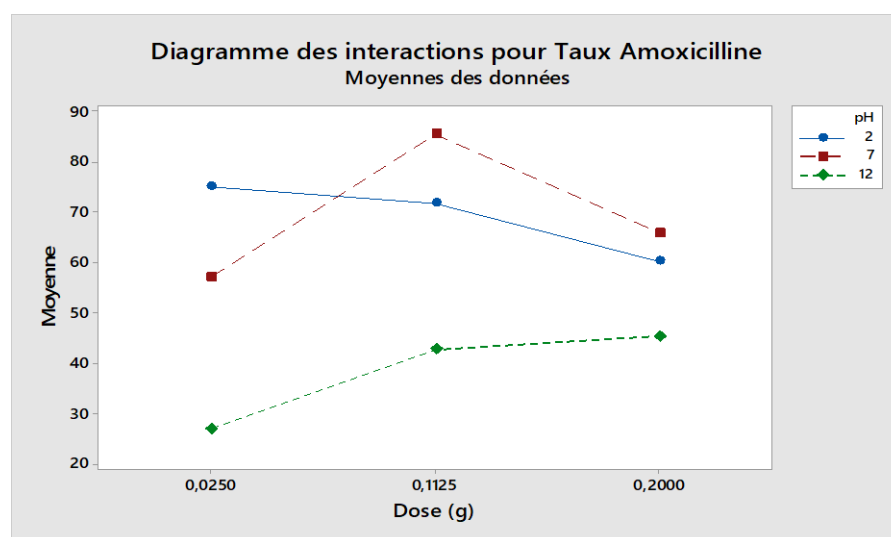
**Figure 8 :** Diagramme des effets principaux pour le Paracétamol

- On remarque que lorsque le pH est entre la valeur de 2 et 7 le taux d'élimination du paracétamol augmente et quand il est approximativement neutre le taux d'élimination de ce dernier est optimal (égale à 90 %) puis il commence à diminuer en rentrant dans la zone basique ( $7 < \text{pH} < 12$ )
- Concernant la dose plus elle s'approche de la valeur de 0,1125 g plus le taux d'adsorption est meilleur jusqu'à ce qu'il soit maximal pour une Dose = 0,1125 g puis diminue pour une  $0,1125 < \text{Dose} < 0,2$
- Lorsque la Température est comprise dans un intervalle de [25 – 35 °C] on constate que le processus est athermique puis favorisé entre ]35 – 45 °C] jusqu'à atteindre un taux maximal de 96 % pour  $T = 45$  °C.

### III.3.4. Diagrammes des effets d'interactions des facteurs sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline

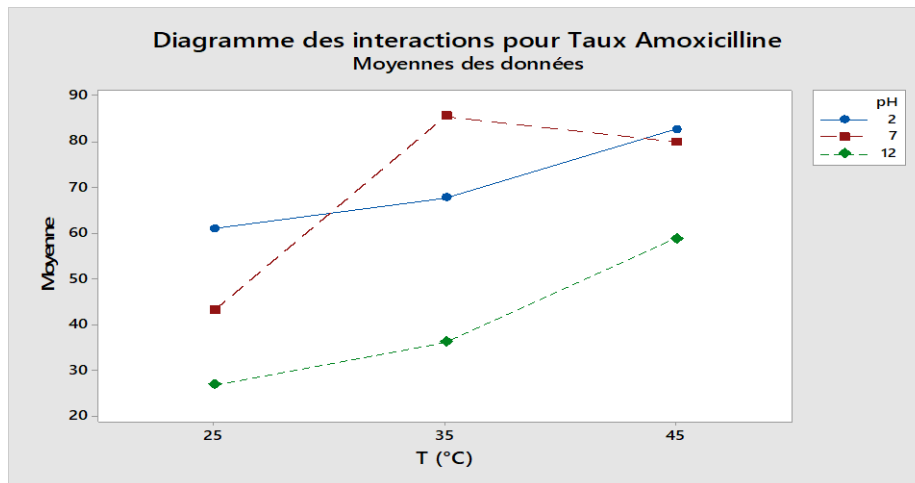
Les diagrammes des interactions (figure 9, 10 et 11) sont généralement utilisés pour visualiser les interactions pendant une opération ANOVA, dans laquelle l'effet d'un facteur dépend du niveau d'un autre facteur.

Les diagrammes suivants (figure 9, 10 et 11) montrent que plus la différence de pente est grande entre les lignes, plus le degré d'interaction est élevé. Si les droites sont parallèles indiquent l'absence d'interactions.



