

République Algérienne Démocratique et Populaire Ministère de l'Enseignement  
Supérieur et de la Recherche Scientifique  
Université A. M. OULHADJ - Bouira  
Faculté des Sciences et des Sciences Appliquées  
Département de Génie des Procédés



# Mémoire

Présenté par

DJERIDANE Lotfi  
MADANI Aksel

Pour l'obtention du diplôme de :

## MASTER

*Filière: GENIE DES PROCÉDES*  
Spécialité : Génie chimique

**Procédé de photocatalyse hétérogène d'un  
polluant organique par les Hydroxydes doubles  
lamellaires**

Devant le jury composé de :

KERNANI Redha	MCB	UAMO, Bouira	Examineur
GHEBRID Nassima	MCB	UAMO, Bouira	Examinatrice
AOUDJIT Farid	MCA	UAMO, Bouira	Encadreur
ZAABAR Aida	MCA	UAMO, Bouira	Co-encadreur

*Année universitaire : 2021/2022*

## *Remerciements*

Nous tenons tout d'abord à remercier Dieu le tout puissant et miséricordieux, qui nous a aidé et nous a donné la patience et le courage durant ces longues années d'étude.

Nos remerciements les plus vifs et sincères vont à nos parents pour leurs soutien permanent.

Nous voudrions présenter nos remerciements à notre encadreur monsieur **AOUDJIT Farid** et notre Co-encadreur Madame **ZAABAR Aida** nous voudrions également leur témoigner notre gratitude pour leurs patience et leurs soutien qui nous a été précieux, pour leurs aide, les conseils avisés, pour leurs supervision éclairée tout au long de la rédaction du mémoire, les encouragements prodigieux, et surtout leurs judicieux conseils.

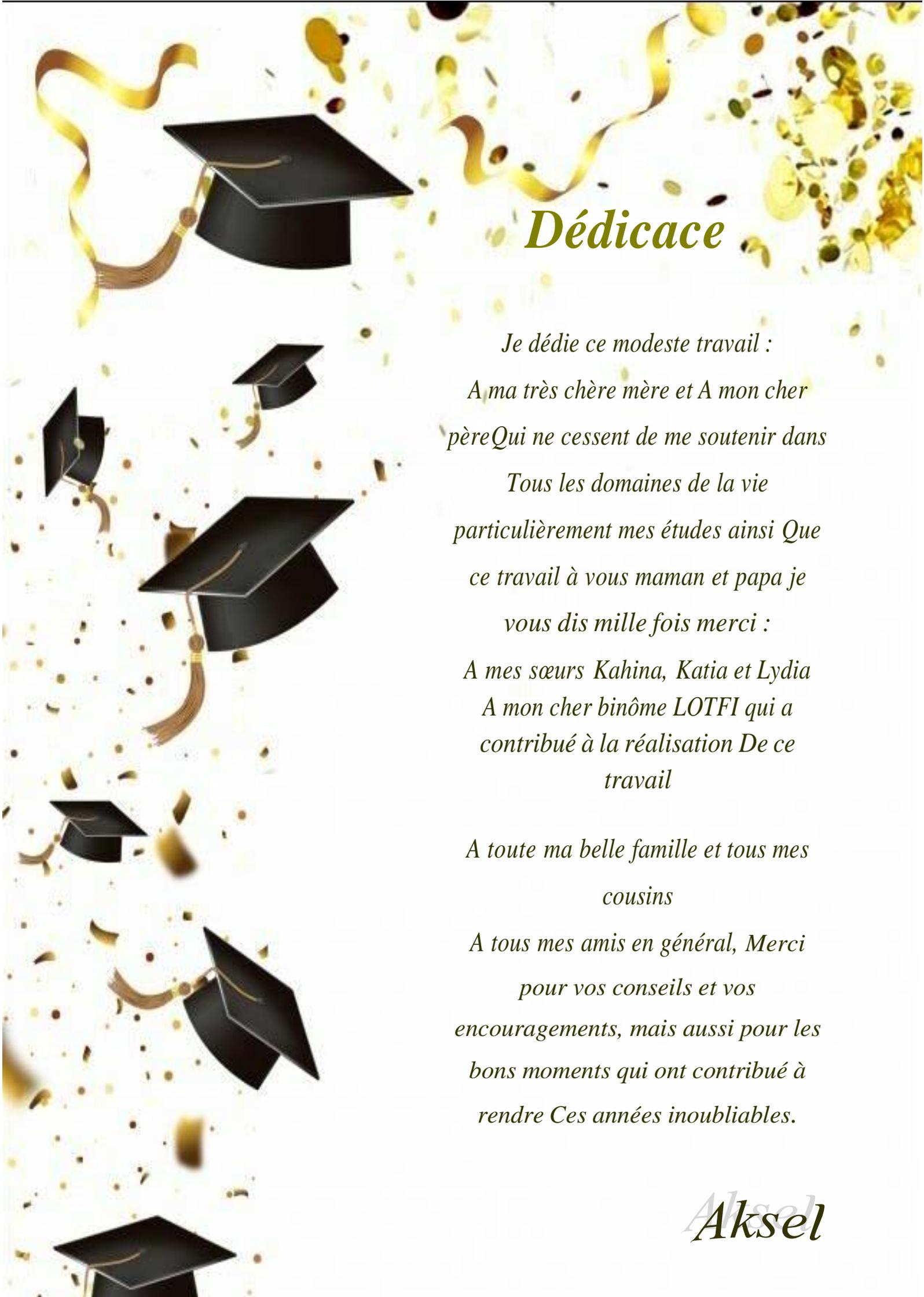
Que nos profondes gratitudes soient adressées aux membres du jury d'avoir accepté d'examiner ce manuscrit.

Encore, Nous tenons à remercier l'ensemble des enseignants qui ont participés à notre formation en génie des procédés.

Nous adressons un grand merci à toute l'équipe du Laboratoire pédagogique du département de Génie des Procédés de l'université de Bouira pour leurs conseils et leurs aides au cours de la réalisation de ce travail.

On tient aussi à remercier tout nos camarades avec qui ont à passer de merveilleuses années.

Enfin, nous rendons hommage et nous exprimons notre reconnaissance à tous ceux qui ont contribué, de près ou de loin, à la réalisation de ce travail.



# *Dédicace*

*Je dédie ce modeste travail :*

*A ma très chère mère et A mon cher  
père Qui ne cessent de me soutenir dans*

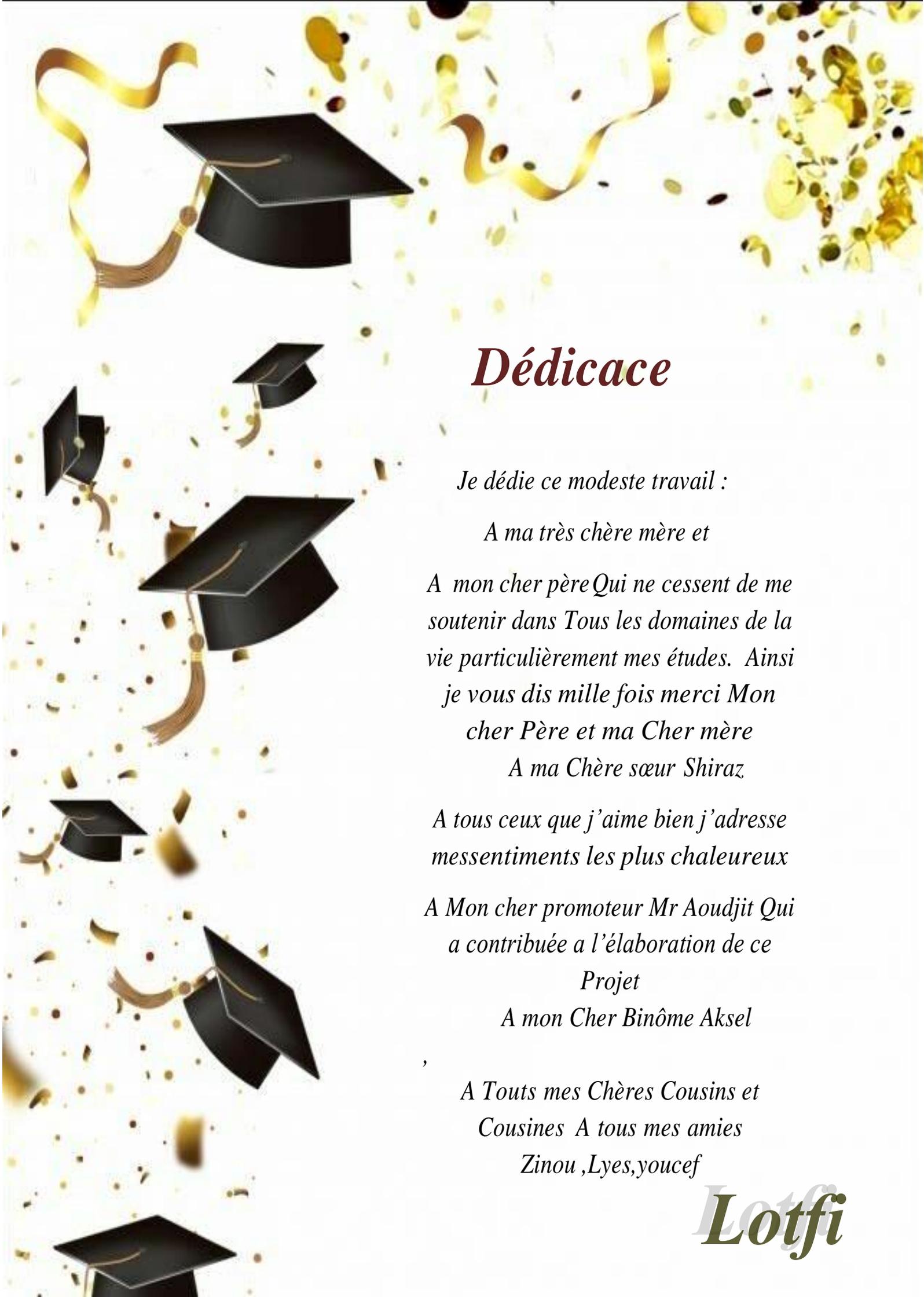
*Tous les domaines de la vie  
particulièrement mes études ainsi Que  
ce travail à vous maman et papa je  
vous dis mille fois merci :*

*A mes sœurs Kahina, Katia et Lydia  
A mon cher binôme LOTFI qui a  
contribué à la réalisation De ce  
travail*

*A toute ma belle famille et tous mes  
cousins*

*A tous mes amis en général, Merci  
pour vos conseils et vos  
encouragements, mais aussi pour les  
bons moments qui ont contribué à  
rendre Ces années inoubliables.*

*Aksel*



## *Dédicace*

*Je dédie ce modeste travail :*

*A ma très chère mère et*

*A mon cher père Qui ne cessent de me  
soutenir dans Tous les domaines de la  
vie particulièrement mes études. Ainsi  
je vous dis mille fois merci Mon  
cher Père et ma Cher mère*

*A ma Chère sœur Shiraz*

*A tous ceux que j'aime bien j'adresse  
messentiments les plus chaleureux*

*A Mon cher promoteur Mr Aoudjit Qui  
a contribué a l'élaboration de ce  
Projet*

*A mon Cher Binôme Aksel*

*A Touts mes Chères Cousins et  
Cousines A tous mes amies*

*Zinou ,Lyes,youcef*

*Lotfi*

# Sommaire

<i>Listes des figures</i>	
<i>Liste des tableaux</i>	
<i>Liste des abréviations</i>	
<b>Introduction Générale</b> .....	<b>- 1 -</b>

## Chapitre I: Pollution des eaux par les colorants et leurs traitements

<b>Introduction</b> :.....	<b>- 3 -</b>
<b>I.1.Définition d'un colorant</b> :.....	<b>- 3 -</b>
<b>I.2 Classification des colorants</b> : .....	<b>- 4 -</b>
I.2.1.Classification technologique: .....	- 4 -
I.2.2.Classification technique: .....	- 4 -
<b>I.2.2.1.Les colorants naturels</b> :.....	<b>- 5 -</b>
<b>I.2.2.2.Les colorants synthétiques</b> : .....	<b>- 5 -</b>
I.2.3.Classification chimique : .....	- 6 -
<b>I.2.3.1.Les colorants azoïques</b> : .....	<b>- 6 -</b>
<b>I.2.3.2.Les colorants anthraquinoniques</b> : .....	<b>- 6 -</b>
<b>I.2.3.3.Les colorants indigoïdes</b> :.....	<b>- 7 -</b>
<b>I.2.3.4.Les colorants triphénylméthanes</b> : .....	<b>- 7 -</b>
<b>I.2.3.5. Les colorants xanthènes</b> : .....	<b>- 7 -</b>
<b>I.2.3.6.Les phtalocyanines</b> : .....	<b>- 8 -</b>
<b>I.2.3.7. Les colorants nitrés et nitrosés</b> :.....	<b>- 8 -</b>
I.2.4.La classification tinctoriale: .....	- 9 -
<b>I.3.Applications des colorants</b> :.....	<b>- 11 -</b>
<b>I.4.Toxicité des colorants</b> : .....	<b>- 11 -</b>
<b>I.5.Impact des colorants sur l'environnement</b> :.....	<b>- 12 -</b>
<b>I.6.Méthodes de traitements des effluents contaminés par les colorants</b> :.....	<b>- 12 -</b>
I.6.1.Méthodes physiques : .....	- 13 -
<b>I-6-1-1. Coagulation-floculation</b> :.....	<b>- 13 -</b>
<b>I-6-1-2. Filtration sur membranes</b> : .....	<b>- 13 -</b>
<b>I-6-1-3. Adsorption</b> :.....	<b>- 14 -</b>
I-6-2. Méthodes chimiques : .....	- 14 -
I.6.3.Méthodes biologiques :.....	- 14 -
<b>I-6-3-1. Traitement aérobie</b> : .....	<b>- 15 -</b>
<b>I-6-3-2. Traitement anaérobie</b> : .....	<b>- 15 -</b>

## Chapitre II: Phénomène d'adsorption

<b>II.1.Définition de l'adsorption</b> : .....	<b>- 16 -</b>
<b>II.2.Types d'adsorption</b> : .....	<b>- 16 -</b>
II.2.1.Adsorption physique (physisorption) : .....	- 16 -

II-2-2 L'adsorption chimique (chimisorption):.....	- 17 -
<b>II.3.-Cinétique d'adsorption :</b> .....	<b>- 17 -</b>
II.3.1.Modèle cinétique du premier ordre :.....	- 17 -
III.3.2.Modèle du pseudo-second ordre :.....	- 18 -
<b>I.4.Mécanisme d'adsorption :</b> .....	<b>- 18 -</b>
<b>I.5.Isothermes d'adsorption :</b> .....	<b>- 19 -</b>
II.5.1.Classe S :.....	- 20 -
II.5.2.Classe L :.....	- 20 -
II.5.3.Classe H :.....	- 20 -
II.5.4.Classe C :.....	- 20 -
<b>II.6.Modèles d'isothermes d'adsorption :</b> .....	<b>- 21 -</b>
II.6.1.Modèle de Langmuir :.....	- 21 -
I.6.2.Isotherme de Freundlich :.....	- 22 -
II.6.3 Modèle de Temkin:.....	- 22 -

### Chapitre III: Hydroxydes doubles lamellaires

<b>III.1.Définition :</b> .....	<b>- 24 -</b>
<b>III.2.Description structurale des HDL :</b> .....	<b>- 24 -</b>
III.2.1.Composition des feuillets : nature de $M^{II}$ et $M^{III}$ :.....	- 25 -
III.2.2. Composition et description du domaine interlamellaire :.....	- 26 -
<b>III.3. Méthodes de synthèse des HDL :</b> .....	<b>- 26 -</b>
III.3.1.Co-précipitation directe :.....	- 27 -
III.3.2.La méthode Urée :.....	27
III.3.3.Reconstruction :.....	27
<b>III.4.Application des HDL :</b> .....	<b>- 28 -</b>
III.4.1.Catalyse et catalyse supportée :.....	- 29 -
III.4.2.Le domaine médical :.....	- 29 -
III.4.3.Application environnementale :.....	- 29 -
III.4.4.Applications électrochimiques :.....	- 30 -
III.4.5.Applications pharmaceutiques :.....	- 30 -
III.4.6.Applications diverses :.....	- 30 -

### Chapitre IV: Synthèse et caractérisation des HDL

<b>Introduction :</b> .....	<b>- 31 -</b>
<b>IV.1 Protocol expérimental de synthèse de matériaux HDL :</b> .....	<b>- 31 -</b>
<b>IV.2.Caractérisation physico-chimique de matériaux :</b> .....	<b>- 33 -</b>
IV.2.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier :.....	- 33 -
IV.2.2.Diffraction des rayons X :.....	- 34 -
IV.2.3. Détermination de Point de charge nulle (PZC) :.....	- 35 -

## Chapitre V: Adsorption de polluant par les HDL

<b>V.1. Polluant étudié :</b> .....	<b>- 37 -</b>
<b>V.2. Protocol expérimental d'adsorption</b> .....	<b>- 38 -</b>
<b>V.3. Optimisation des paramètres opératoires :</b> .....	<b>- 38 -</b>
V.3.1. Optimisation de la masse de l'absorbant :.....	- 38 -
V.3.2. Optimisation de la concentration initiale du polluant :.....	- 40 -
V.3.3. Optimisation du pH de la solution :.....	- 41 -
<b>V.4. Cinétique d'adsorption :</b> .....	<b>- 43 -</b>
V.4.1. Cinétique d'adsorption de pseudo premier ordre : .....	- 43 -
V.4.2. Cinétique d'adsorption du pseudo seconde ordre :.....	- 44 -
<b>V.5. Isothermes d'adsorption :</b> .....	<b>- 46 -</b>
V.5.1. Isotherme de Langmuir : .....	- 47 -
V.5.2. Isotherme de Freundlich :.....	- 48 -
V.5.3. Isotherme de Temkin : .....	- 50 -
<b>Conclusion Générale</b> .....	<b>- 50 -</b>
<b>Références bibliographiques :</b> .....	<b>- 50 -</b>
<b>Résumé</b>	