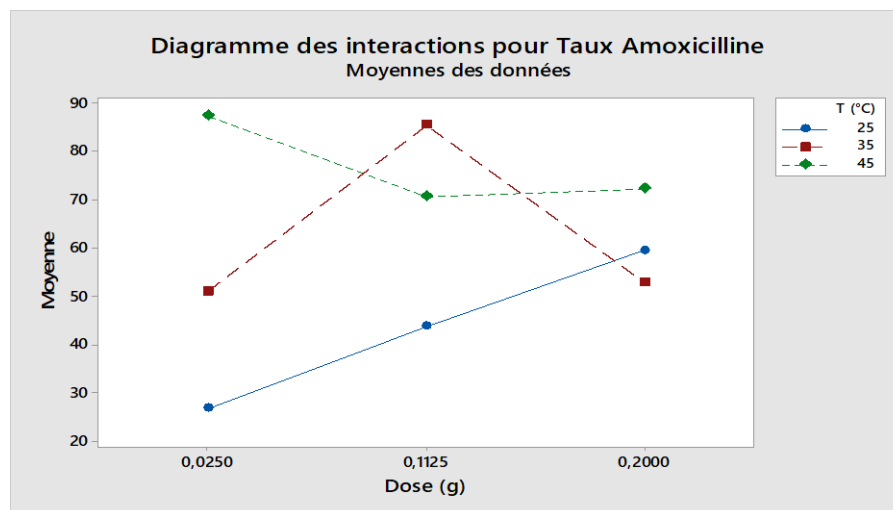
**Figure 9 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et dose sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline

D'après la figure 9 pour une dose de 0,025 g nécessite un milieu acide pour atteindre un taux d'élimination égale à 75 %, puis on obtient un taux d'élimination maximal à pH = 7 et une Dose = 0.1125 g, ensuite il diminue en augmentant la dose allant jusqu'à 0,2 g.



**Figure 10 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la température T(°C) sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline

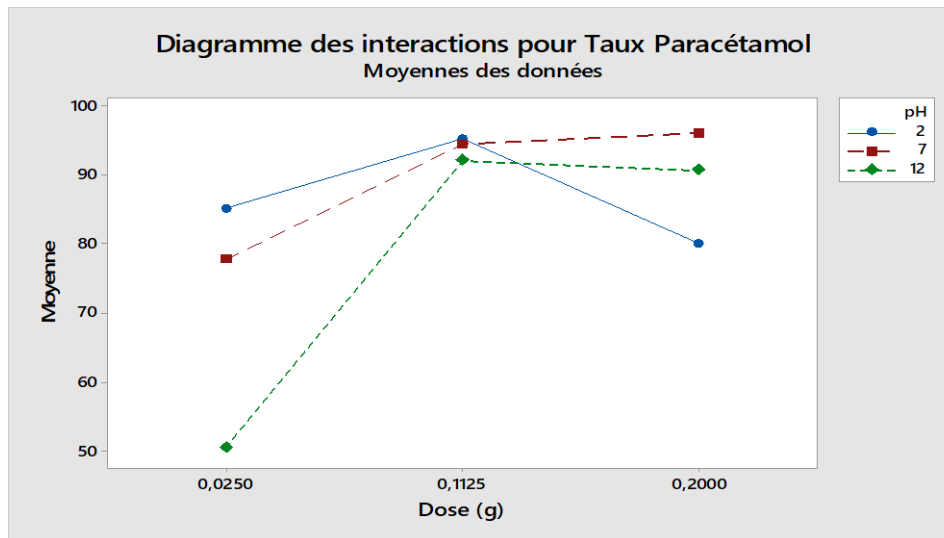
D'après la figure 10 à T = 25°C et pour un meilleur taux d'élimination qui est de 62 % il faudrait assurer un milieu acide de pH = 2, puis à 35 °C pour un taux d'élimination optimal de 96 % le milieu doit être neutre (pH = 7), et si on atteint les 45 °C le milieu nécessiterai un pH = 2 pour un bon taux à cette température.



**Figure 11 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs température T(°C) et la dose sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline

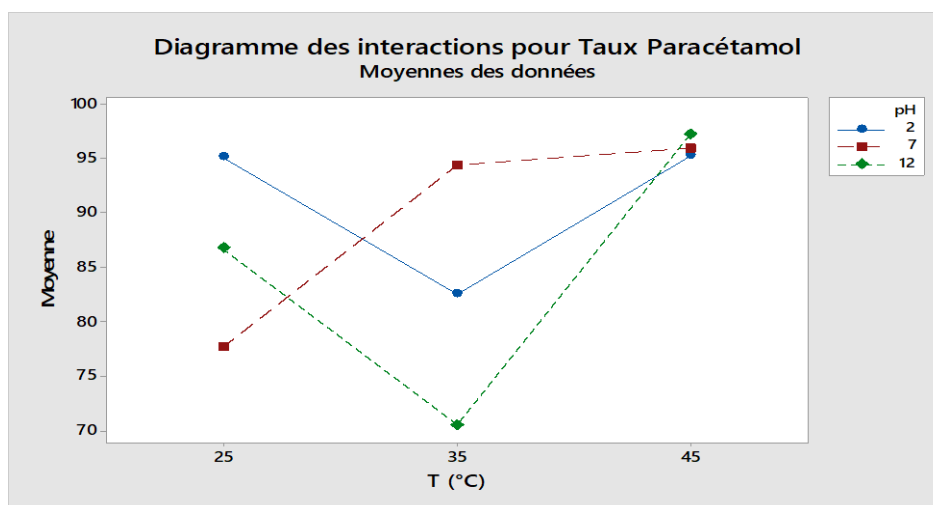
D'après la figure 11 pour un taux d'élimination supérieur 70 % il faut soit T = 45°C et une dose égale à 0,025 g pour un taux maximal de 88 %, ou à T = 35°C et une dose égale à 0,1125 g ou bien pour T = 45°C et une dose égale à 0,2 g pour un taux égale à 70 %.

### III.3.5. Diagrammes des effets d'interactions des facteurs sur le taux d'élimination du Paracétamol



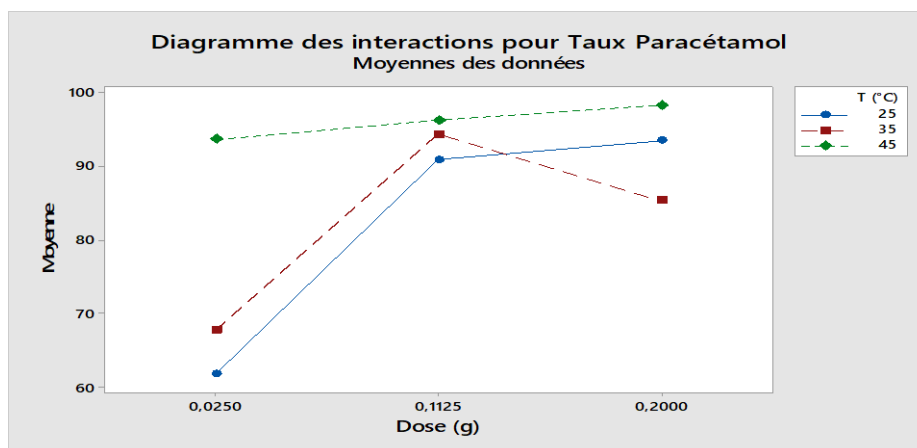
**Figure 12 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la dose sur le taux d'élimination du Paracétamol

La figure 12 indique que pour une faible dose de 0,025 g nécessite un milieu acide (pH = 2) pour un meilleur taux de 85 %, et pour une moyenne dose de 0,1125 g et presque quel que soit le pH du milieu on a un taux d'élimination supérieur à 90 %, et pour une dose plus élevée allant jusqu'à 0,2 g et un pH = 7 on a un taux optimal voisinant les 95%.



**Figure 13 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs pH et la température T(°C) sur le taux d'élimination du Paracétamol

D'après la figure 13 on remarque qu'à 25 °C on obtient un meilleur taux d'élimination pour un pH = 2 (milieu acide), puis à 35 °C nécessite un pH neutre pour maintenir un bon taux d'élimination, ensuite on distingue qu'on a un taux d'élimination optimal du Paracétamol pour une Température égale à 45 °C quel que soit le pH du milieu.



**Figure 14 :** Diagramme des effets d'interactions des facteurs température T(°C) et la dose sur le taux d'élimination du Paracétamol

D'après la figure 14 on remarque que pour une dose de 0,025 g on a un bon taux d'élimination de 94 % à 45 °C, puis un meilleur taux de 96 % à 45 °C et une dose de 0,1125 g, par la suite on constate que la dose favorise le taux d'élimination pour une température égale à 45 °C.

#### III.4. Les graphiques de contour

A partir du modèle mathématique validé et à l'aide du logiciel, on réalise graphiquement les contours 2D. Ces graphiques permettent de rechercher des solutions optimales plus désirables avec une meilleure précision possible. Cela nous permet d'examiner les résultats plus nettement. Les courbes de contour sont générées à l'aide du logiciel MINITAB 18 par la combinaison des trois facteurs induits. Nous avons choisi à chaque fois deux facteurs représentés sur les axes X et Y. La valeur de la réponse est représentée par une région ombragée dans la courbe de contour 2D.

### III.4.1. Les graphiques de contour pour l'Amoxicilline

Les figures 15, 16, et 17 représentent les graphiques 2D qui illustrent l'évolution de la réponse (le taux d'élimination de l'Amoxicilline) en fonction des niveaux de deux facteurs.

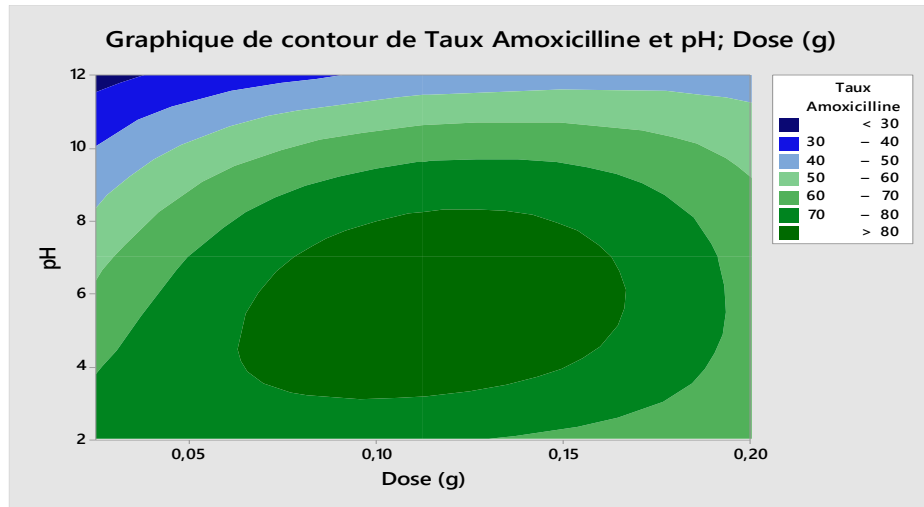


Figure 15 : Graphique de contour du taux d'élimination de l'Amoxicilline, pH et la dose