# Liste des figures:

Figure : I.1 : Quelques colorants naturels. ....	- 5 -
Figure : I.2: Structure d'un colorant azoïque .....	- 6 -
Figure I.3 : Structure d'un anthraquinonique. ....	- 6 -
Figure : I.4 : Structure d'un colorant indigoïdes.....	- 7 -
Figure I.5 : Structure d'un colorant triphénylméthane.....	- 7 -
Figure I.6 : Structure d'un colorant xanthène.....	- 8 -
Figure I.7 : Structure d'un colorant phtalocyanine. ....	- 8 -
Figure I.8: Structure des colorants nitrés et nitrosés.....	- 8 -
Figure II.1 : Représentation du Phénomène d'adsorption. ....	- 16 -
Figure II-2 : Mécanisme de l'adsorption .....	- 19 -
Figure II.3: Classes des isothermes d'après Gilles et al (Liquide-solide) .....	- 19 -
Figure III.1: Présentation générale des HDL .....	- 24 -
Figure III-2. Principe de la reconstruction (ou effet de mémoire) .....	- 28 -
Figure III-3 : Domaine d'application des HDL.....	- 28 -
Figure IV.1: Différentes étapes de la synthèse du matériau HDL .....	- 32 -
Figure IV.2: Spectres Infrarouges de matériaux : Mg(2)Al-HDL et Mg(2)Al-HDL-C.....	- 33 -
Figure IV.3:Diffractogrammes des rayons X de matériaux Mg(2)Al-HDL et Mg(2)Al-HDL-C.....	- 35 -
Figure IV.5: Détermination De point de charge nulle pHPZC de matériaux HDL.....	- 36 -
Figure V.1 : Effet de la masse d'adsorbant sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné .....	- 39 -
Figure V.2 : Effet de la masse d'adsorbant sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL non calciné ...	- 39 -
Figure V.3 : Effet de la concentration initiale sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné ...	- 40 -
Figure V.4 : Effet de la concentration initiale sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL non calciné	- 41 -
Figure V.5 : Effet du pH de la solution sur l'adsorption du Tartrazine .....	- 42 -
Figure V.6 : Cinétique du pseudo premier ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur HDL .....	- 43 -
Figure V.7 : Cinétique du pseudo premier ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur HDL calciné ...	- 44 -
Figure V.8 : Cinétique du pseudo deuxième ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL .....	- 45 -
Figure V.9 : Cinétique du pseudo deuxième ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné	- 45 -
-	
Figure V.10 : Isothermes de Langmuir pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL .....	- 47 -
Figure V.11 : Isothermes de Langmuir pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné .....	- 48 -
Figure V.12 : Isothermes de Freundlich pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL .....	- 49 -
Figure V.13 : Isothermes de Freundlich pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné .....	- 49 -
Figure V.14 : Isothermes de Temkin pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL .....	- 50 -
Figure V.15 : Isothermes de Temkin pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné .....	- 51 -

# *Liste des tableaux:*

Tableau I.1: Principaux chromophores et auxochromes .....	- 4 -
Tableau I.2: classification tinctoriale .....	- 9 -
Tableau V.1 : Propriétés physico-chimique du polluant étudié (Tartrazine) .....	- 37 -
Tableau V.2 : Paramètres cinétiques de l'adsorption du Tartrazine sur le HDL et le HDL calciné.....	- 46 -
Tableau V.3 : Paramètres des isothermes de l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné et le non calciné .....	- 51 -

# Liste des abréviations

**HDL** : Hydroxyde double lamellaire

**$C_0$**  : Concentration initiale en soluté (mg/g)

**$C_e$**  : Concentration du soluté à l'équilibre (mg/g)

**$K_f$**  : Constante de Freundlich (mg/g)

**$K_L$**  : Constante de Langmuir (L/mg)

**$K_t$**  : Constante de Temkin (L/g)

**$K_1$**  : Constante de vitesse d'adsorption du model pseudo-premier ordre ( $\text{min}^{-1}$ )

**$K_2$**  : Constante de vitesse d'adsorption du model pseudo-second ordre (g/mg min)

**$Q_e$**  : Quantité du soluté retenue à l'équilibre par unité de masse de HDL (mg/g)

**$Q_m$**  : Quantité maximale du soluté retenue par unité de masse de HDL (mg/g)

**$Q_t$**  : Quantité adsorbée à un instant (t) par unité de masse de HDL (mg/g)

**$t$**  : Temps (min)

**$m$**  : Masse de l'adsorbant (g)

**$T$**  : Température ( $^{\circ}\text{C}$ )

**$V$**  : Volume de la solution (ml)

**FTIR**: Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier

**DRX**: Diffraction des rayons X

**R**: Coefficient de corrélation

**$\lambda_{max}$**  : Longueur d'onde maximale

**IR** : Infrarouge

**A** : Absorbance

**T** : Transmittance

**UV** : Ultraviolet-visible

**IRTF** : La Spectroscopie Infrarouge à transformer de Fourier.

**UV-Vis** : Spectrophotomètre UV-visible.

# Introduction Générale

## *Introduction Générale*

L'eau n'est pas seulement une ressource, mais aussi une source de vie. Il doit être classé comme un patrimoine universel qui doit être protégé, défendu et traité. Nous avons tous la responsabilité d'assurer un approvisionnement en eau sain, sûr et durable pour les personnes, l'environnement et l'économie [1]. L'eau est utilisée à des fins domestiques, industrielles ou agricoles, qui nécessitent toutes de grandes quantités d'eau de haute qualité.

Mais dans ses divers usages, l'eau est souvent polluée. Il est rejeté dans le milieu naturel sous forme d'eaux usées plus ou moins polluantes, ce qui peut avoir des conséquences graves sur la santé et la santé publique ainsi que sur l'environnement à court ou long terme, avec des impacts économiques importants [2].

La pollution de l'eau, qui menace la consommation en raison de sa toxicité, doit faire l'objet d'une attention particulière. Le traitement des eaux usées est souvent une préoccupation pour les agences internationales [3].

Lors du développement de nouveaux procédés de traitement des eaux usées, les recherches portent sur le développement de nouveaux matériaux à adsorption ou dégradation efficace et sélective des polluants. Les hydroxydes doubles lamellaires (HDL) sont une classe de matériaux avec un grand potentiel d'application dans la purification des eaux ; à la fois en raison de leurs propriétés, mais aussi de leur synthèse simple et peu coûteuse [4].

Notre étude a été consacrée à l'évaluation de la capacité de nouvelles matrices adsorbantes carbonatées de type hydrotalcite à base de magnésium (Mg) et d'aluminium (Al) et de leurs produits calcinés à éliminer le colorant tartrazine des solutions aqueuses.

La recherche porte sur l'impact de certains paramètres de fonctionnement, tels que :  
La concentration initiale du colorant, pH de la solution et la masse de l'absorbant. Les isothermes et la cinétique d'adsorption ont été étudiées pour déterminer les conditions optimales d'élimination de ces colorants sur ces matériaux.

Notre travail se divise en deux parties :

Une partie théorique, consacrée à la contamination des eaux par les colorants et à son traitement, sur les phénomènes d'adsorption, suivie des hydroxydes doubles lamellaire.

Une partie expérimentale, dans cette partie nous examinerons en premier lieu la synthèse par la méthode de coprécipitation des matériaux de type HDL et puis la caractérisation de ces HDL obtenus. En

deuxième lieu on a procédé à l'élimination d'un colorant (le Tartrazine) par adsorption sur les hydroxydes doubles lamellaires synthétisés. L'étude de cette adsorption a été faite selon les étapes suivantes :

- Etude de l'influence des paramètres opératoires (masse d'adsorbant, concentration initiale en polluant et le pH de la solution).
- Etude de la cinétique d'adsorption.
- Etude des isothermes d'adsorption.

Enfin nous terminerons notre travail par une conclusion générale.

*Chapitre I:*  
*Pollution des eaux par les colorants*  
*et leurs traitements*

Introduction :

Actuellement, les colorants utilisés pour teindre les textiles sont presque exclusivement des produits chimiques de synthèse industrielle dérivés du goudron et du pétrole [5].

Depuis la naissance de l'être humain, les teintures ont été appliquées dans presque tous les domaines de notre vie quotidienne, pour la peinture, la teinture du papier, la teinture de la peau et des vêtements, etc... Jusqu'au milieu du XIXe siècle, les teintures utilisées étaient d'origine naturelle. Des pigments inorganiques tels que l'oxyde de manganèse, l'hématite de graphite sont utilisés. De plus, les colorants sont tous des composés aromatiques, principalement issus de plantes, comme l'alizarine et l'indigo.

La pollution des eaux due aux décharges des effluents colorés par l'industrie du textile est l'une des majors responsabilités environnementales dans notre époque. Il est fort possible que ces colorants peuvent contenir des groupes fonctionnels naturels ou issus de réactions chimiques ou de synthèse [6].

Il existe plusieurs méthodes physiques, chimiques et biologiques pour traiter et décolorer les eaux usées contaminées, telles que la coagulation et la floculation, la biodégradation, la filtration membranaire, l'oxydation chimique, l'ozonation, l'échange d'ions, les méthodes électrochimiques et l'adsorption.

La technologie d'adsorption est la méthode d'élimination de colorant la plus avantageuse. Elle est devenue une méthode analytique de choix, très efficace et simple d'utilisation [6].

1.1.Définition d'un colorant :

Les colorants sont définis comme des produits pouvant être colorés de manière durable, une substance grâce à des groupes qui lui attribuent une couleur : appelés chromophores et le groupe qui permet de le fixer : auxochromes. [7]

Les colorants sont connus pour leur capacité à absorber les radiations lumière dans le spectre visible (de 400 à 800 nm) par absorption sélective d'énergie groupe atomique auquel attribuer des couleurs. Plus il est facile pour ces atomes de donner des électrons Plus la taille est grande, plus la couleur est foncée. [8]

Le tableau suivant représente les principaux chromophores et auxochromes

**Tableau V. 1:** Principaux chromophores et auxochromes [9].

<b>Groupes chromophores</b>	<b>Groupes auxochromes</b>
Azo (-N=N-)	Amino (-NH <sub>2</sub> )
Nitroso (-N=O)	Méthylamino (-NHCH <sub>3</sub> )
Carbonyl (>C=O)	Diméthylamino (-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> )
Vinyl (-C=C-)	Hydroxyl (-OH)
Nitro (-NO <sub>2</sub> )	Alkoxyl (-OR)
Sulphure (>C=S)	Groupes donneurs d'électrons

## 1.2 Classification des colorants :

Les colorants synthétiques sont classés selon leur structure chimique et leur méthode d'application sur différents substrats (textiles, papier, cuir, matières plastiques, etc.).

### 1.2.1. Classification technologique:

La classification technologique permet aux utilisateurs de connaître les modèles d'application du colorant, donc son domaine d'utilisation, ses propriétés (solubilité, affinité pour ce type de fibre ou de matériau, type de fixation, etc.). Souvent, il est difficile de connaître la composition chimique du colorant car les ingrédients sont gardés secrets la chimie est généralement préservée. Cette classification comprend trois éléments :

- le nom générique de la classe d'application ;
- Couleur ;
- Le numéro chronologique enregistré dans "Color Index" [10].

### 1.2.2. Classification technique:

Les colorants utilisés dans l'industrie textile contiennent souvent des groupes acides sulfoniques, les rendant bien solubles dans l'eau et permettant les molécules de colorant sont liées ioniquement aux sites chargés du réseau polymère du tissu [11].

Les colorants organiques peuvent être divisés en deux catégories selon la méthode de synthèse :

- colorants naturels
- Teintures synthétiques.

**I.2.2.1. Les colorants naturels :**

Vers la fin du 19<sup>ème</sup> siècle, les couleurs ne pouvaient être obtenues qu'à partir d'éléments naturels. Les premiers colorants connus sont ceux utilisés à Lascaux (France) ou à Altamira (Espagne), datant du Magdalénien. Ces colorants étaient des pigments minéraux : oxydes de fer pour les jaunes, les ocres et les rouges, oxydes de manganèse pour les bruns. Dès 1500 avant notre ère, les Égyptiens réalisent des teintures [12].



**Figure: I.1 :** Quelques colorants naturels.

Dès lors, la majorité des colorants utilisés était d'origine végétale. Ils sont extraits des plantes, des arbres ou des lichens, ou bien d'origine animale, extraits des insectes comme le kermès ou des mollusques comme la pourpre [13].

**I.2.2.2. Les colorants synthétiques :**

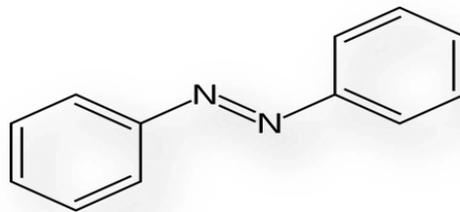
Les colorants synthétiques dominent aujourd'hui le marché surtout que leurs propriétés peuvent être précisément adaptées à leur utilisation. Tous ces colorants sont synthétisés principalement à partir des produits pétroliers, notamment du benzène et de ses dérivés (toluène, naphthalène, xylène et anthracène) [14]. Ils sont de plus en plus utilisés dans les industries de coloration et des textiles grâce à leur synthèse assez facile, à leur production rapide et à la variété de leurs couleurs comparées aux colorants naturels [15].

### I.2.3. Classification chimique :

Le classement des colorants selon leur structure chimique repose sur la nature du groupe chromophore [16] :

#### I.2.3.1. Les colorants azoïques :

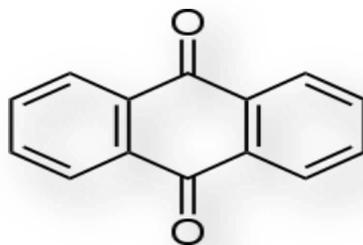
Les colorants azoïques sont caractérisés par la présence d'un groupe azoïque (-N=N-) reliant deux cycles benzéniques au sein de la molécule. Cette classe de colorants est très développée et est actuellement la plus populaire en termes d'applications car elle représente plus de 50% de la production mondiale de colorants [16-17]. La présence de ces composés dans les eaux usées industrielles a des effets dangereux sur l'environnement et la santé humaine car ils sont stables et résistants à la biodégradation [18].



**Figure I.2:** Structure d'un colorant azoïque

#### I.2.3.2. Les colorants anthraquinoniques :

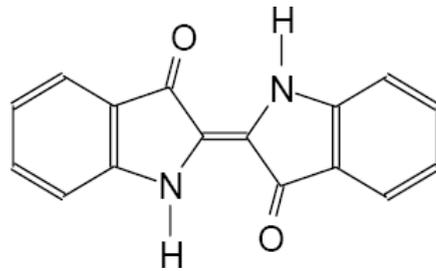
Ils constituent la classe de colorants la plus importante après les colorants azoïques. Leurs teintes bleues et turquoise complètent les colorants azoïques jaunes et rouges. La molécule de base de ce groupe de colorants est l'antraquinone, qui présente le chromophore carbonyle  $>C=O$  [19] sur le cycle quinone comme chromophore. Ces produits sont utilisés pour colorer les fibres de polyester, d'acétate et d'acétate de tricellulose [20].



**Figure I.3 :** Structure d'un anthraquinonique.

### I.2.3.3. Les colorants indigoïdes :

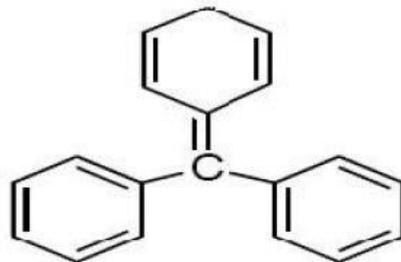
Les colorants indigo tirent leur nom de leur source, l'indigo. Ainsi, l'homologue sélénium, soufre et oxygène de l'indigo conduisent à des effets sous-chromatiques significatifs, allant de l'orange au turquoise. Les colorants indigo sont utilisés comme colorants dans les textiles, les produits pharmaceutiques, la confiserie et les additifs dans les diagnostics médicaux [21-22].



**Figure: I.4 :** Structure d'un colorant indigoïdes.

### I.2.3.4. Les colorants triphénylméthanés :

Les colorants triphénylméthanés la plus ancienne classe de colorants synthétiques est constituée de triphénylméthane, un hydrocarbure dont la structure comporte trois cycles benzéniques attachés à un carbone central. Cette combinaison existe dans un grand nombre de composés organiques colorés [23].



**Figure I.5 :** Structure d'un colorant triphénylméthane

### I.2.3.5. Les colorants xanthènes :

Les xanthènes sont des composés organiques tricycliques. Ils sont constitués d'un cycle pyranne et de deux cycles benzéniques. Les colorants de cette famille se caractérisent par une fluorescence intense. Ils sont utilisés comme colorants alimentaires, cosmétiques, textiles et impression [24].

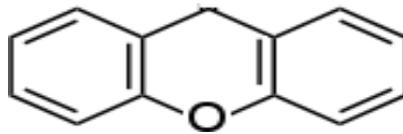


Figure 1I.6 : Structure d'un colorant xanthène.

### 1.2.3.6. Les phtalocyanines :

Les colorants de ce type sont caractérisés par des structures complexes avec des atomes centraux métalliques. Ils sont obtenus par réaction de dicyanobenzène en présence d'halogénures métalliques (Cu, Ni, Co, Pt, etc.). Ils sont principalement utilisés pour fabriquer des encres [20].

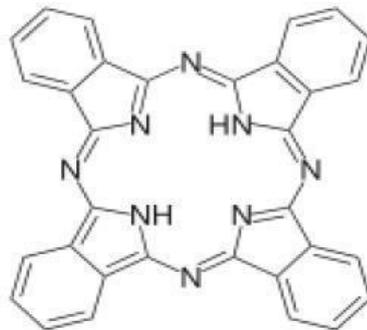


Figure 1I.7 : Structure d'un colorant phtalocyanine.

### 1.2.3.7. Les colorants nitrés et nitrosés :

Les colorants nitro et nitrosés sont une classe de colorants très limitée et relativement ancienne. Ils sont encore utilisés aujourd'hui en raison de leur prix très modeste, lié à la simplicité de leur structure moléculaire, caractérisée par la présence d'un groupement nitro (NO<sub>2</sub>) en position ortho par rapport au groupement électrodonneur (hydroxyle ou amino) [25].

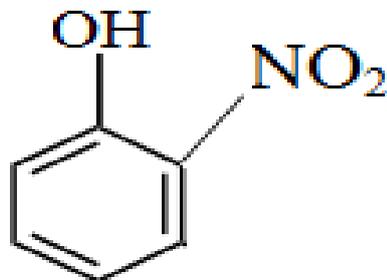
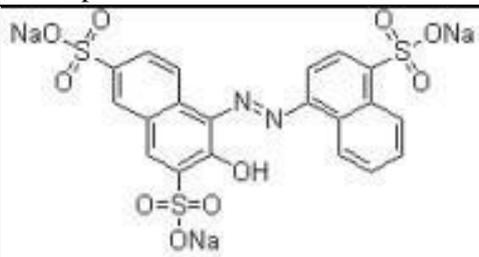
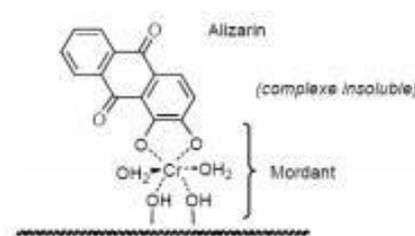
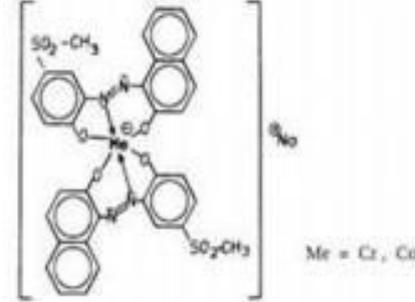
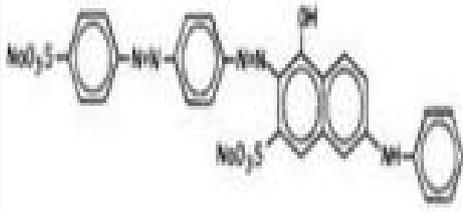


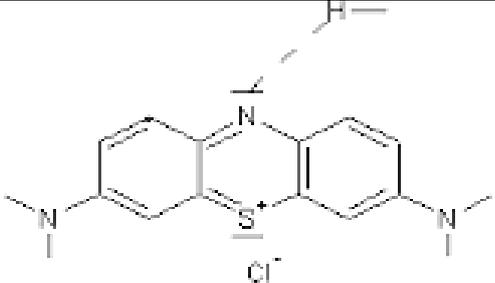
Figure 1I.8: Structure des colorants nitrés et nitrosés.

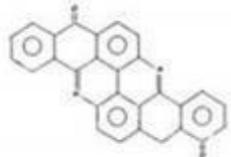
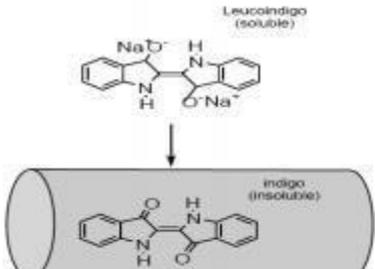
I.2.4.La classification tinctoriale:

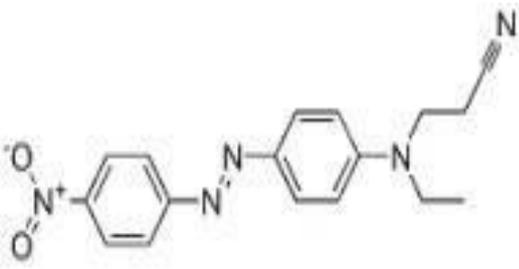
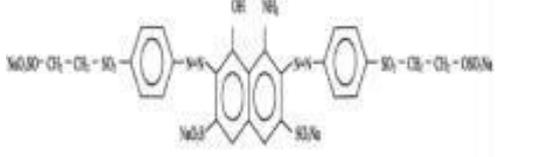
La classification tinctoriale est résumée dans le tableau suivant:

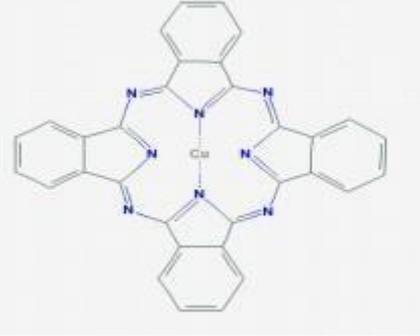
**Tableau I. 2:** classification tinctoriale [26]

Colorant	application	Systèmes	Exemple
-acides	- Polyamide (70 à 75 %) - laine (25 à 30 %) soie, fibres acryliques	azoïques	
mordant	-Laine -Soie	Azoïques avec du chrome favorisant sa fixation	<p>Alizarin (complexe insoluble)</p>  <p>Mordant</p>
Métallifères	-fibres polyamides	Mono-Azoïques Contenant des groupements carboxyles et aminés pour former des complexes métalliques (Cr, Co, Ni, Cu)	 <p>Me = Cr, Co</p>
Directs	-viscoïse, le lin, le jute, la soie, les fibres polyamides et le coton	Azoïques, longues structures moléculaires planes qui permettent à ces molécules de s'aligner avec les macromolécules plates de cellulose	
+Basiques (cationiques)	Fibres : Acryliques, polyamides	Azoïques contiennent un groupe mine quaternaire	

<p>Au soufre</p>	<p>Coton et viscose les polyamides et polyesters rarement la soie</p>	<p>Structure chimique exacte n'est pas toujours connue</p>	
------------------	---	--	--

<p>De Cuve et leurs leuco-esters</p>	<p>teinture et l'impression du coton et de fibres cellulosiques polyamide et de polyester avec des fibres cellulosiques</p>	<p>indigoïdes et anthraquinoniques</p>	<p>Colorant de cuve</p>  <p>Colorant leuco-esters</p> 
--------------------------------------	---	--	---

<p>Dispersés</p>	<p>Polyester fibres cellulosiques fibres de polyamide et d'acrylique</p>	<p>- Azoïques 50% - Anthraquinoniques (25 %), + méthine, nitro et naphthoquinone. <b>Caractéristiques :</b> l'absence de groupes de solubilisation et un poids moléculaire faible</p>	
<p>Réactifs</p>		<p>Azotiques, ont la particularité de posséder des groupements chimiques spécifiques capables de former des liaisons covalentes avec le support textile</p>	

Pigments	Utilisé dans les procédés d'impression	Les pigments organiques sont en grande partie des dérivés benzoïques. Les pigments inorganiques (minéraux) sont des dérivés de métaux tels que Ti, Zn, Ba, Pb, Fe, Mo, Ca, Al, Ma, Cd , Cr. Tableau I.3 : Classification d	
----------	--	--	--

**I.3.Applications des colorants :**

L'industrie des colorants constitue un marché économique considérable car de nombreux produits industriels peuvent être teints, principalement [27] :

- L'industrie du cuir et du textile : teinture et impression sur fibre et tissus de tous genres ; teinture du bain de filage des fibres chimiques ; teinture du cuir et des fourrures ;
- L'industrie de matières plastiques (pigments) : teinture des caoutchoucs, des feuilles et des matières plastiques ;
- L'industrie du bâtiment : peintures (pigments) : préparation des couleurs à la chaux pour les pré-colorations et enduits sur bâtiments ; colorants pour toutes les techniques de la peinture ; céramiques ;
- L'industrie pharmaceutique (colorants) ;
- L'industrie agroalimentaire (colorants et additifs alimentaires) ;
- Dans l'imprimerie (encre, papier).

**I.4.Toxicité des colorants :**

Les eaux usées de diverses industries telles que le textile, le papier, l'imprimerie, les plastiques, l'alimentation et les cosmétiques ont causé de très graves problèmes environnementaux. En raison de leur production à grande échelle et de leur application généralisée, les colorants synthétiques provoquent une pollution environnementale considérable et constituent un facteur de risque très grave pour la santé publique. Les colorants, en particulier les colorants basiques, ont une intensité de couleur élevée et sont plus prononcés même à des concentrations négligeables. Ils peuvent affecter l'activité

photosynthétique des organismes aquatiques en réduisant la pénétration de la lumière et sont également toxiques pour certaines espèces aquatiques en raison de la présence de métaux et d'hydrocarbures. De plus, ces colorants sont cancérigènes et peuvent causer de graves problèmes aux reins humains, au système reproducteur, au foie, au cerveau et au système nerveux central [28-29].

### 1.5. Impact des colorants sur l'environnement :

Les émissions industrielles (textiles, alimentaires, pharmaceutiques, etc.) rejettent dans les cours d'eau des eaux usées contenant des colorants qui peuvent gravement endommager les espèces végétales et animales, ainsi que les différents micro-organismes qui vivent dans ces eaux. Cette toxicité est associée à une réduction de l'oxygène dissous dans ces environnements. De plus, leur très faible biodégradabilité rend ces composés plus ou moins hautement toxiques (à la fois aigus et chroniques) en raison de leur poids moléculaire élevé et de leur structure complexe. De ce fait, ils peuvent persister longtemps dans ce milieu, provoquant une perturbation importante de divers mécanismes naturels présents dans la flore (capacité d'auto-épuration des cours d'eau, inhibition de la croissance des plantes aquatiques, etc.). Ainsi chez les animaux sauvages (détruisant une classe de poissons, de micro-organismes, etc.) [30].

### 1.6. Méthodes de traitements des effluents contaminés par les colorants :

- Au cours des différentes étapes de teinture, des quantités plus ou moins importantes de colorant sont perdues du fait du manque d'affinité avec la surface à teindre ou à colorer. Compte tenu de la composition hétérogène de ces déchets textiles, le traitement de ces déchets conduit souvent à concevoir des chaînes de traitement permettant d'assurer l'élimination des différents contaminants par étapes successives. La première étape consiste à éliminer la contamination insoluble par un prétraitement (criblage, dessalement, déshuilage, etc.) et/ou un traitement physique ou physico-chimique pour assurer la séparation solide-liquide. Il existe trois types de technologies de contrôle de la pollution les plus couramment utilisées dans la deuxième étape de l'industrie textile [31].
- Physique : précipitation (coagulation, floculation, sédimentation), adsorption (sur charbon actif), filtration membranaire (microfiltration, ultrafiltration, nanofiltration et osmose inverse).
- Chimique : l'oxydation (ozone, oxydants tels que NaOCl, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>), la réduction (Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), les résines échangeuses d'ions.

- Biologique : le traitement aérobie (en présence d'oxygène), ou le traitement anaérobie (en absence d'oxygène).

I.6.1.Méthodes physiques :

I-6-1-1. Coagulation-floculation :

La coagulation-floculation est un procédé qui permet de pallier cette absence de précipitation en deux étapes. Elle repose sur la difficulté de décantation naturelle de certaines particules, comme les colloïdes. Les particules colloïdales se caractérisent par deux points principaux : d'une part, elles ont des diamètres très petits (de 1 mm à  $\mu\text{m}$ ) et elles sont chargées négativement..

✓ **La coagulation :**

Dans une première étape, la coagulation, par un ajout de sels métalliques (généralement de fer ou d'aluminium), permet de supprimer les répulsions inter-colloïdales : les cations métalliques ( $\text{Al}^{3+}$  et  $\text{Fe}^{3+}$ ) se lient aux colloïdes et les neutralisent et alors les particules colloïdales peuvent désormais se rencontrer.

✓ **La floculation :**

La deuxième étape, la floculation peut résoudre le problème des colloïdes de petit diamètre. Le vrai problème est en fait la qualité, qui ne permet pas une précipitation naturelle et utilisable dans le cadre du traitement. Les coagulants inorganiques comme l'alun sont plus satisfaisants pour blanchir les eaux usées textiles contenant des colorants dispersés. [32], des colorants de cuve et des colorants soufrés, mais sont totalement inefficaces pour les colorants réactifs, les colorants azoïques, les colorants acides et les colorants basiques [33].

I-6-1-2. Filtration sur membranes :

La filtration membranaire hydraulique peut être une microfiltration, une ultrafiltration, une nanofiltration ou une osmose inverse. L'effluent traverse une membrane semi-perméable qui retient en amont les contaminants plus grands que le diamètre des pores et produit un perméat purifié et un concentré d'impuretés organiques. Parmi les quatre types de procédés, la nanofiltration et l'osmose inverse conviennent le mieux à la réduction partielle de la couleur et des petites molécules organiques, mais l'osmose inverse reste la plus répandue, comme dans Calabro et al. [vingt-deux].

La nanofiltration est principalement utilisée dans le traitement des bains de colorants réactifs en tant que filtres moléculaires, tandis que la microfiltration retient les matériaux

colloïdaux tels que les colorants dispersés ou de cuve.

**I-6-1-3. Adsorption :**

Au cours du processus d'adsorption, les contaminants sont transférés de la phase liquide à la phase solide. Par exemple, le charbon actif est l'adsorbant réducteur de couleur le plus couramment utilisé, mais cette méthode n'est efficace que pour certaines classes de colorants (cations, mordants, dispersants, agents réducteurs) [34] dans une certaine plage de pH [35] et Relativement constant concentration d'impuretés pour éviter les rejets dans les eaux usées. Il s'agit d'une technique non destructive, mais qui nécessite des opérations ultérieures coûteuses de régénération et de post-traitement des déchets solides.

L'utilisation de terres décolorantes telles que les argiles "activées", "modifiées" ou synthétiques dans la décoloration de solutions colorantes fait l'objet de plusieurs travaux en cours. Par exemple, les argiles décolorantes de type montmorillonite sont utilisées pour éliminer les colorants cationiques (colorants basiques) [36].ou encore les argiles type hydroxydes doubles lamellaires (HDL) dans l'élimination des colorants anioniques (colorants acides) [37-38].

**I-6-2. Méthodes chimiques :**

Les techniques d'oxydation chimique sont couramment utilisées pour traiter les composés organiques nocifs présents à de faibles concentrations, le prétraitement avant le traitement biologique et pour traiter les eaux usées contenant des composants résistants aux méthodes dites de biodégradation afin de réduire la toxicité aquatique [39].

Les deux réactifs les plus couramment utilisés pour ce type de traitement sont H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> et Cl<sub>2</sub>. Le peroxyde d'hydrogène est un oxydant puissant et son application dans le traitement des polluants organiques et inorganiques est largement reconnue [40]. Cependant, l'oxydation de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> seule n'est pas assez efficace pour des concentrations élevées de colorant. Hamada et al. [41] ont suggéré de traiter les colorants azoïques avec de l'hypochlorite de sodium. Il a été démontré que les halogènes forment des trihalométhanes, qui sont cancérigènes pour l'homme, ainsi que des sous-produits de dégradation, même lorsque la molécule d'origine est détruite [42].

**I.6.3.Méthodes biologiques :**

On entend par épuration biologique des eaux, la décomposition des polluants organiques dans l'eau par les microorganismes. Les procédés biologiques se divisent en deux types : Les traitements aérobies (présence d'oxygène) et anaérobies (absence d'oxygène).

**I-6-3-1. Traitement aérobie :**

Les contaminants sont décomposés par des bactéries aérobies et d'autres micro-organismes présents dans les boues, qui se déposent en unités biologiques. Les boues épurées sont séparées des eaux usées par sédimentation dans le décanteur, une partie est recyclée et le reste est évacué par pressage ou centrifugation. Si ces techniques sont adaptées à un grand nombre de polluants organiques, elles ne sont pas suffisamment efficaces pour les émissions textiles. [43], et la diminution de la coloration est principalement due à l'adsorption sur les boues, et pas seulement aux molécules de colorants. Seuls les colorants de structure chimique simple et de faible poids moléculaire et faiblement substitués ont des taux de décoloration importants [44].

**I-6-3-2. Traitement anaérobie :**

Contrairement à la biodégradation aérobie, la digestion anaérobie des composés organiques se déroule en l'absence d'oxygène et forme du dioxyde de carbone, du méthane et de l'eau. C'est un procédé efficace pour traiter les déchets à forte teneur en DCO, et le méthane formé peut être utilisé comme source d'énergie thermique. [43]. La dégradation de la molécule initiale conduit souvent à la formation d'amines plus toxiques que la molécule initiale, qui finit par pénétrer dans les sédiments aquifères peu profonds et les eaux souterraines [45].

Les méthodes biologiques traditionnelles sont inefficaces pour la plupart des colorants synthétiques en raison de leurs structures polyaromatiques complexes et de leurs propriétés réfractaires. Wenceslau et. Al. Estimé seulement 10-20% de réduction de la coloration par les processus biologiques, les colorants peuvent être utilisés pour créer une gamme de couleurs différentes. [46]

*Chapitre II:*  
*Phénomène d'adsorption*

### II.1. Définition de l'adsorption :

L'adsorption est un phénomène d'interface qui peut se produire entre un solide et un gaz, ou entre un solide et un liquide. Ce phénomène est commun à toutes les surfaces. A l'interface, les forces attractives intermoléculaires ne sont pas compensées dans toutes les directions, mais sont retenues par les forces résiduelles vers l'extérieur. Ces forces représentent l'énergie de surface par unité de surface, qui est comparable à la tension de surface du liquide. Ces forces sont neutralisées lorsque des particules en mouvement (gaz ou solutés) se déposent à la surface, et on dit qu'elles sont adsorbées [46].

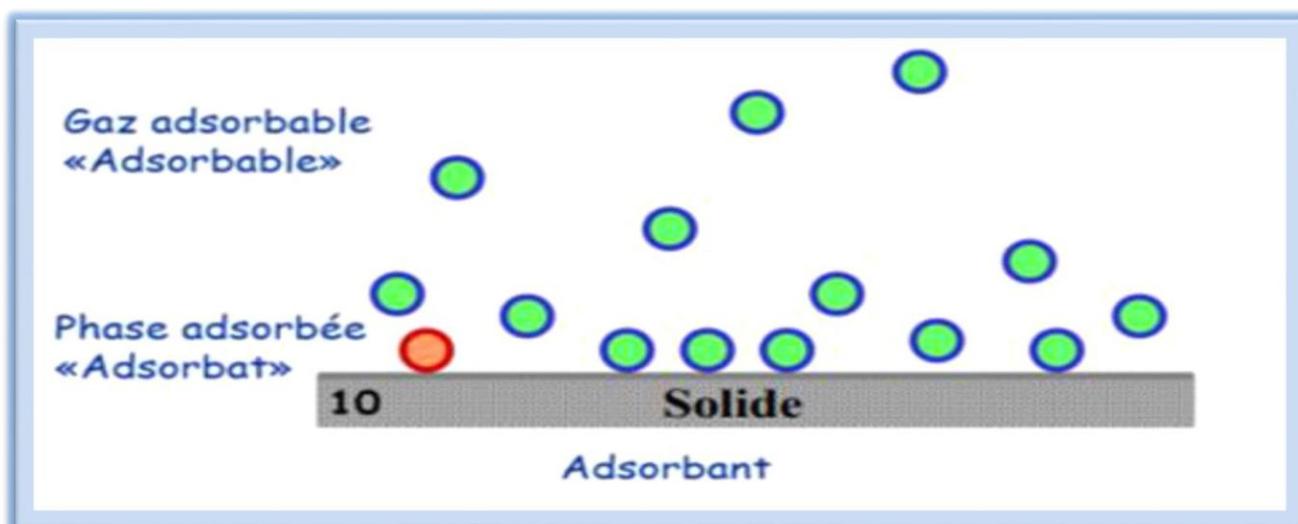


Figure II.1 : Représentation du Phénomène d'adsorption.

### II.2. Types d'adsorption :

On distingue deux types d'adsorption : l'adsorption physique (physisorption) et l'adsorption chimique (chimisorption).

#### II.2.1. Adsorption physique (physisorption) :

L'adsorption physique ou physisorption est un processus caractérisé par une énergie relativement faible (forces de van der Waals) entre un substrat solide et un substrat. Il s'agit également d'un processus réversible qui ne modifie pas la structure des molécules adsorbées. Ce phénomène se produit à basse température et à des énergies de l'ordre de 10 Kcal/mole.

II-2-2 L'adsorption chimique (chimisorption):

La chimisorption ou adsorption chimique est provoquée par la formation de liaisons chimiques entre l'adsorbant et le substrat. Celle-ci peut être covalente ou ionique. Par rapport à l'adsorption physique, elle implique une énergie d'adsorption plus élevée, environ 100 Kcal/mole. Le processus se déroule à des températures élevées et, de plus, il se caractérise par son irréversibilité [47].

II.3.-Cinétique d'adsorption :

L'équilibre thermodynamique entre l'adsorbant en phase liquide et l'adsorbant fixé sur le solide est atteint avec une vitesse qui dépend non seulement de la vitesse avec laquelle les constituants du mélange à séparer diffusent dans l'adsorbant et dans le fluide mais aussi de l'interaction adsorbant-adsorbant [49].