La figure 15 représente le diagramme de contour des deux facteurs pH et la dose. Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse. Pour la combinaison des facteurs pH et la dose, il apparaît une région verte dans laquelle le taux d'élimination de l'Amoxicilline est plus élevé (supérieur à 80 %) pour un intervalle de dose compris entre 0,07 g et 0,16 g, et un pH du milieu entre [3 - 7].

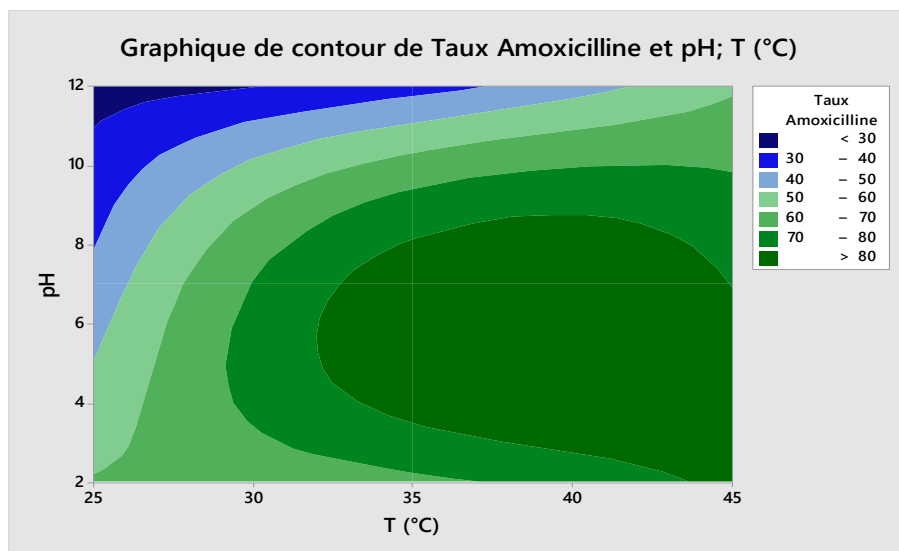
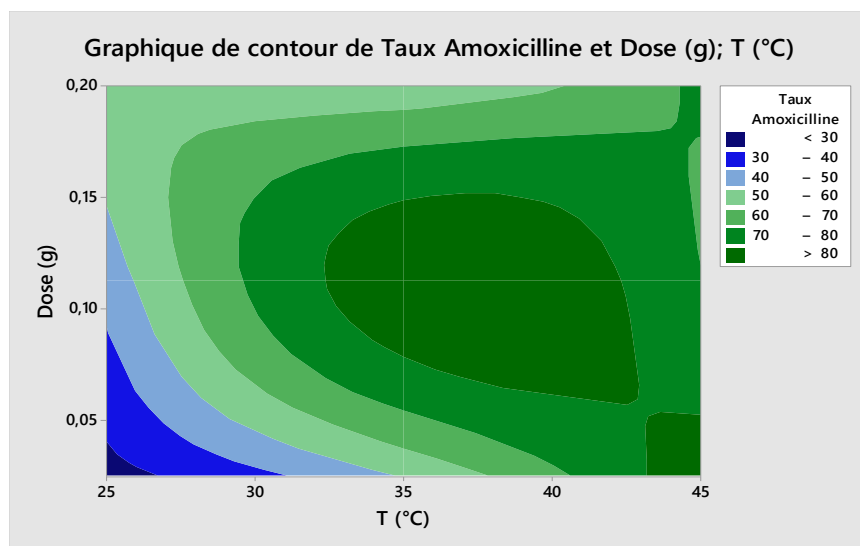


Figure 16 : Graphique de contour du taux d'élimination de l'Amoxicilline, pH et la température T(°C)

La figure 16 représente le diagramme de contour des deux facteurs pH et la température. Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse. Pour la combinaison des facteurs pH et la température, il apparaît une région verte foncée dans laquelle le taux d'élimination de l'Amoxicilline est plus important, ce qui indique que le taux d'élimination de ce dernier est plus de 80 % pour une température partante de 33°C et un pH acide du milieu jusqu'à un pH neutre.