L'étude cinétique fournit des informations sur le mode de transfert des solutés de la phase liquide à l'intérieur des particules de l'adsorbant. Ils permettent aussi de déterminer certains paramètres cinétiques comme la constante de vitesse et la quantité maximale adsorbée à l'équilibre. Généralement trois modèles sont utilisés pour l'analyse de la cinétique d'adsorption [50] :

II.3.1.Modèle cinétique du premier ordre :

Le modèle cinétique du 1<sup>er</sup> ordre peut être exprimé par l'équation de Lagergren :

$$\frac{dQ}{dt} = K_1(Q_e - Qt)$$

- $K_1$  : constante de vitesse du premier ordre ( $\text{min}^{-1}$ ).  $t$  : temps de contact (min)
- $Q_e$  : capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g)
- $Q_t$  : quantité adsorbée (mg/g) par unité de masse du sorbant à l'instant  $t$ .

L'intégration de cette équation donne l'équation linéaire ci-dessous :

$$\ln(Q_e - Qt) = \ln Q_e - K_1 * t$$

III.3.2. Modèle du pseudo-second ordre :

La cinétique d'adsorption peut également dans certains cas suivre un modèle de pseudo-second ordre et son équation différentielle s'écrit [51]:

$$\frac{dQ}{dt} = K_2(Q_e - Q_t)^2$$

L'intégration de cette équation donne l'équation linéaire ci-dessous :

$$\frac{t}{Qt} = \frac{1}{K_2 Q_e^2} + \frac{1}{Q_e}$$

Avec :

- $Qt$  (mg/g) : quantité d'adsorbant adsorbée à l'instant  $t$ .
- $Q_e$  (mg/g) : quantité d'adsorbant adsorbée à l'équilibre.
- $K_2$ : constante de vitesse de Lagergren pour un processus d'ordre 2.

I.4. Mécanisme d'adsorption :

L'adsorption se produit en quatre étapes et la figure II-2 représente un matériau (adsorbant) avec les différents domaines dans lesquels peuvent se trouver les molécules organiques ou inorganiques susceptibles d'interagir avec le solide.

Avant son adsorption, le soluté va passer par les quatre étapes :

- 1) Diffusion de l'adsorbant de la phase liquide externe vers celle située au voisinage de la surface de l'adsorbant,
- 2) Diffusion extra-granulaire de la matière (transfert du soluté à travers le film liquide vers la surface des grains),
- 3) Transfert intra-granulaire de la matière (transfert de la matière dans la structure poreuse de la surface extérieure des grains vers les sites actifs),
- 4) Réaction d'adsorption au contact des sites actifs ; une fois adsorbée, la molécule est considérée comme immobile

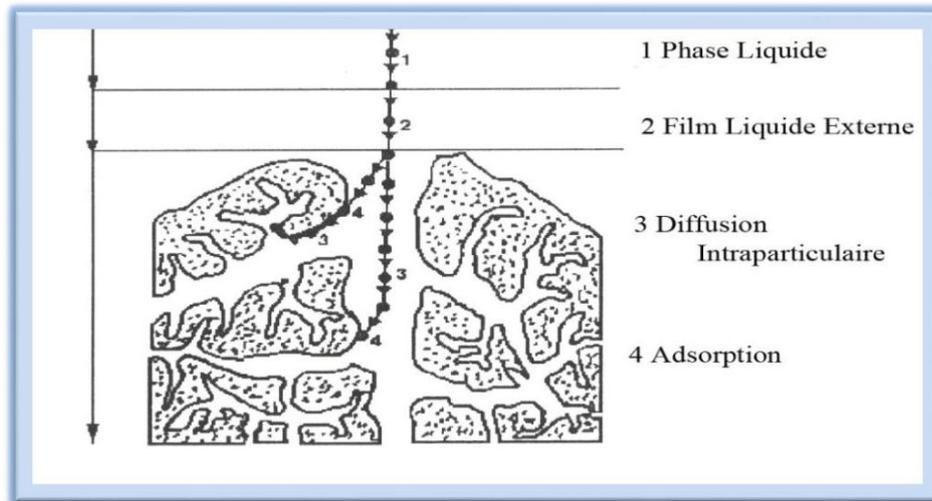


Figure II-2 : Mécanisme de l'adsorption [52].

**I.5.Isothermes d'adsorption :**

Une isotherme d'adsorption est une courbe expérimentale représentant l'évolution (masse ou volume)de substrat adsorbé (gaz ou liquide) par poids d'adsorbant en fonction de la concentration (phase liquide) ou de la pression (phase gazeuse). Ils sont généralement représentés sous la forme d'équations mathématiques [53]. Elles permettent essentiellement :

- De déterminer le taux de recouvrement de la surface d'un support par un substrat.
- D'identifier le type d'adsorption pouvant se produire.
- De choisir l'adsorbant qui conviendrait le mieux à la rétention de l'adsorbat.

Giles et Smith (1974) [54] ont répertorié quatre types d'isothermes dans le cas de l'adsorption moléculaire en phase liquide : les formes sont représentées sur **la figure II.3.**

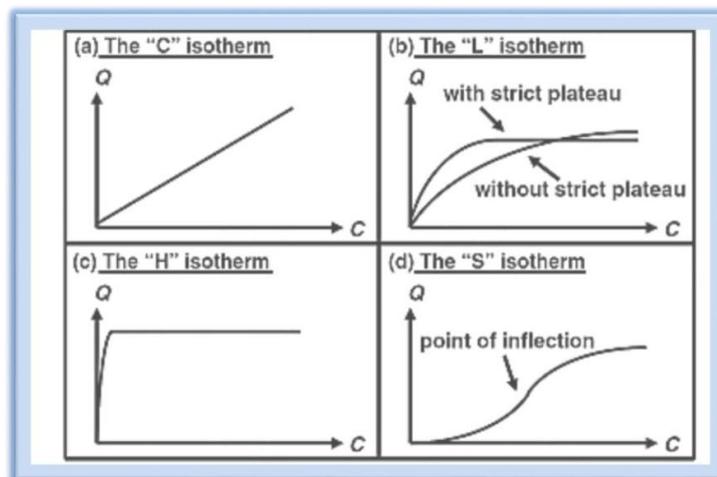


Figure II.3: Classes des isothermes d'après Gilles et al (Liquide-solide) [55].

Cette classification tient compte d'un certain nombre d'hypothèses [56]:

- le solvant s'adsorbe sur les mêmes sites que le soluté. Ceci implique l'existence d'une compétition d'adsorption entre le solvant et le soluté,
- le nombre de sites susceptibles d'accueillir les molécules de soluté à la surface du solide diminue quand la quantité adsorbée augmente,
- l'orientation des molécules à la surface : on peut citer le cas où les molécules sont adsorbées verticalement ou horizontalement sur la surface,
- enfin, les interactions attractives ou répulsives entre les molécules adsorbées se manifestent d'une façon notable dans le phénomène d'adsorption.

### II.5.1. Classe S :

A faible concentration, ces isothermes présentent une concavité vers le haut. La molécule adsorbée favorise plus tard l'adsorption d'autres molécules (co-adsorption), ce qui est dû au fait que les molécules s'attirent par les forces de van der Waals et s'agglutinent et s'empilent les unes contre les autres dans des îles.

D'une part, ce comportement favorise l'adsorption verticale des molécules de soluté, comme dans le cas des molécules à un seul groupement fonctionnel, et d'autre part, les molécules à forte compétition d'adsorption avec le solvant [57].

### II.5.2. Classe L :

La forme est hyperbolique, la courbe  $x/m = f(p/p_0)$  se rapprochant asymptotiquement d'une limite constante. Des isothermes de ce type se rencontrent lorsque les solides adsorbent les adsorbats monocouches et les chimisorptions : [58]

- $p$ : la pression partielle de l'adsorbant
- $p_0$ : la tension de vapeur du soluté,
- $p/p_0$  : l'activité ou saturation relative du soluté.

### II.5.3. Classe H :

Elles sont obtenues lorsqu'il existe une affinité entre l'adsorbant et l'adsorbant. Aux très faibles concentrations, la courbe ne part pas de zéro, mais d'une valeur positive sur l'axe du volume d'adsorption. Cette isotherme est considérée comme un cas particulier de l'isotherme L [59-60].

### II.5.4. Classe C :

Cette classe se caractérise par l'adsorption de molécules de soluté qui ont une forte affinité pour

l'adsorbant. Cela se produit lorsqu'il existe des sites d'adsorption concurrents entre le solvant et le soluté, et lorsque l'adsorption implique des molécules flexibles qui peuvent pénétrer dans les pores pour déplacer les molécules de solvant [61].

### II.6.Modèles d'isothermes d'adsorption :

Un certain nombre de modèles mathématiques représentant des isothermes ont été développés pour décrire la relation entre la masse de l'adsorbat immobilisé et la concentration de la solution à l'équilibre. On peut se référer à des modèles à deux paramètres (Langmuir, Freundlich, Temkin).

#### II.6.1.Modèle de Langmuir :

En 1916, Irving Langmuir publie une nouvelle isotherme qui porte encore aujourd'hui son nom. Ce modèle, qui calcule la capacité maximale d'adsorption et la constante d'adsorption, a été développé à l'origine pour tenir compte de l'adsorption des gaz sur des surfaces homogènes. Ce modèle repose sur plusieurs hypothèses [62-63] :

- Les sites d'adsorption à la surface du solide sont tous énergiquement équivalents.
- Chacun des sites ne peut fixer qu'une seule molécule.
- l'adsorption se fait en monocouche.
- Il n'y a pas d'interaction entre les molécules adsorbées.

Le modèle de Langmuir s'exprime sous la forme suivante :

$$Q_e = \frac{Q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e}$$

Avec :

- **Q<sub>e</sub>**: quantité de soluté adsorbée par unité de masse d'adsorbant à l'équilibre (mg/g).
- **Q<sub>m</sub>**: quantité maximale pour couvrir la surface d'un gramme d'adsorbant d'une couche monomoléculaire de soluté (mg/g).
- **C<sub>e</sub>** : concentration à l'équilibre en soluté de la solution (mg/L).
- **K<sub>L</sub>** : coefficient d'adsorption de Langmuir (L/mg).

Cette équation peut être linéarisée sous la forme suivante :

$$\frac{1}{Q_e} = \frac{1}{Q_m} + \frac{1}{K_L C_e Q_m}$$

I.6.2. Isotherme de Freundlich :

Il s'agit d'une équation empirique sans fondement théorique. Il est largement utilisé pour la représentation pratique des équilibres d'adsorption ; cependant, l'expérience montre qu'il décrit bien les résultats d'adsorption des micropolluants par des solides tels que le charbon actif, le sol et l'argile [64].

Elle se présente sous la forme [58] :

$$Q_e = K_f C_e^{n_f}$$

$K_f$  et  $1/n_f$ : constantes de Freundlich caractéristique de l'efficacité d'un adsorbant donné vis-à-vis un soluté donné.

La transformée linéaire permettant de vérifier la validité de cette équation est obtenue par passage en échelle logarithmique [65]:

$$\ln Q_e = \ln K_f + n_f \ln C_e$$

Par ailleurs ils ont rapporté que si [66-67]:

- $n_f$  est compris entre 2 et 10, l'adsorption est facile.
  - $n_f$  est compris entre 1 et 2, l'adsorption est modérément difficile.
- $n_f$  est inférieur à 1, l'adsorption est faible. Dans ce cas, une masse importante d'adsorbant est utilisée pour récupérer une fraction appréciable du soluté.

En traçant  $\ln Q$  en fonction de  $\ln C_e$ , on obtient une droite de pente  $1/n_f$  et d'ordonnée à l'origine  $\ln K_f$ .

II.6.3 Modèle de Temkin:

L'isotherme de Temkin tient compte du fait que la chaleur d'adsorption de toutes les molécules dans la couche de coiffage diminue linéairement avec la couche de coiffage en raison de la réduction des interactions adsorbant-adsorbat. L'adsorption est caractérisée par une distribution uniforme de l'énergie de liaison de surface [68].

L'isotherme de Temkin est exprimée sous la forme :

$$Q_e = (RT/bt) \ln(K_t C_e)$$

Où sous la forme :

$$Q_e = B1 \ln K_t + B1 \ln C_e$$

Avec :

- $B1 = RT/bt$  (J/mol) : Constante de Temkin relative à la chaleur de sorption.
- $K_t$  (L.mg<sup>-1</sup>) : Constante d'équilibre d'adsorption correspondant à l'énergie de liaison maximal

*Chapitre III:*  
*Hydroxydes doubles laméllaires*

III.1.Définition :

Le terme HDL désigne un hydroxyde double feuilleté synthétique ou naturel contenant deux cations métalliques (divalent et trivalent) dans les feuillets et des anions dans l'intercalaire. Ces matériaux ont été largement étudiés ces dernières années en raison de leurs propriétés électrochimiques [70] ou échangeuses d'anions [71]. La structure des HDL (Figure. III.1) est constituée d'unités octaédriques formées de feuillets de type brucite. La formule générale peut s'écrire :



- $M^{II}$  et  $M^{III}$  : cations du feuillet
- $-X^{q-}$  : anion interfoliaire de valence q
- x : taux de métal trivalent

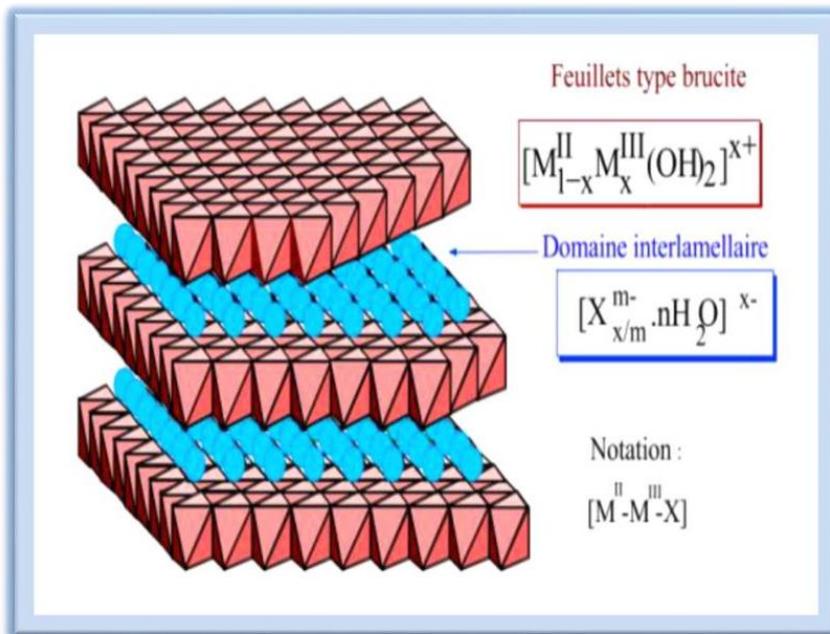
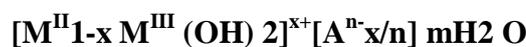


Figure III.1: Présentation générale des HDL [72]

III.2.Description structurale des HDL :

D'une façon générale, les HDL présentent une formule chimique sous la forme [73]:



Où

$M^{II}$ ,  $M^{III}$ : représentent les cations divalents et trivalents qui occupent les sites octaédriques respectivement.

Avec :

$M^{II}$ : Zn<sup>2+</sup>, Cu<sup>2+</sup>, Ni<sup>2+</sup>, Co<sup>2+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>...etc.

$M^{III}$ : Cr<sup>3+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, Co<sup>3+</sup>, Al<sup>3+</sup>...etc.

$A_n^-$ : représente, l'anion de compensation intercalé de valence (n-) situé dans l'espace interfoliaire, comme Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>...etc.

**n** : la charge d'anion.

**m** : le nombre de molécule d'eau avec  $m = 1 - 3/x$  [74].

**x**: la fraction du cation trivalent dans la structure.

$$x = M_{III} / (M^{II} + M^{III})$$

Le rapport (R) varie généralement entre 1 et 5.

$$R = M^{II} / M^{III}$$

$$X = 1 / (1 + R)$$

La structure de l'hydrotalcite est constituée de feuillets cationiques de composition M(OH)<sub>2</sub> séparés par des domaines interfeuillets contenant des anions et des molécules d'eau. La substitution des cations divalents par des cations trivalents génère un excès de la charge positive, l'électroneutralité du système est alors assurée. [75].

Les anions compensateurs (organiques et inorganiques) et l'eau peuvent "cycler" très librement dans la région intercouche après la rupture des liaisons hydrogène. Les groupes hydroxyle des plaquettes de brucite sont liés à l'anion compensateur directement ou par l'intermédiaire d'un intermédiaire aqueux par liaison hydrogène [77].

Concernant la structure cristalline de l'hydrotalcite, les paramètres de maille a et c dépendent de la nature des cations divalents et trivalents, c'est-à-dire de leurs rayons ioniques. Habituellement, le paramètre c est considéré comme étant le triple de l'épaisseur (c') de la couche de type brucite et de la couche intermédiaire

### III.2.1. Composition des feuillets : nature de $M^{II}$ et $M^{III}$ :

Les descriptions structurales des domaines intercouches sont souvent difficiles, principalement en raison du fait que les anions ne présentent pas de sous-réseaux rigides. En général, l'espace intercalaire est très désordonné. Moyenne cependant pour des entités simples telles que les ions carbonate ou les ions chlorure, où les anions occupent des positions statistiquement bien définies. [78-79].

L'espace intercalaire est défini a priori par les propriétés des anions qui le composent, il n'y a pas de restriction sur l'intercalation des anions, mais il faut : Ceux-ci soient stables dans

les conditions opératoires et qu'il y ait pas de contraintes stérique ou géométrique.

Une grande variété d'espace interfeuillelet :

- Anions simples:  $\text{OH}^-$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$
- Halocomplexes:  $(\text{NiCl})^-$ ,  $(\text{IrCl}_6)^-$  ...

Anions organiques ou polymères : acides adipique, oxalique, malonique ou acrylate et polyacrylate, sulfonate ... On peut noter qu'une séparation très nette se produit entre les espèces inorganiques et organiques avec des espaces intercouches ne dépassant pas 15 Å. dont l'épaisseur est déterminée par le nombre, la taille, l'orientation et selon leur interaction avec les groupements feuillet hydroxyles. [80].

### III.2.2. Composition et description du domaine interlamellaire :

Ces composés en couches 2D présentent une anisotropie élevée due aux liaisons chimiques, qui sont fortes au sein des feuilles hydroxylées. Cette propriété permet l'insertion d'une grande variété de produits chimiques, y compris inorganiques et organiques ainsi que biologiques, qui peuvent modifier la réactivité du matériau. [81-82].

Des molécules organiques chargées négativement peuvent être insérées dans le HDL par des réactions d'échange, soit par une réaction de coprécipitation en présence de l'anion organique à intercaler sous atmosphère inerte ( $\text{N}_2$ ) afin d'éviter l'intercalation de carbonates.

L'affinité des anions monovalents pour les feuillet HDL varie dans le sens  $\text{OH}^- > \text{F}^- > \text{Cl}^- > \text{Br}^- > \text{NO}_3^- > \text{I}^-$  et pour les anions divalents  $\text{CO}_3^{2-} > \text{C}_{10}\text{H}_4\text{N}_2\text{O}_8\text{S}^{2-} > \text{SO}_4^{2-}$  [83].