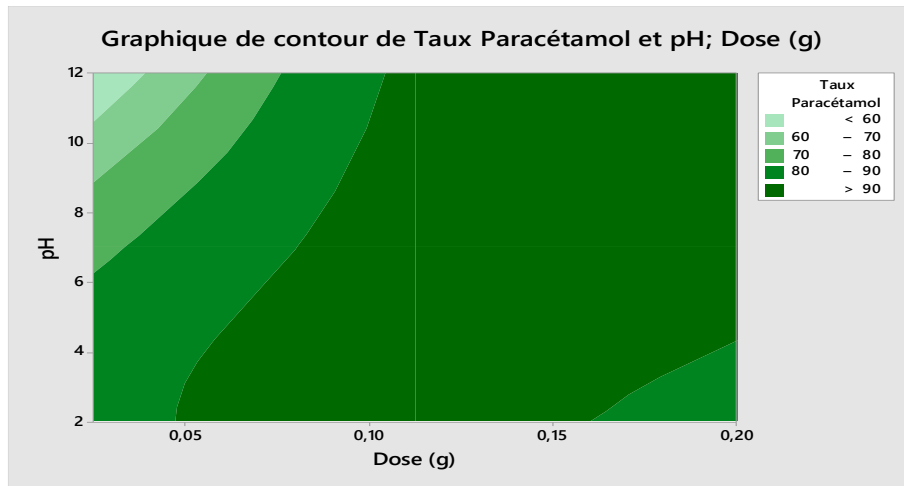
**Figure 17 :** Graphique de contour du taux d'élimination de l'Amoxicilline, dose et la température T(°C)

La figure 17 représente le diagramme de contour des deux facteurs dose et la température T(°C). Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse qui est représenté par une région verte foncée prise dans un intervalle de température entre 33 °C et 43 °C et une dose entre 0,06 g et 0,15 g

#### III.4.2. Les graphiques de contour pour le Paracétamol

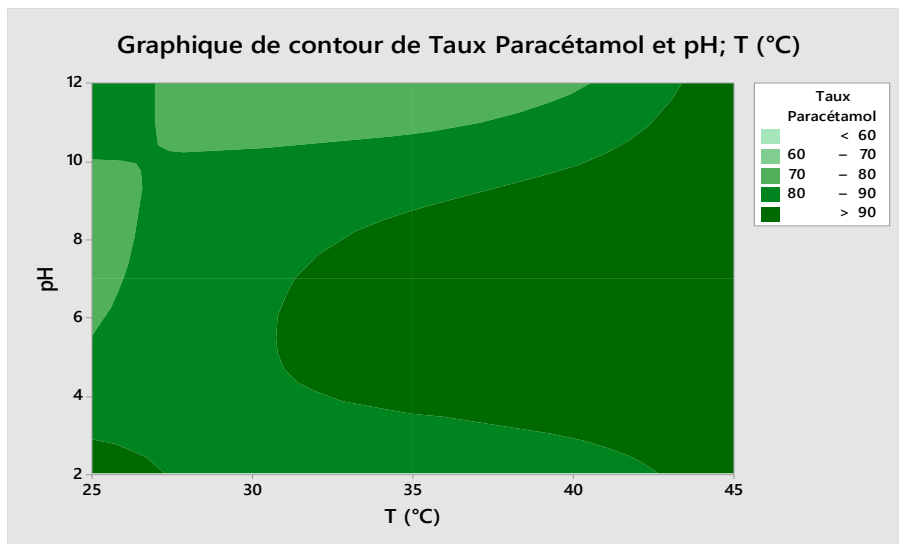
Les figures 18,19, et 20 représentent les graphiques 2D qui illustrent l'évolution de la réponse (le taux d'élimination de Paracétamol) en fonction des niveaux de deux facteurs.





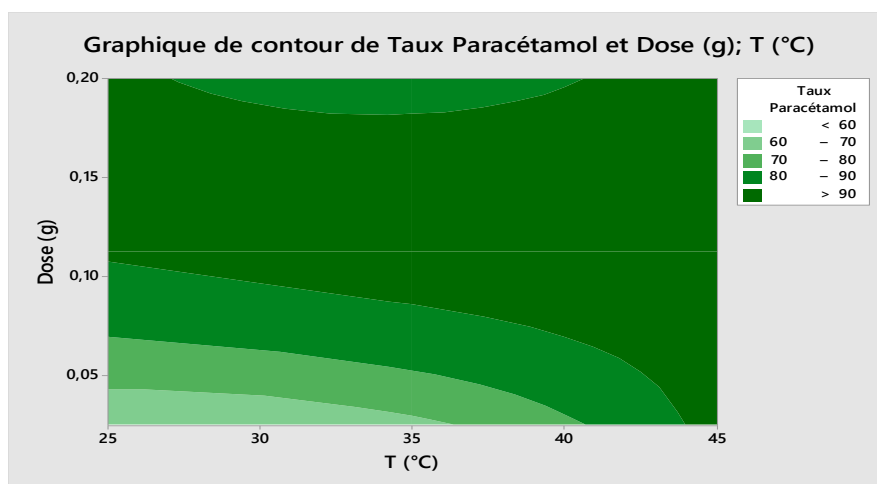
**Figure 18 :** Graphique de contour du taux d'élimination du Paracétamol, dose et le pH

La figure 18 représente le diagramme de contour des deux facteurs la dose et le pH du milieu. Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse (taux d'élimination du Paracétamol) qui est représentée par une région verte très foncée de plus de 90 % pour une dose [0,05 - 0,17 g] et quel que soit le pH du milieu.



**Figure 19 :** Graphique de contour du taux d'élimination du Paracétamol, pH et la température T(°C)

La figure 19 représente le diagramme de contour des deux facteurs le pH du milieu et la température T(°C). Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse (taux d'élimination du Paracétamol) qui est représentée par une région verte très foncée de plus de 90 % comprise entre 32 °C et 45 °C et un pH entre 2 et 10 selon la température; plus la température est élevée plus le pH est moins influant.



**Figure 20 :** Graphique de contour du taux d'élimination du Paracétamol, dose, le température T(°C)

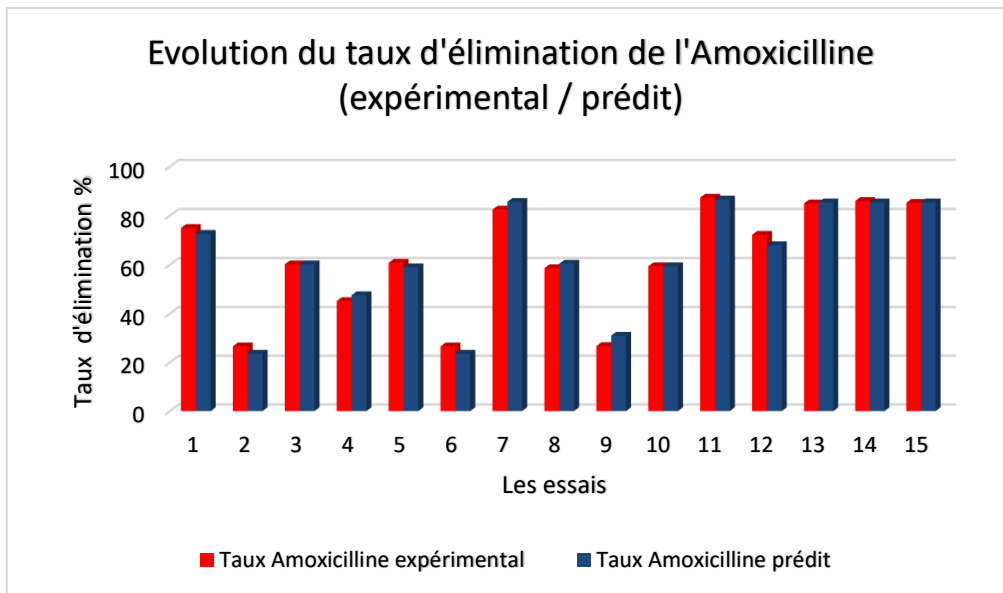
La figure 20 représente le diagramme de contour des deux facteurs la dose et la température T(°C). Les deux facteurs nous renseignent sur l'évolution de la réponse (taux d'élimination du Paracétamol) représentée par une région verte très foncée d'une température de 43 °C à 45 °C et une dose variante de [0,11 - 0,17 g].

### III.5. La matrice (prédite)

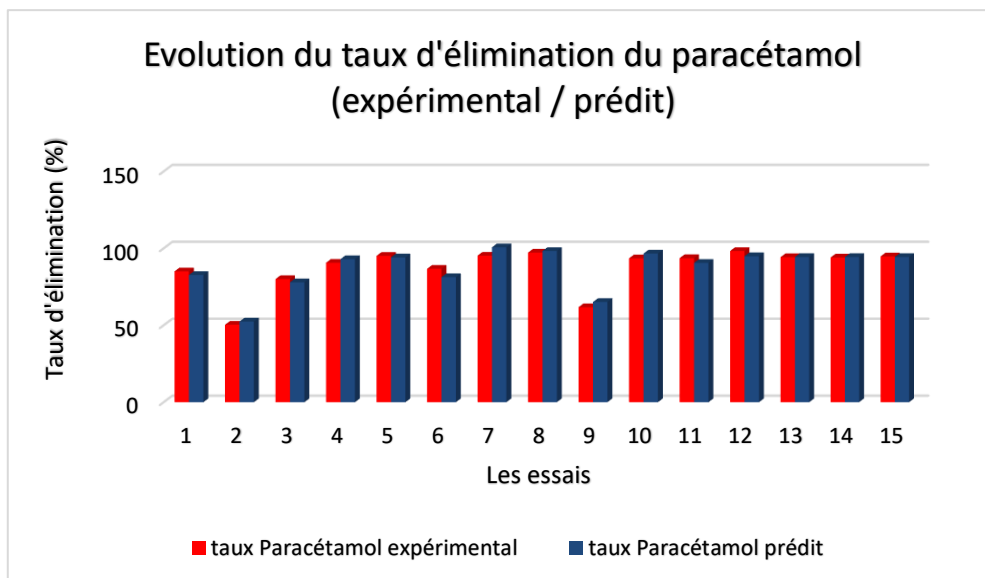
**Tableau 7 :** Plan de Box-Behnken avec les réponses prédites

Numéros d'essais	pH	Dose (g)	T (°C)	Taux d'élimination de l'Amoxicilline (prédit) %	Taux d'élimination du Paracétamol (prédit) %
7	2	0,1125	45	85,6238	100,656
13	7	0,1125	35	85,4167	94,320
6	12	0,1125	25	23,5763	81,244
1	2	0,0250	35	72,6088	82,650
10	7	0,2000	25	60,1325	96,606
8	12	0,1125	45	60,4338	98,244
12	7	0,2000	45	67,9750	94,836
3	2	0,2000	35	61,2813	77,938
2	12	0,0250	35	25,7188	52,412
15	7	0,1125	35	85,4167	94,320
11	7	0,0250	45	86,6175	90,494
4	12	0,0250	35	47,5913	92,950
14	7	0,1125	35	85,4167	94,320
9	7	0,0250	25	30,9450	64,124
5	2	0,1125	25	58,9650	94,056