Les descriptions structurales des domaines inter-tranches sont souvent difficiles. Ceci est principalement dû au fait que l'anion lui-même ne constitue pas un sous-réseau rigide [84]. Dans le cas d'entités simples comme les ions carbonate ou les ions chlorure, les anions occupent statistiquement des positions bien définies. A priori, il n'y a pas de limite à l'intercalation des anions :

- $\text{CO}_3^{2-}$ ,  $\text{OH}^-$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$  ...
- Cyanocomplexes:  $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{4-}$ ,  $[\text{Co}(\text{CN})_6]^{4-}$  ...
- Oxométalates: Chromate, Vanadate ...

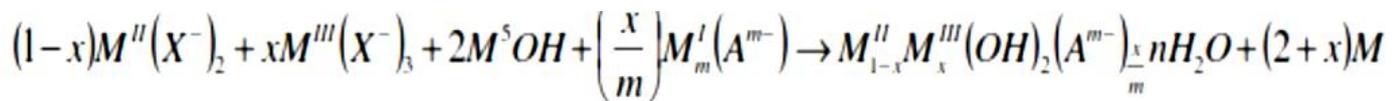
### III.3. Méthodes de synthèse des HDL :

La synthèse des HDL est réalisée par plusieurs méthodes. Les plus utilisés sont la coprécipitation directe et la méthode Urée, celle dite de reconstruction est moins courante.

III.3.1.Co-précipitation directe :

C'est la méthode la plus utilisée et la plus facile à mettre en œuvre. Il s'agit de la précipitation de sels métalliques par addition d'une solution alcaline contenant l'anion que l'on souhaite intercaler. Il est souvent nécessaire de se placer dans des conditions sursaturées pour garantir la précipitation des cations métalliques, par conséquent, la composition de la phase HDL est recherchée. Cette approche "universelle" peut-elle produire une grande variété de compositions cationiques et anioniques avec des charges de feuille bien définies [85].

La réaction chimique de coprécipitation directe se présente comme suit [89] :



Où:

- MI: est le cation monovalent (K<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>).
- X : est anion interlamellaire (Cl<sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>).

III.3.2.La méthode Urée :

Un procédé à l'urée a été développé pour obtenir une granulométrie monodispersée. Ce protocole comprend l'utilisation d'une base retardée telle que l'urée pour contrôler son hydrolyse. A des températures supérieures à 70°C, l'urée se décompose et libère OH<sup>-</sup>, qui va réagir avec les sels métalliques. Plus la température est élevée, plus la précipitation de la phase hydroxyde double en couches est rapide. Cette méthode permet un contrôle cinétique de la co-précipitation. L'inconvénient majeur de cette méthode provient de la génération in situ d'anions carbonates facilement intercalés dans les hydroxydes doubles lamellaires [86].

III.3.3.Reconstruction :

Les HDL ont la propriété de pouvoir se "régénérer" après calcination et formation d'oxydes mixtes. Si un anion est détruit dans le domaine de température de calcination, il peut être remplacé par un autre anion lorsqu'il entre en contact avec une solution contenant un autre anion. Ensuite, on parle des effets mémoire du HDL de manière abusive. Une fois que les oxydes mixtes obtenus par la calcination des HDL sont renvoyés dans la solution contenant les anions à intercaler, ils se recombinaient pour former une nouvelle phase HDL dans une atmosphère exempte de CO<sub>2</sub>. Mais faut-il trouver les bonnes conditions de calcination [87].

La réaction chimique de la reconstruction se présente comme suit [88]:

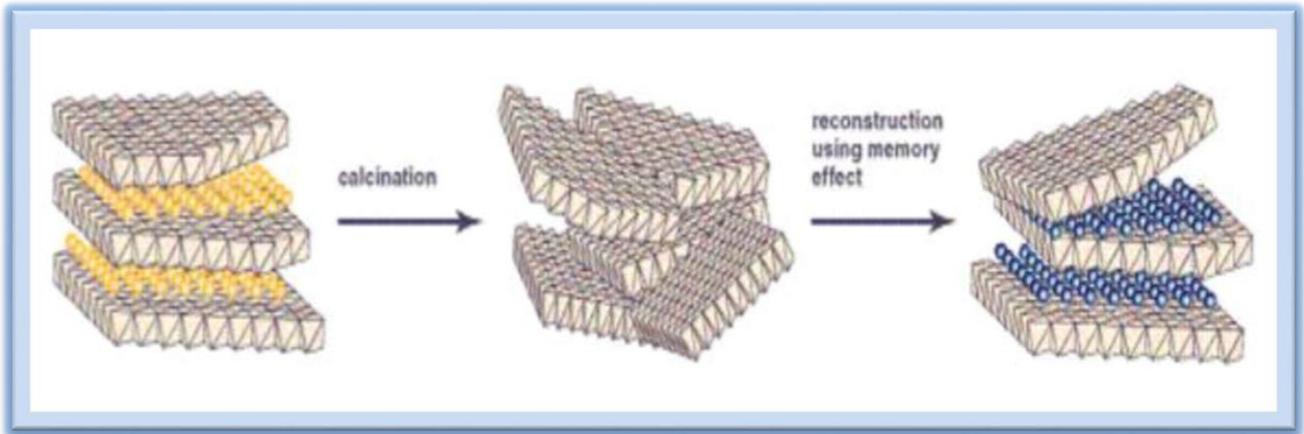
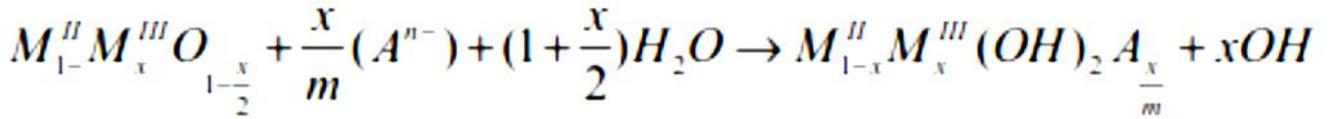


Figure III-2. Principe de la reconstruction (ou effet de mémoire) [90].

III.4. Application des HDL :

Les domaines d'application des phases HDL sont très divers, exploitant principalement les propriétés liées à leur structure en couches, les multiples associations de cations et d'anions divalents et trivalents pouvant être insérés dans la structure, leur utilisation en échange d'anions ou encore leur réduction d'oxygène ou d'acidité. -Comportement de base [91].

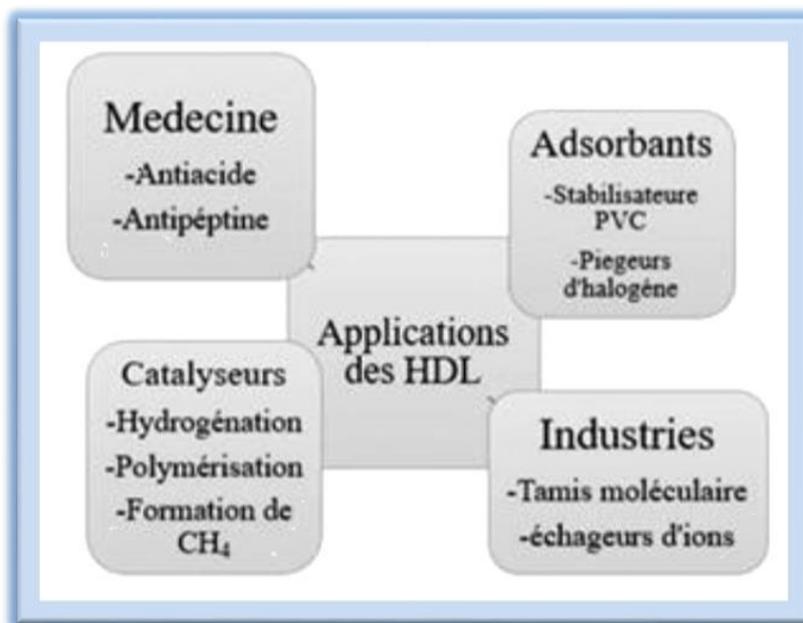


Figure III-3 : Domaine d'application des HDL

#### III.4.1. Catalyse et catalyse supportée :

La protection de l'environnement est devenue l'un des enjeux fondamentaux du développement de nouveaux procédés dans l'industrie chimique. Ceci explique en partie le grand intérêt des procédés catalytiques hétérogènes qui, contrairement aux catalyseurs homogènes, sont plus faciles à recycler et à régénérer, réduisant ainsi la consommation d'énergie et l'utilisation de sels neutralisants. De plus, les catalyseurs hétérogènes sont généralement plus efficaces et sélectifs [92].

La catalyse basique a démontré son efficacité dans les réactions de chimie fine, les HDL se sont imposées dans de nombreux domaines (chimie organique, chimie de l'environnement, conversion du gaz naturel, etc.), ces matériaux sont utilisés pour la condensation aldolique, l'estérification ou la polymérisation d'oléfines [100-101].

#### III.4.2. Le domaine médical :

Les propriétés « acido-résistantes » des HDL ont conduit aux premières applications médicales de ces matériaux. Leurs propriétés d'absorption des anions aident également à capturer le phosphate dans les fluides gastro-intestinaux pour prévenir la croissance pathologique [93]. Les mêmes propriétés sont utilisées pour la libération contrôlée d'actifs intercalés en raison de la biocompatibilité et de la l-alcalinité des HDL. Les milieux interpolaires jouent un rôle important dans la protection des substances actives (contre l'oxygène, les UV, etc.) en prolongeant leur durée de vie tout en conservant leur efficacité. Puis libération par échange d'anions.

Le taux d'échange dépend de la stoechiométrie des feuillettes ainsi que de l'interaction des feuillettes anioniques [94] Cependant, la difficulté réside dans la voie d'administration, du fait de leur nature basique, ils se dissolvent immédiatement lorsqu'ils sont administrés par voie orale.. En ce sens, de nouveaux composites avec des polymères ont ensuite été développés pour protéger le matériau sans changer sa fonction.

#### III.4.3. Application environnementale :

Les hydroxydes doubles en couches possèdent la capacité de piéger les espèces chargées négativement par adsorption de surface et/ou échange d'anions, grâce à leur surface spécifique élevée et à la flexibilité de l'espace intercouche [95-96].

Cette capacité à piéger les anions a des applications dans la décontamination du sol ou de l'eau. De même, les produits calcinés peuvent également capter des anions organiques ou inorganiques par des réactions d'échange d'ions et de reconstitution [97-98].

L'efficacité de ces composés pour traiter des eaux contaminées par des anions nitrates, phosphates ou chromates a été démontrée [99-100], ainsi que pour capter des molécules toxiques telles que celles

utilisées comme pesticides en agriculture (MCPA82 et al) [101].

#### III.4.4.Applications électrochimiques :

Le HDL s'est avéré électrochimiquement actif, en particulier dans le domaine des électrodes modifiées. Ils ont démontré leurs performances en conduction ionique. Ces propriétés peuvent être améliorées par des modifications, telles que l'ajout d'autres éléments métalliques pour former des HDL Ni/M, incluant Co [102], Zn [103], Al [104], Cr ou Mn [105] et Fe [106].

Mousty [107] a également préparé de nouveaux matériaux d'électrodes à base d'HDL contenant des molécules organiques électro actives telles que l'antraquinone sulfonate, le m-nitrobenzen sulfonate, et le 2.2'-azinobis-ethylbenzothiazoline-6-sulfonate.

#### III.4.5.Applications pharmaceutiques :

Les HDL ont également des applications pharmaceutiques, principalement basées sur leurs propriétés d'échange d'anions. On pense qu'ils agissent comme une barrière avec des propriétés similaires à celles de la muqueuse gastrique. Ils peuvent également intercaler de nombreuses biomolécules importantes chargées négativement telles que les oligomères, l'ADN simple ou double, les molécules simples telles que les nucléotides et les acides aminés [108] et d'autres biomolécules actives telles que les agents anti-inflammatoires [109-110], HDL dans HDL peut être libéré progressivement dans l'organisme après intercalation et stockage afin de minimiser les effets secondaires dus à l'acidité de ce dernier.

#### III.4.6.Applications diverses :

L'oxyde mixte résultant Ni-Cu-Mg-Al calciné à 800°C à l'aide de HDL peut décomposer catalytiquement le méthane pour produire des nanofibres et/ou des nanotubes de carbone. Activité des catalyseurs à base de nickel (avec différents supports) dans les réactions de déshydrogénation [111].

Zheming et al. [112] ont étudié l'encapsulation de la curcumine sur l'hydrotalcite Mg/Al=3 par des méthodes de coprécipitation et d'échange d'ions. Parmi les techniques analytiques utilisées pour la caractérisation : DRX et IRTF, ils ont ensuite étudié la libération de cette drogue dans des milieux pH=4 et pH=6,5.

Narita [113] a montré que les acides aminés et les protéines neutres sont difficiles à intercaler par des méthodes d'échange d'ions, mais leur intercalation par des méthodes de co-précipitation et de reconstitution est tout à fait possible.

Wong et Buchheit [114] ont utilisé l'effet mémoire de l'hydroxyde calciné Li/Al afin de l'inclure dans une matrice époxyde perméable à l'eau pour voir la prise d'eau dans les enduits organiques optiquement opaques.

*Chapitre IV :*  
*Synthèse et caractérisation*  
*de matériaux HDL*

Introduction :

Dans ce chapitre nous allons faire une présentation de la synthèse des hydroxydes doubles lamellaires par la méthode de Co-précipitation, ensuite nous allons présenter les caractéristiques physico-chimiques des matériaux synthétisés à savoir la spectroscopie Infrarouge, la Diffraction des rayons X, et déterminer le point de charge nulle.

IV.1 Protocol expérimental de synthèse de matériaux HDL :

La Synthèse des HDL a été effectuée par la méthode de Co-précipitation, elle consiste à provoquer la précipitation simultanée des cations métalliques divalents et trivalents par ajout d'une solution alcaline [115].

L'addition se fait goutte à goutte sous agitation magnétique à température ambiante jusqu'à la fin des deux solutions dans les burettes.

Le précipité blanc obtenu est porté à reflux à une température de 60 °C sous une agitation magnétique pendant 6h afin de faciliter la cristallisation du précipité.

Par la suite, le produit de réaction est récupéré par filtration, lavé plusieurs fois par l'eau distillée jusqu'à ce que le pH du surnageant sera proche de celui de l'eau distillée pour éliminer les ions indésirables.

Après filtration, l'échantillon a été séché dans une étuve à 60°C pendant une nuit, et enfin broyé jusqu'à l'obtention d'une poudre blanche homogène.

Une partie de cette poudre a été calcinée à une température de 600°C pendant 4 h. **La Figure IV.1** résume les étapes de Préparation de matériaux HDL.

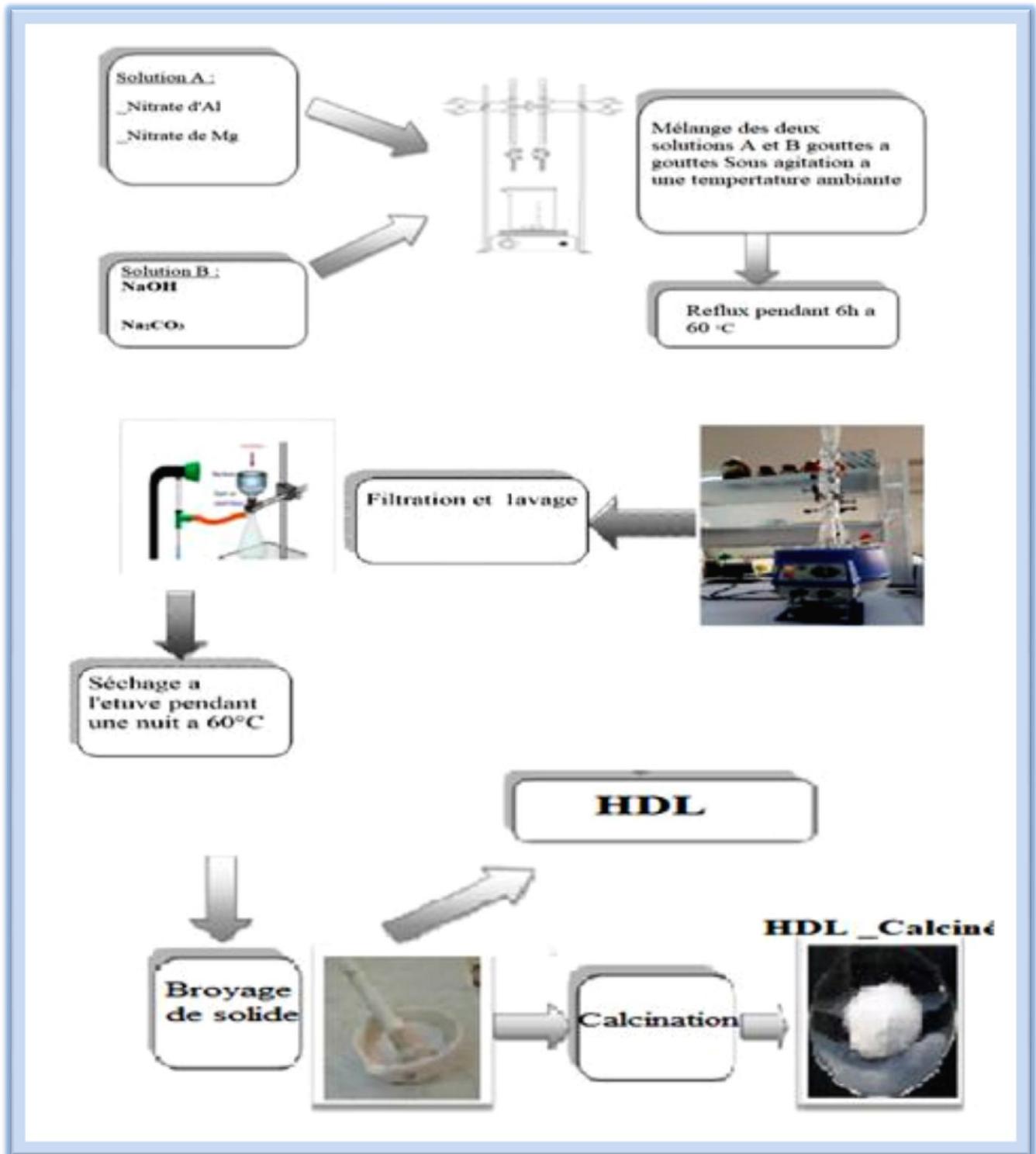


Figure IV.1: Différentes étapes de la synthèse du matériau HDL

## IV.2. Caractérisation physico-chimique de matériaux :

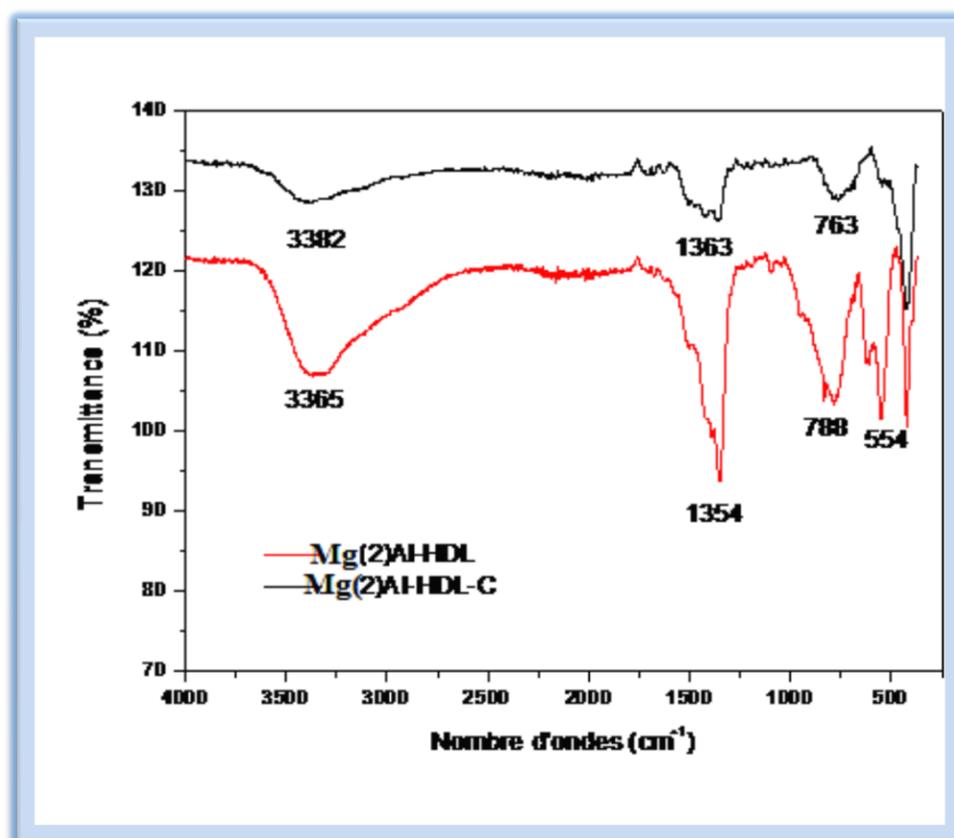
### IV.2.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier :

La spectroscopie infrarouge est une technique d'analyse qui permet d'identifier les fonctions chimiques des molécules présentes dans les matériaux analysés [116].