### III.5.1. Evolution du taux d'élimination (expérimental / prédit)



**Figure 21** : diagramme d'évolution du taux d'élimination de l'Amoxicilline (expérimental / prédit)



**Figure 22** : diagramme d'évolution du taux d'élimination du Paracétamol (expérimental / prédit)

D'après les deux figures 21 et 22 on constate que le taux d'élimination expérimental et prédit est presque similaire ce qui indique que notre modèle de travail est compatible à l'expérience effectuée.

### III.6. Optimisation

#### III.6.1. Optimisation des réponses pour l'Amoxicilline

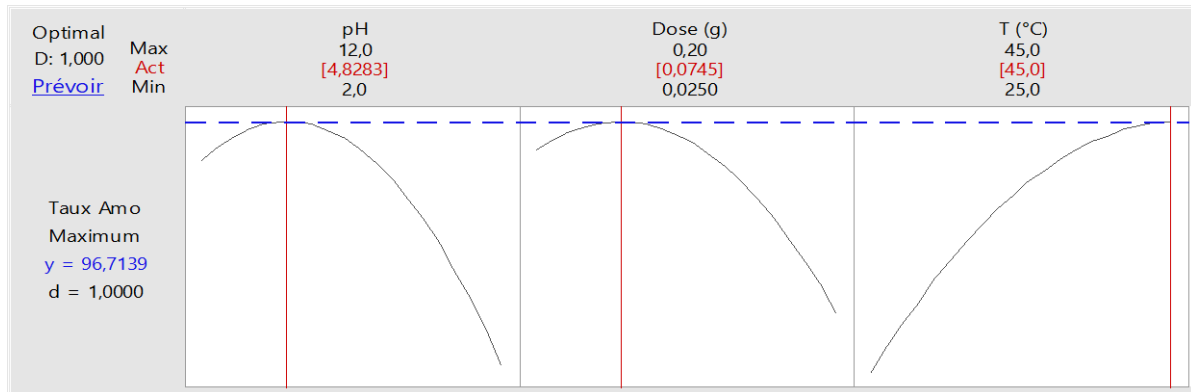


Figure 23 : Optimisation des réponses pour l'Amoxicilline

D'après la figure 23 on conclue que pour avoir le meilleur taux d'élimination de l'Amoxicilline possible on doit fournir ces paramètres :

- pH = 4,8283
- Dose = 0,0745 g
- T = 45 °C

#### III.6.1. Optimisation des réponses pour le Paracétamol

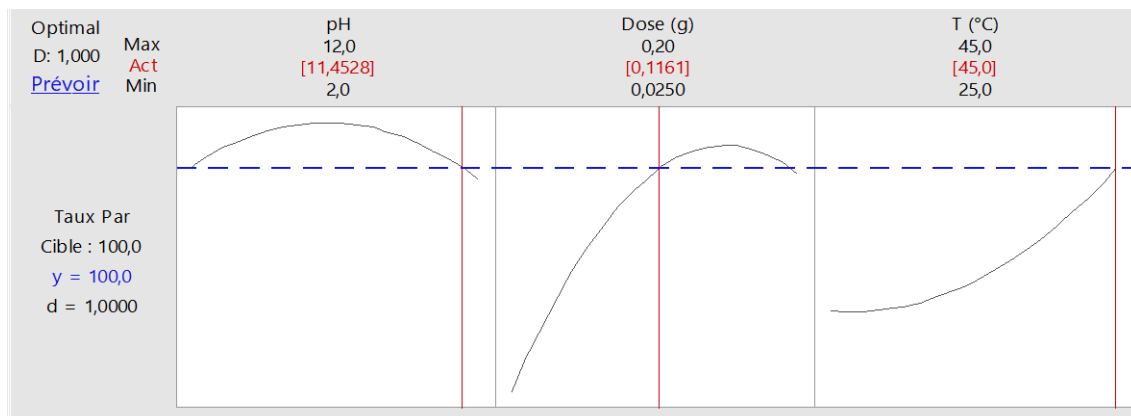


Figure 24 : Optimisation des réponses pour le Paracétamol

D'après la figure 24 on constate que pour atteindre le meilleur taux d'élimination du Paracétamol possible on doit assurer les conditions suivantes :

- pH = 11,4528
- Dose = 0,1161 g
- T = 45 °C

---

## ***CONCLUSION***

---

## Conclusion générale

L'utilisation d'un plan d'expérience plus précisément le modèle de Box-Behnken nous a permis d'organiser au mieux les expériences avec sûreté et précision d'une façon économique et rationnelle, et qu'une bonne élimination des polluants nécessite une bonne connaissance des propriétés, effets et interactions de ces paramètres (pH, la dose et la température) pour obtenir un résultat optimal.

D'après le diagramme de Pareto on a trouvé que le facteur le plus influant sur le taux d'élimination de l'Amoxicilline est la température, et la dose pour le Paracétamol.

Puis l'étude des graphiques des effets principaux nous a permis de suivre l'évolution de ce dernier en fonction du pH, dose et Température, par la suite on a étudié les interactions entre les paramètres choisis qui nous ont permis d'obtenir le meilleur taux d'élimination en variant la dose et le pH pour un taux qui est de 85 % nécessite une dose de 0,1125 g et pH = 7 pour l'Amoxicilline, et pour le Paracétamol une dose de 0,2 g et un pH = 7 afin d'atteindre un taux d'élimination de 95 %.

Ensuite en variant la température et le pH pour des valeurs de 35 °C et pH = 7 on obtient le taux d'élimination d'Amoxicilline de 88 %, et pour le Paracétamol soit on travaille à T = 25 °C et pH = 2 ou à T = 45 °C et quel que soit le pH on aura un taux d'élimination supérieur à 95 %.

Pour les interactions entre la dose et la température concernant l'Amoxicilline la dose doit être égale à 0,1125 g et T = 35 °C pour aboutir à un taux de 85 %, et une dose de 0,2 g et T = 45 °C pour un meilleur taux d'élimination du Paracétamol égale à 98 %.

Puis on a confirmé ces résultats d'une manière plus détaillée à travers les diagrammes de contour pour chaque polluant.

A la fin pour l'obtention d'un taux d'élimination optimal de l'amoxicilline de 96,7139 %, il faut respecter les conditions suivantes : pH = 4,8283, dose = 0.0745 g et T = 45°C.

Et pour avoir un taux d'élimination optimal du Paracétamol de 100 %, il faut respecter les conditions suivantes : pH = 11,4528, dose = 0,1161 g et T = 45 °C.

On a remarqué que les interactions entre l'adsorbat et l'adsorbant changent en fonction du pH de la solution, que la quantité d'adsorbant soit dans un intervalle bien précis afin d'éviter un surdosage inefficace, l'adsorption d'une façon générale est favorisée dans les basses température.

## *Références bibliographiques*

- [1] M. Streat., J. Patrick, W. Pérez, M.J. Sorption of phenol and para-chlorophenol from water using conventional and novel activated carbons. *Water Res.*, 29, 467-472, 1995.
- [2] Desjardins., 1990; El Azzouzi., 1999; Arias ET coll., 2002.
- [3] R. Lauwerys. *Toxicologie industrielle et intoxications professionnelles*, 3e édition, Masson, Paris. (1990).
- [4] J. Demonsant, (1996). *Comprendre et mener des plans d'expériences*, AFNOR, Paris.
- [5] J. Goupy, (1999). *Plans d'expériences pour surface de réponses*, Ed : Dunod. Paris.
- [6] J. Goupy, (2005). *Pratiquer les plans d'expériences*. Ed : Dunod. Paris. Pp 551.
- [7] J. Goupy, (2006). *Introduction aux plans des expériences*. 3ème Ed : Dunod. Paris. Pp : 324.
- [8] J.J. Rousselle, Thèse de doctorat. *Les contours actifs, une méthode de segmentation application à l'imagerie médicale*. Université François Robelais, 2003.
- [9] J.J. Droesbeke, J. Fine, G. Saporta, *Plans d'expériences: applications à l'entreprise*. Editions TECHNIP, 1997.
- [10] J.J. Rousselle, Thèse de doctorat. *Les contours actifs, une méthode de segmentation application à l'imagerie médicale*. Université François Robelais, 2003.
- [11] 24 *Engineering statistics handbook*, Process Improvement, (Chapitre 5).
- [12] J. Goupy, *Les plan d'expérience*, revue MODULAD, 2006, 34, 74-116.
- [13] S. Nosrati, N. S. Jayakumar, M. A. Hashim, *Desalination*. 2011, 266, 286–290.
- [14] E.Y. Yazici, H. Deveci, *Hydrometallurgy*. 2013, 139, 30–38.
- [15] M. Cobas, M. A. Sanromán, M. Pazos, *Bioresource Technol.* 2014, 160, 166–174.
- [16] S. L. C. Ferreira, R. E. Bruns, H. S. Ferreira, G. D. Matos, J. M. David, G. C. Brand, E. G. P da Silva, L. A. Portugal, P.S. dos Reis, A. S. Souza, W. N. L., *Analytica Chimica Acta*. 2007, 597, 179–186.
- [17] C. H. Dong, X. Q. Xie, X. L. Wang, Y. Zhan, Y. J. Yao, *Food and bioproducts processing*, 2009, 87, 139–144.



**[18]** M. Sautour, P. Mary, N. E. Chihib, J. P. Hornez, *Journal of Applied Microbiology*, 2003, 95, 807–813.

**[19]** R. Lahlali, S. Massart, M. N. Serrhini, M. H. Jijakli, *International Journal of Food Microbiology*. 2008, 122, 100–108.

**[20]** H. Angellier, Thèse doctorat. Nanocristaux d'amidon de maïs cireux pour applications aux composites. Université Grenoble 1, 2005.