Le principe de la spectroscopie infrarouge (IR) repose sur l'absorption de la lumière par la plupart des molécules dans la région de l'infrarouge du spectre électromagnétique et en convertissant cette absorption en vibration moléculaire. Cette absorption correspond spécifiquement aux liaisons présentes dans la molécule. Avec un spectromètre, cette absorption du rayonnement infrarouge par le matériau de l'échantillon est mesurée en fonction de la longueur d'onde [117].

Les analyses IR ont été réalisées sur un spectrophotomètre à transformée de Fourier Bruker ALPHA sur une gamme  $400\text{ cm}^{-1}$  et  $4000\text{ cm}^{-1}$ .

Les résultats obtenus sont illustrés dans la **figure IV.2** :



**Figure IV.2:** Spectres Infrarouges de matériaux : Mg(2)Al-HDL et Mg(2)Al-HDL-C

Les spectres d'absorption infrarouges des HDL sont présentés sur la IV.2, l'allure générale des spectres obtenus est commune à toutes les phases de type HDL et les résultats sont en conformité avec ceux donnés dans la littérature [118]. On mentionne une bande large et intense vers  $3474\text{ cm}^{-1}$ , correspond à la vibration de valence des groupements hydroxyles  $\nu(\text{OH})$  liés à Zn et Al dans les feuillettes et à l'eau interlamellaire absorbée, une bande d'adsorption à  $1434\text{ cm}^{-1}$  correspond aux anions carbonate intercalés  $(\text{CO}_3)^{-2}$  [119].

La série de bandes apparaissant entre  $500\text{ cm}^{-1}$  à  $900\text{ cm}^{-1}$  correspond à des fréquences d'élongation des liaisons M-O et aux vibrations de valence M-O-M formant les couches des HDL [120].

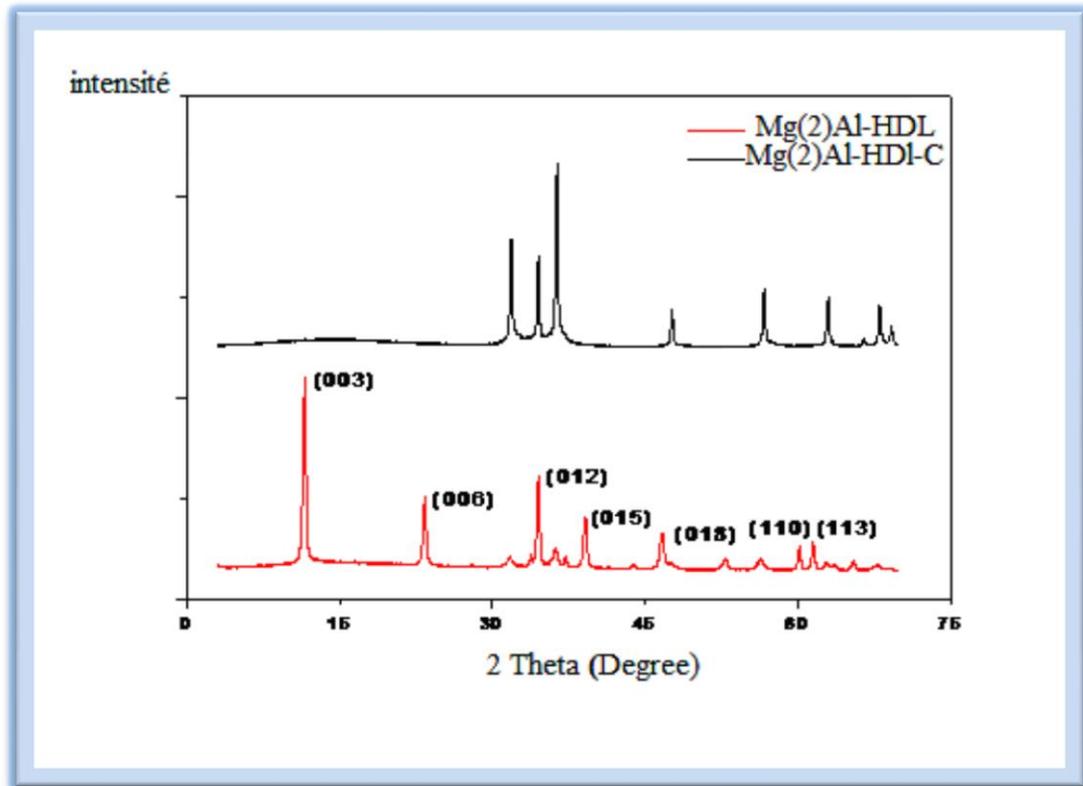
#### IV.2.2. Diffraction des rayons X :

La diffraction des rayons X (DRX) est la technique de référence en cristallographie structurale. Les structures moléculaires et cristallines sont essentielles à tous les problèmes impliquant la stéréochimie et sont souvent des relations structure-activité. Ces informations de base ne sont généralement pas disponibles par d'autres moyens [121].

Le principe de la DRX est de diffracter les rayons X sur un échantillon solide plat ou une poudre. Diffraction selon la loi de Bragg lorsqu'il y a organisation atomique dans un solide selon les plans cristallins Cette technique permet à la fois de mettre en évidence la nature cristalline ou amorphe de solides ou de poudres et d'identifier différentes phases cristallines [122].

Les matériaux ainsi préparés ont été caractérisés par diffraction de rayons X à l'aide d'un diffractomètre X'Pert Pro Panalytical, (Raie  $K\alpha$  du cuivre,  $\lambda=1,5418\text{ \AA}$ ), et les spectres sont exploités avec le logiciel X Pert Data Collector.

Les résultats obtenus sont représentés dans la **Figure IV.3** :



**Figure IV.3:** Diffractogrammes des rayons X de matériaux Mg(2)Al-HDL et Mg(2)Al-HDL-C

Les diffractogrammes des rayons X obtenus révèlent des pics de diffraction de la phase hydrocalcite aux faibles angles de diffraction, ces pics sont intenses, symétriques et correspondent aux plans réticulaires (003), (006) et (012), respectivement. Des pics larges et Asymétriques sont révélés aux angles de diffraction plus élevés, ces pics correspondent aux Plans réticulaires (015), (018), (110) et (113), respectivement. Les pics basaux deviennent plus intenses à mesure que le rapport molaire ( $Zn^{+2}/Al^{+3}$ ) diminue, ceci suggère une augmentation de la cristallinité des matériaux.

#### IV.2.3. Détermination de Point de charge nulle (PZC) :

Le point de charges nulles  $pH_{PZC}$  est le paramètre correspond au pH pour lequel la surface du solide présente une charge nulle [123].

Pour déterminer les propriétés d'adsorption de nos matériaux, il est intéressant de savoir que le point de charge nulle correspond à un état égal entre charges positives et négatives à la surface du matériau.

Sept solutions de 50 ml du NaCl d'une concentration de 0.01 M ont été versées dans différents erlenmeyers. Puis le pH de la solution a été ajusté de valeurs allant de 2 à 12 par l'addition d'une solution HCl d'une concentration de 0.1 M. Ensuite on a ajouté 0.5 g de HDL

dans chaque erlenmeyer, puis les suspensions ont été mise à agiter dans un agitateur magnétique pendant 24h. Puis on a mesuré le pH final de la solution. Le  $pH_{PZC}$  est définie comme le point d'intersection entre la courbe  $pH_{final}=f(pH_{Initial})$  et la bissectrice.

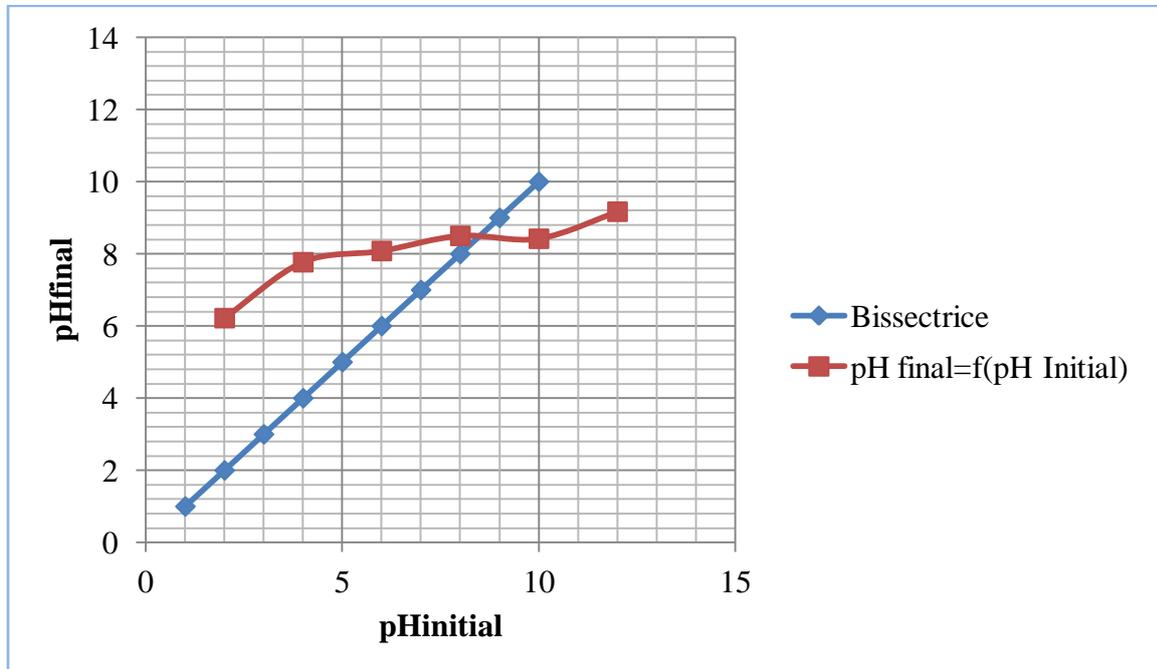


Figure IV.5: Détermination De point de charge nulle  $pH_{PZC}$  de matériaux HDL

A noter qu'il y a deux zones :

**Domaine ( $pH > 0$ )** : le pH final augmente avec le pH initial Probablement en raison de la dissolution et de la libération d'ions OH et de carbonates de CO<sub>3</sub> par des contaminants.

**Domaine ( $pH < 0$ )** : lorsque le pH initial augmente, le pH final diminue Causé par une charge négative excessive causée par la libération de protons. Il existe une Reconstruction des HDL. Dans cette zone basique, la solution agit comme un acide (donnant H<sup>+</sup>) entraîne une diminution du pH.

Les deux domaines sont séparés par un point ( $pH=0$ ), qui est  $pH_{PZC}$ , qui correspond à l'équilibre entre les charges positives et négatives, et montre que cette solution a un pouvoir tampon. Lorsque  $pH_{solution} > pH_{PZC}$ , le groupe fonctionnel est la surface de l'adsorbant sera protonée par un excès d'ions H<sup>+</sup>, en revanche, si la  $pH_{solution} < pH_{PZC}$ , les groupements fonctionnels en surface sont déprotonés par la présence d'ions OH<sup>-</sup> en solution [138].

*Chapitre V :*  
*Adsorption de polluant sur les HDL*

V.1. Polluant étudié :

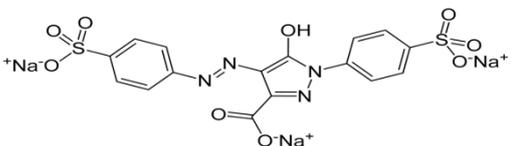
Pour notre étude on a choisi un colorant alimentaire qui est le Tartrazine, un composé chimique présent sous forme de poudre jaune orange inodore, appartenant à la famille des composés azoïques de forme solide très soluble dans l'eau destinés à la teinture des aliments et aussi pour teinter la laine [124].

Est un sel tri sodique de l'acide (sulfo-4-phénylazo-1)-4-(sulfo-4-phényl)-1 hydroxy-5 pyrazolecarboxylique-3 [125].

Les propriétés physico-chimiques de ce polluant sont représentés dans le tableau suivant:

( Tartrazine) [126].

**Tableau: V.1 :** Propriétés physico-chimique du polluant étudié (Tartrazine)

Caractéristiques	Polluant
Formule brute	$C_{16}H_9N_4Na_3O_9S_2$ C 35,96 %, H 1,7 %, N 10,48 %, Na 12,91 %, O 26,95 %, S 12 %
Structure chimique	
Etat physique	solide
Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	1,93 g/cm <sup>3</sup> à 20 °C
Masse molaire (g/mol)	534,363 ± 0,027 g/mol
Densité g/cm <sup>3</sup>	2,121 g/cm <sup>3</sup> à 20 °C
Température d'ébullition (°C)	870 °C
Température de fusion (°C)	350 °C
Solubilité dans l'eau (g/L)	200 g/L (eau, 25 °C)
Spectre d'absorption $\lambda_{max}$	$\lambda_{max} = 425$ nm dans l'eau

### V.2. Protocol expérimental d'adsorption

Des expériences d'adsorption ont été réalisées en discontinu dans un bêcher en mettant en contact 100 ml d'une solution aqueuse de concentration connue avec une masse connue d'adsorbant par agitation magnétique à température ambiante. Les mesures de volume sont effectuées toutes les 10 minutes, puis filtrées à travers un microfiltre et placées dans un tube à essai. Analyser la solution en mesurant l'absorbance à  $\lambda_{\max}$  et l'adsorption de chaque échantillon à l'aide d'un spectrophotomètre UV-Vis de marque Shimadzu UV-1240.

La quantité adsorbée peut-être calculée par la relation suivante :  $C_t$

$$Q = \frac{(C_0 - C_t) \cdot m}{V}$$

- $C_0$  : Concentration initiale de la solution (mg/l).
- $C_t$  : Concentration résiduelle (mg/l).
- $V$  : Volume de la solution (l).
- $m$  : Masse de l'adsorbant (g).

L'efficacité d'élimination de polluant en pourcentage (rendement R) est calculée avec :

$$R\% = \left( \frac{C_0 - C_t}{C_0} \right) * 100$$

### V.3. Optimisation des paramètres opératoires :

Dans cette étude nous avons varié plusieurs paramètres et voir leur influence sur l'adsorption.

#### V.3.1. Optimisation de la masse de l'adsorbant :

Afin d'étudier l'effet massique du matériau sur l'adsorption de chaque polluant, nous avons pris la masse de 0,02g à 0,2g d'adsorbant (HDL) (0,02, 0,08, 0,14 et 0,2g) dans 100 ml de polluant à une concentration de 100 mg/l en solution aqueuse, sous agitation magnétique, à pH =3 et à température ambiante Après 80 minutes des volume de 5 ml sont prélevé de chaque bêcher toutes les 10 minutes, puis le volume prélevé a été centrifugé et mesuré par UV- vis.

Les résultats obtenus sont représentés par le tracé de rendement en fonction du temps sur les **Figure V.1** et **Figure V.2** suivantes :

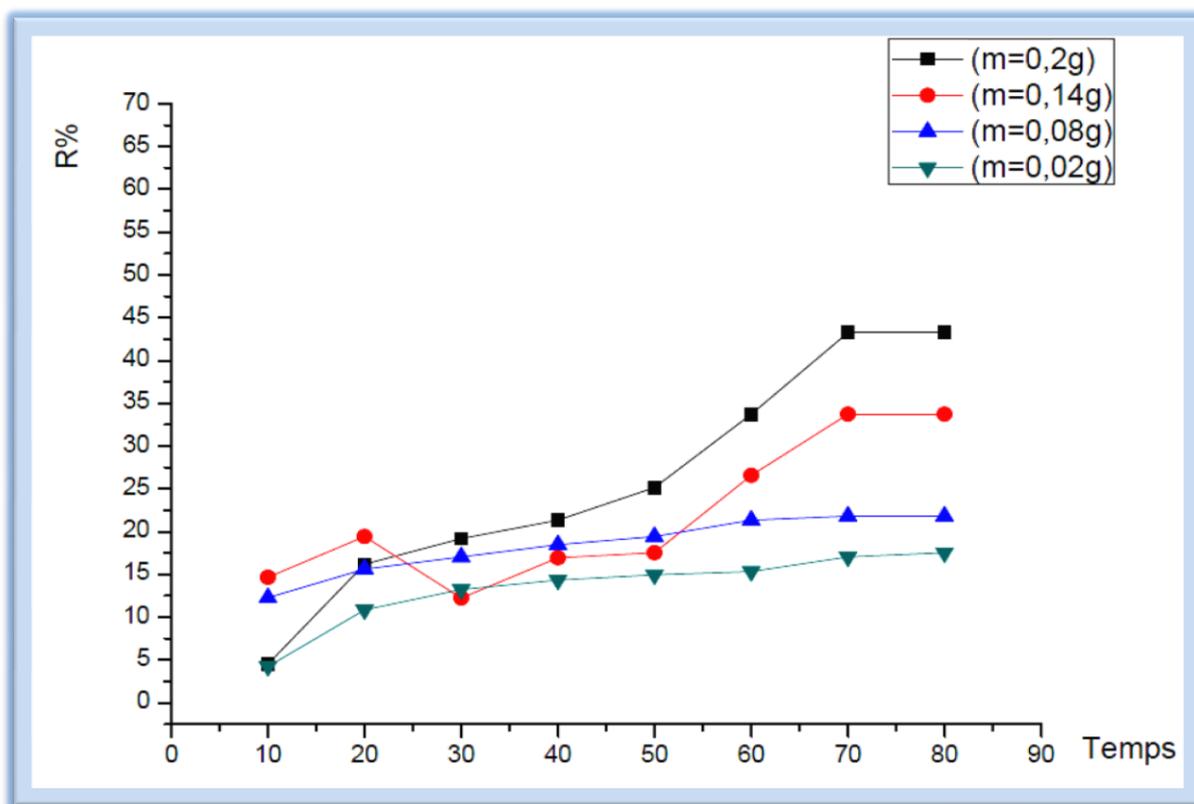


Figure V.1 : Effet de la masse d'adsorbant sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné (C<sub>0</sub> =100 mg/l, pH=3, Température ambiante)

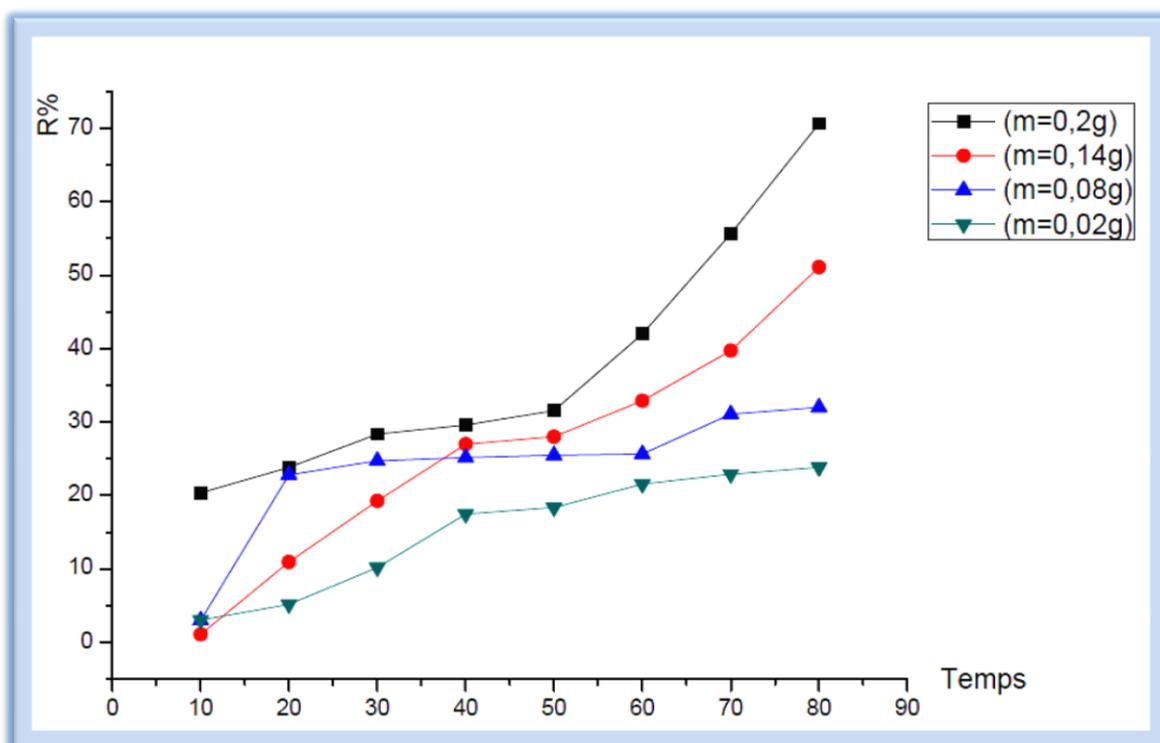


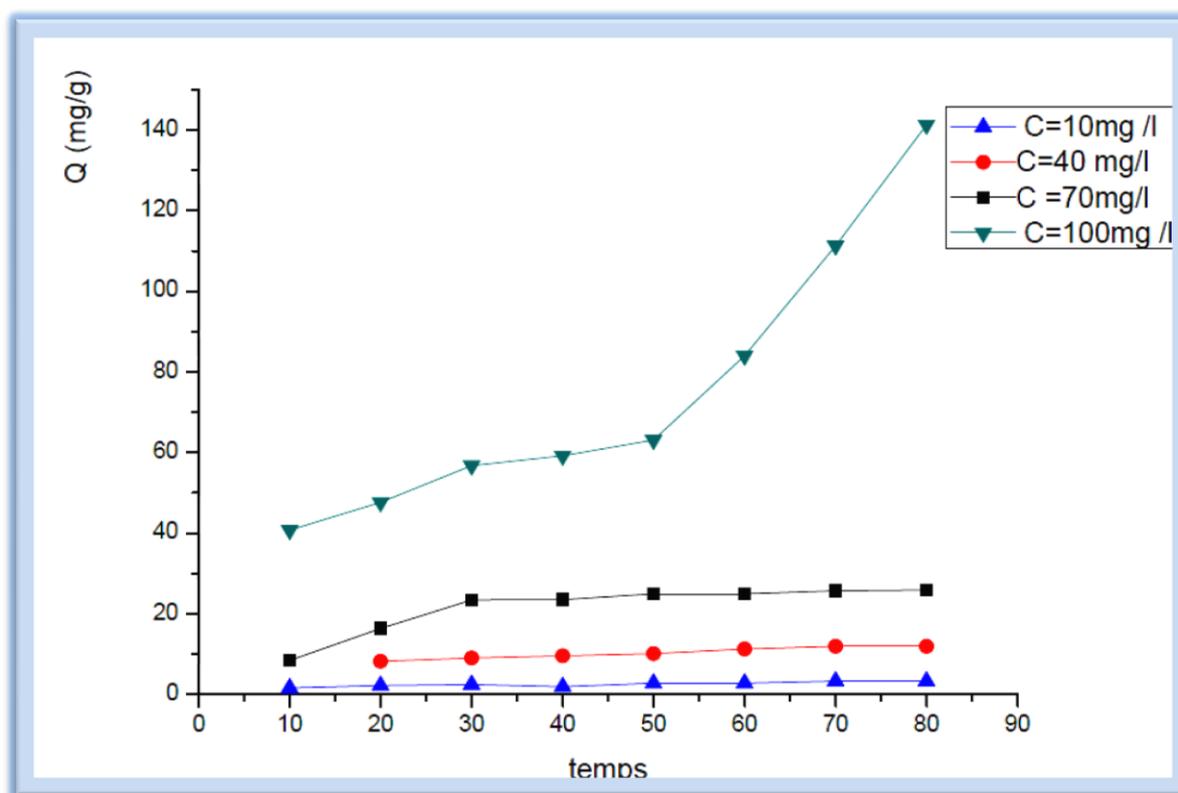
Figure V.2 : Effet de la masse d'adsorbant sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL non calciné (C<sub>0</sub> =100 mg/l, pH=3, Température ambiante)

D'après les résultats obtenus, on constate que l'efficacité d'élimination augmente avec la masse d'adsorbant, le nombre de sites d'adsorption accessibles augmente lorsque la masse d'adsorbant augmente un rendement maximal est obtenu une d'une masse de 0,2 g.

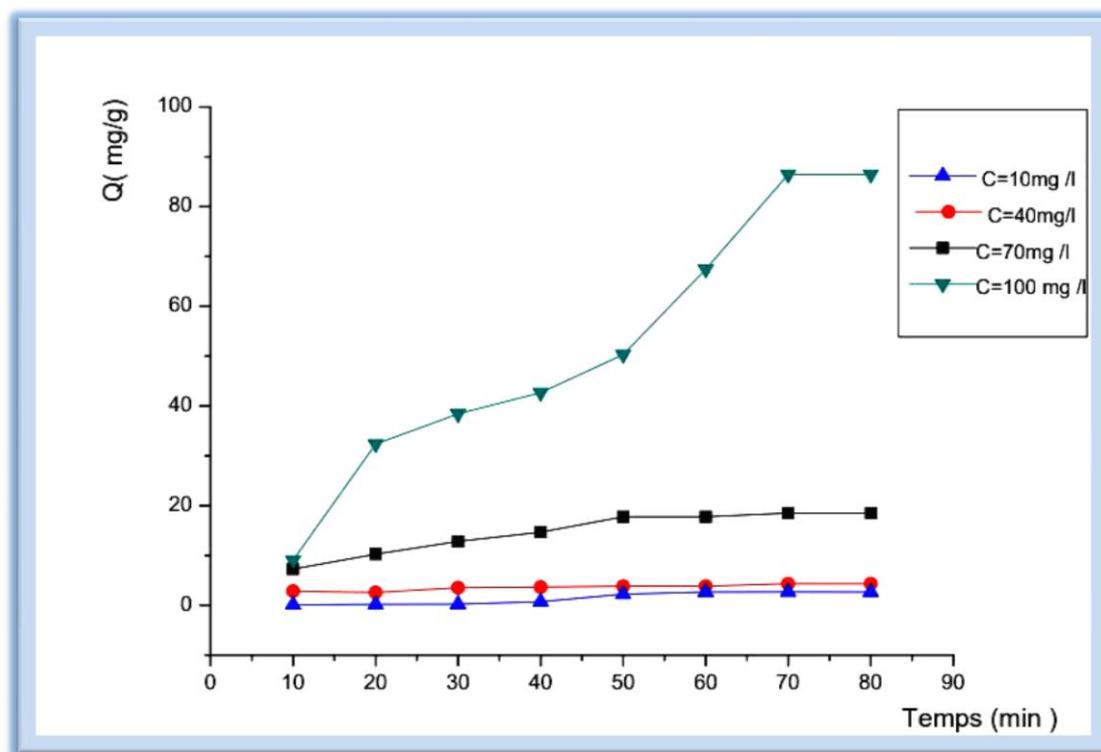
Les rendements en HDL calciné (600 °C) étaient également différents et la capacité d'adsorption du contaminant était améliorée par rapport au HDL non calciné. Le matériau HDL calciné présentait une plus grande capacité d'adsorption par rapport au matériau non calciné. L'amélioration de la capacité d'adsorption des HDL calcinées est due d'une part à l'augmentation de la surface spécifique et au départ des anions intercalés (principalement  $\text{CO}_2^{-3}$ ) après l'opération de calcination. , plusieurs auteurs rapportent que le  $\text{CO}_2^{-3}$  est une barrière majeure à la liaison des anions dans les matériaux HDL [127-128].

### V.3.2. Optimisation de la concentration initiale du polluant :

Pour déterminer l'effet de la concentration initiale de polluant sur la capacité d'adsorption, nous avons fait varier la concentration initiale de Tartrazine (10, 40,70 et 100 mg/l) tout en gardant les autres paramètres constants (masse de l'adsorbant = 0,2 g, pH = 3, température ambiante).



**Figure V.3 :** Effet de la concentration initiale sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné à 600°C (masse adsorbant = 0.2 g, pH= 3, Température ambiante)



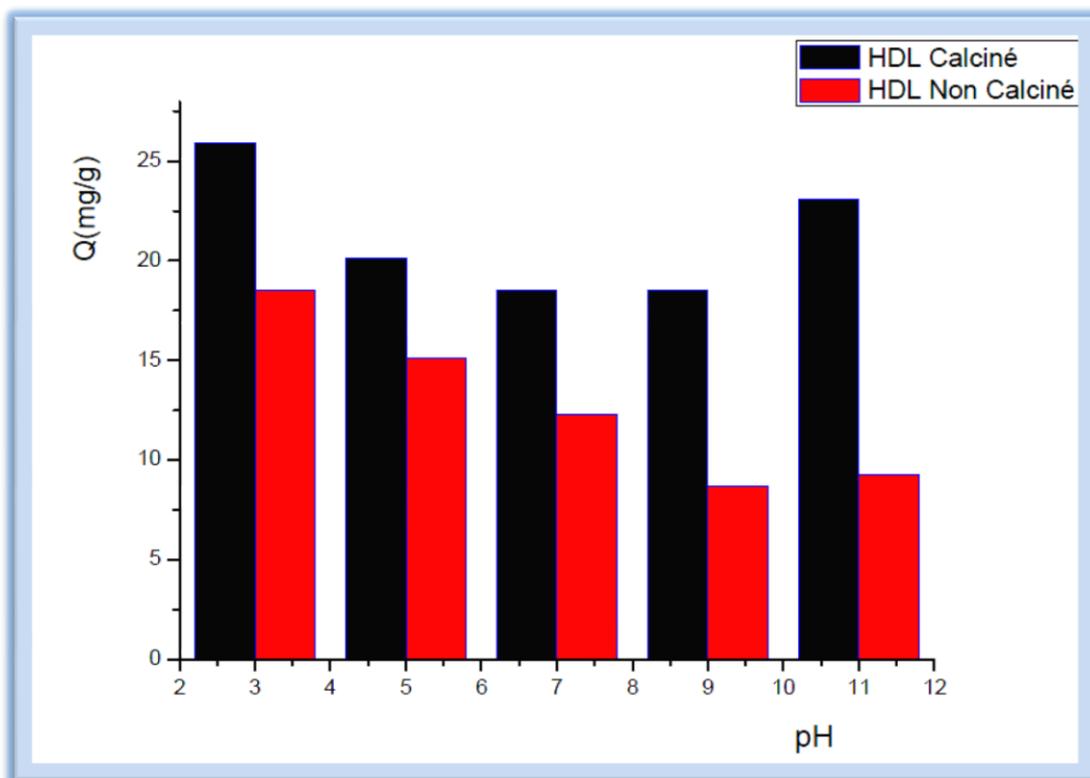
**Figure V.4 :** Effet de la concentration initiale sur l'adsorption du Tartrazine sur le HDL non calciné (masse adsorbant = 0.2 g, pH= 3, Température ambiante)

Nous avons remarqué que la capacité d'adsorption du Tartrazine augmentait avec la concentration initiale. L'explication de ce résultat est que lorsque la concentration initiale de polluants est importante, la quantité de polluants adsorbée par unité de masse d'adsorbant (mg/g) sera plus importante en raison du gradient de concentration plus fort. De plus, l'augmentation de la concentration initiale augmente le nombre de collisions entre les molécules de Tartrazine et l'adsorbant, augmentant ainsi le processus d'adsorption [129-130]. Donc la concentration optimale est du 100m/l.

### V.3.3. Optimisation du pH de la solution :

Le pH est un paramètre important dans toute étude d'adsorption, et sa valeur optimale pour immobiliser les contaminants dépend de la charge de surface de l'adsorbant et de la structure du contaminant étudié. Par conséquent, l'adsorption du Tartrazine sur les HDL a été examinée à différents pH (3, 5, 7, 9 et 11) tout en maintenant les autres paramètres constants. ( $C_0 = 100$  mg/l, masse adsorbant  $m = 0.2$  g, Température ambiante).

Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure suivante :



**Figure V.5 :** Effet du pH de la solution sur l'adsorption du Tartrazine ( $C_0=100\text{mg/l}$ , masse d'adsorbant=0.2 g, température ambiante)

L'évolution de la capacité d'adsorption du Tartrazine avec la valeur du pH du milieu est représentée sur la figure V.5. Les résultats obtenus montrent que pour des valeurs de pH inférieures à 7, une diminution de la capacité d'élimination des contaminants est observée en raison de la dissolution partielle de la matière HDL dans les milieux acides. Dans la plage de pH alcalin, le matériau a une faible capacité d'élimination de la tartrazine. L'explication de ce résultat est la présence de groupes hydroxyles et de carbonates en solution due à la dissolution du  $\text{CO}_2$  libre. Ceux-ci entrent en compétition avec les ions contaminants sur le site actif, réduisant ainsi l'adsorption des molécules de Tartrazine. Marcio J. d. a obtenu des résultats similaires. R. et al., Adsorption of sodium dodecylbenzenesulfonate on hydrotalcite  $\text{MgAlCO}_3$  [131].

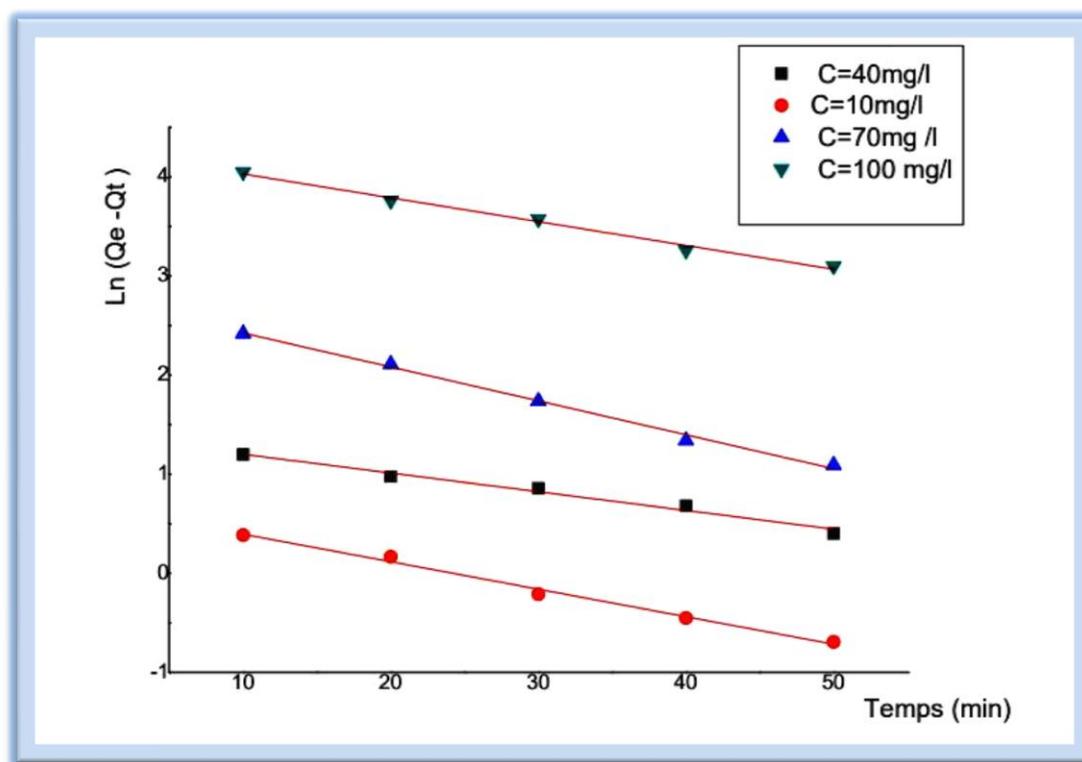
#### V.4. Cinétique d'adsorption :

La cinétique d'adsorption reflète l'évolution du processus d'adsorption avec le temps. C'est un paramètre important à prendre en compte lors du choix d'un adsorbant. Pour les méthodes de traitement qui utilisent l'adsorption comme processus de purification, une adsorption rapide est recommandée.

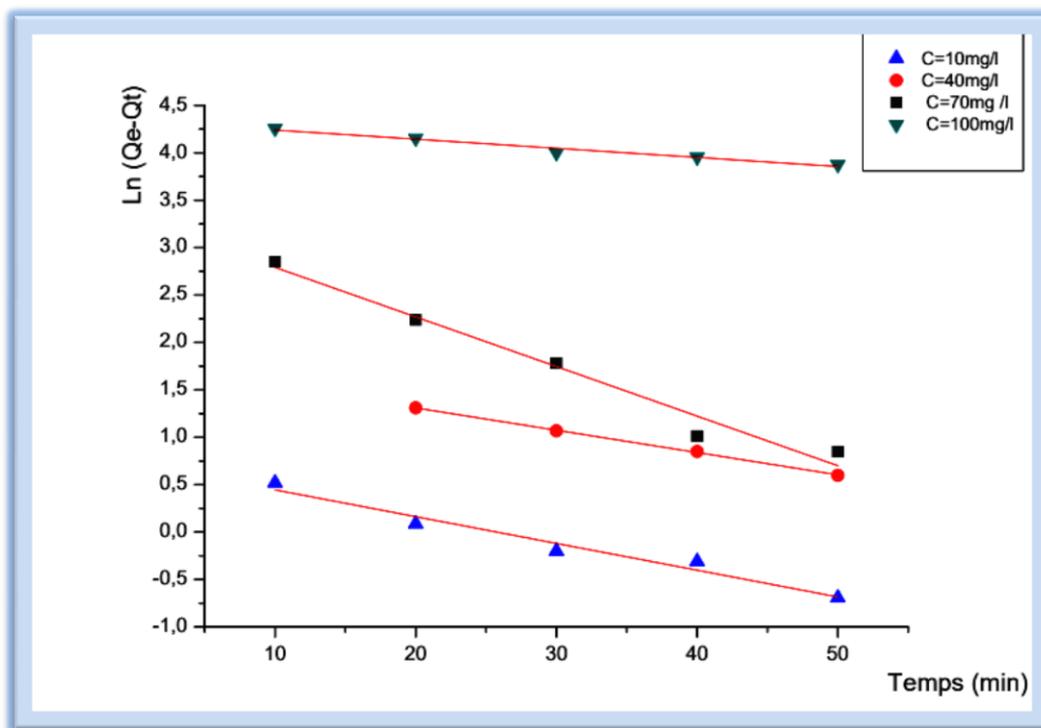
Afin de mieux comprendre le phénomène d'adsorption des colorants sur les HDL, deux modèles cinétiques ont été utilisés pour examiner les résultats expérimentaux sur la cinétique : pseudo-premier ordre et pseudo-second ordre [132].

##### V.4.1. Cinétique d'adsorption de pseudo premier ordre :

La figure V.6 et la figure V.7 montrent la modélisation de la cinétique d'adsorption du Tartrazine sur les HDL à l'aide de l'équation de Lagergren pour différentes concentrations initiales de colorant. Les valeurs de la quantité d'adsorption  $Q_e$ , de la constante de pseudo-premier ordre  $k_1$  et du coefficient de régression  $R^2$  sont regroupées dans le tableau V.2.



**Figure V.6 :** Cinétique du pseudo premier ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur HDL (masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH=3)



**Figure V.7 :** Cinétique du pseudo premier ordre pour l’adsorption du Tartrazine sur HDL calciné (masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH=3)

V.4.2. Cinétique d’adsorption du pseudo seconde ordre :

L’évolution de  $t/q_t$  en fonction du temps est présentée sur les figures V.8 et la figure V.9 pour le Tartrazine. Dans le **tableau V.2** sont regroupés Les valeurs des quantités adsorbées  $q_e$ , les constantes de pseudo deuxième ordre  $k_2$  et les coefficients de régression  $R^2$ .

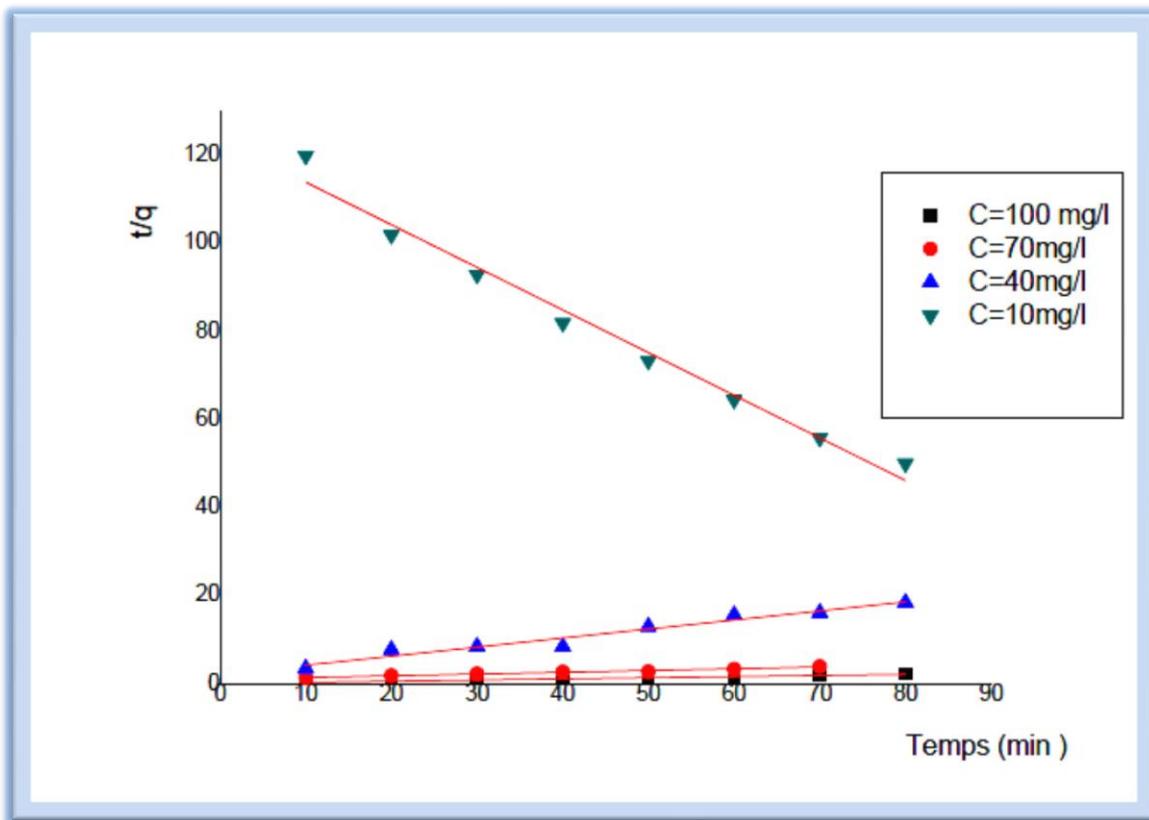


Figure V.8 : Cinétique du pseudo deuxième ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL (masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante °C, pH=3)

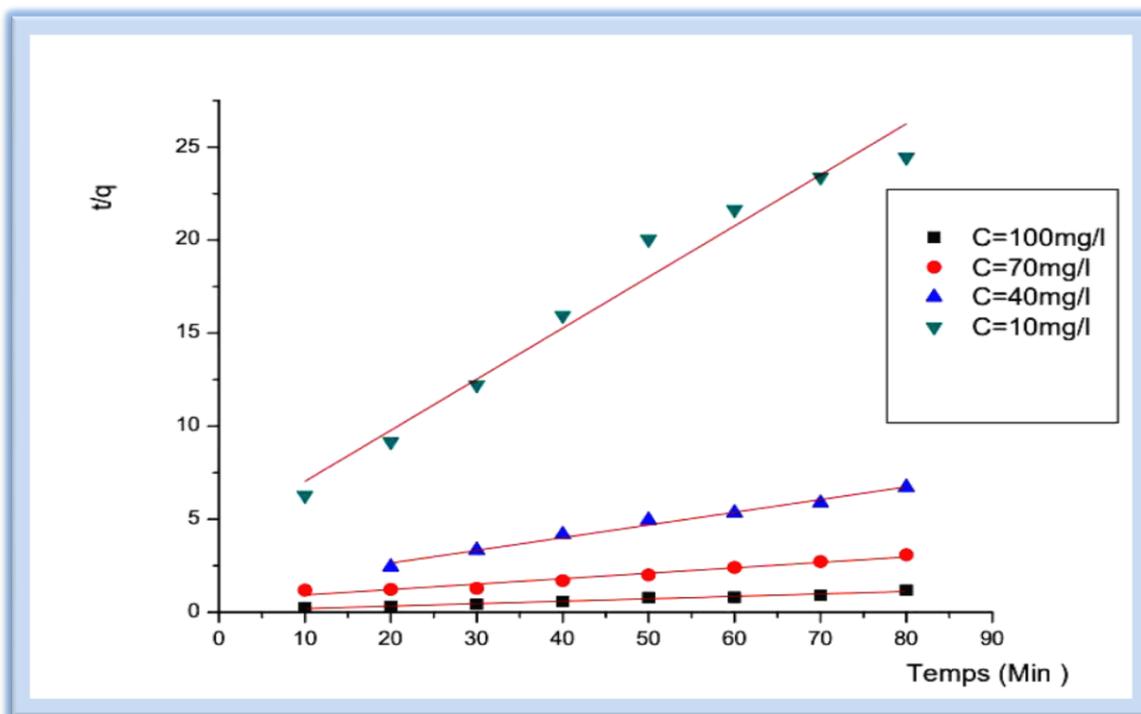


Figure V.9 : Cinétique du pseudo deuxième ordre pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné (masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH=3)

**Tableau V.2 :** Paramètres cinétiques de l'adsorption du Tartrazine sur le HDL et le HDL calciné

Adsorbant		Pseudo premier ordre			Pseudo deuxième ordre		
C (mg/l)	Q <sub>e</sub>	k <sub>1</sub> (10 <sup>-4</sup> ) (min <sup>-1</sup> )	Q <sub>e cal</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	k <sub>2</sub> (10 <sup>-2</sup> ) (g/mg. min)	Q <sub>e cal</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>
<b>HDL non calciné</b>							
<b>10</b>	2,7045	3,46	1,95709	0,9880	1,92	1, 0321	0,9993
<b>40</b>	4,3333	2,32	4,01135	0,9751	0,75	4,8654	0,9884
<b>70</b>	18,5	4,24	15,9031	0,9937	0,57	25,1130	0,97127
<b>100</b>	86,4761	3,06	71,4537	0,9880	0,14	38,7747	0,99553
<b>HDL Calciné</b>							
<b>10</b>	3,2727	3,59	2,0698	0,9572	1,75	3,6433	0,9656
<b>40</b>	11,9090	2,94	5,9287	0,9888	0,36	14,6649	0,9941
<b>70</b>	25,7083	6,57	27,5232	0,9558	0,23	34,3288	0,9613
<b>100</b>	141,2727	1,28	76,4097	0,9667	0,13	76,3941	0,9861

Les paramètres cinétiques déterminés à partir des données expérimentales d'adsorption du Tartrazine sur deux adsorbants (HDL calciné et HDL non calciné) (Tableau V.2) suggèrent que la valeur du coefficient de corrélation  $R^2$  pour le modèle de second ordre décrit mieux la cinétique de la réaction d'adsorption par rapport au pseudo-premier ordre pour toutes les concentrations initiales.

La constante de vitesse de pseudo-second ordre diminue avec l'augmentation de la concentration initiale de polluant, ce qui implique que la compétition pour les sites actifs adsorbants est plus grande pour des concentrations plus élevées. Par conséquent, le taux d'adsorption devient faible.

### V.5. Isothermes d'adsorption :

Les isothermes d'adsorption sont utiles car elles montrent une affinité Adsorbant – Adsorbant, pour comprendre certains des mécanismes associés à l'adsorption et comprendre la quantité maximale qu'un adsorbant peut retenir à sa surface. Ils peuvent également afficher

des modes d'adsorption (mono ou multicouche).

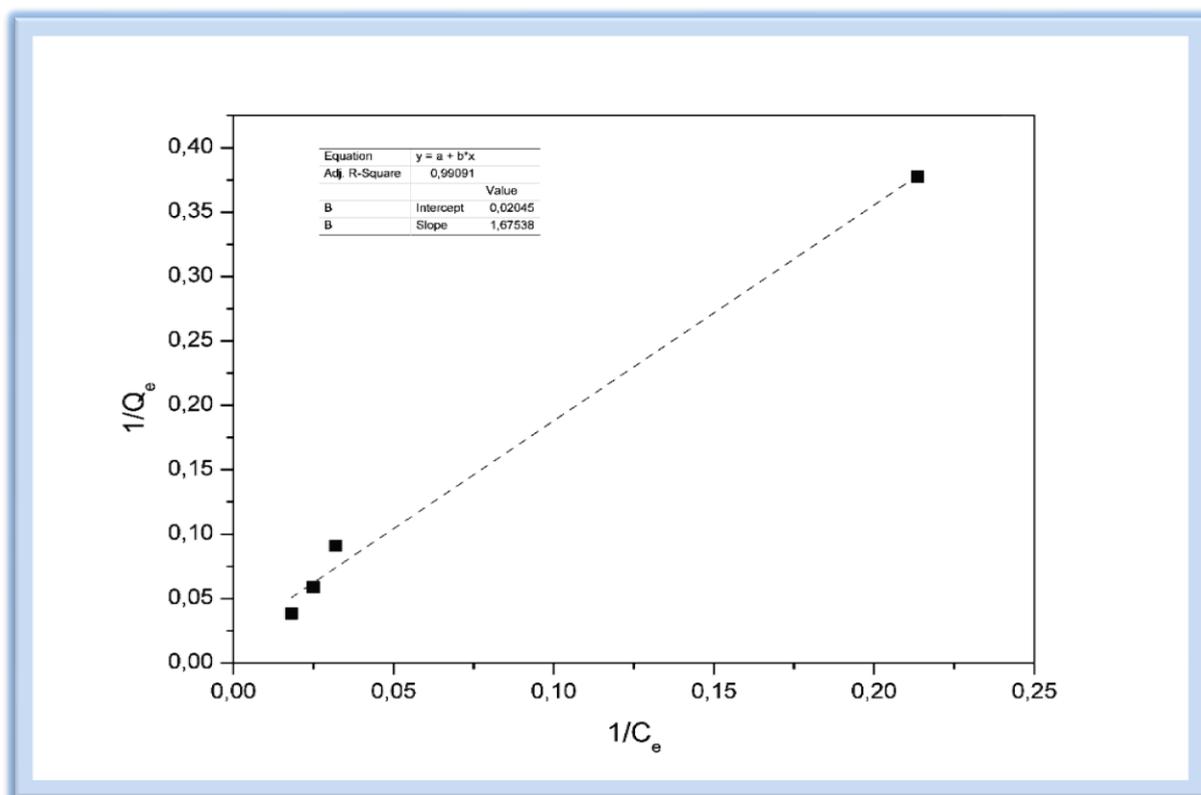
Plusieurs isothermes d'adsorption ont été proposées dans la littérature pour représenter l'équilibre des solutés sur des surfaces solides. Parmi ces modèles, les modèles de Langmuir, Freundlich et Temkin ont été retenus.

Les isothermes d'adsorption des adsorbants ont été établies en mettant en contact 0,2 g de l'adsorbant avec 100 ml de solutions de tartrazine de différentes concentrations (10, 40, 70 et 100 mg/l) à température ambiante. La suspension a été agitée pendant 80 minutes.

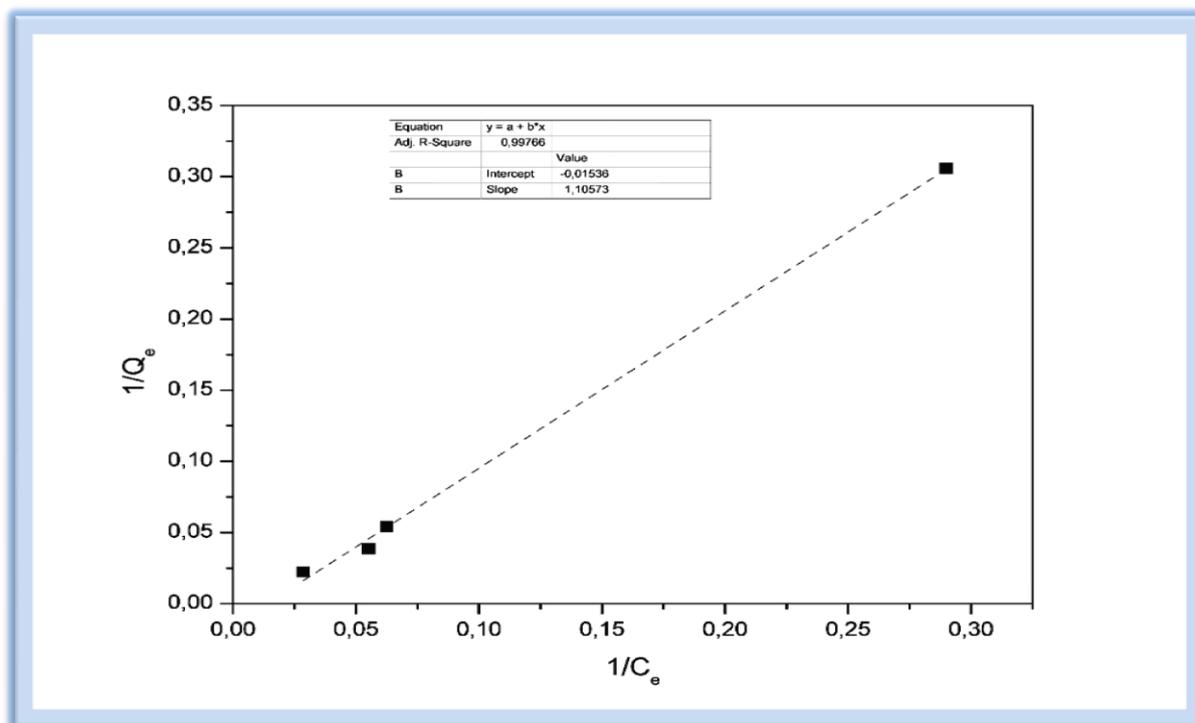
### V.5.1. Isotherme de Langmuir :

Si on suppose que l'équation de Langmuir est valable pour décrire nos résultats expérimentaux, elle doit vérifier la forme linéaire de l'équation de base en système de coordonnées :  $1/Q_e = f(1/C_e)$  ; ce qui nous permettra d'accéder aux constantes  $Q_m$  et  $K_L$ . Le tracé de la courbe  $1/Q_e = f(1/C_e)$  est représenté dans **la figure V.10** et **la figure V.11**.

Les valeurs des paramètres de Langmuir  $q_m$ ,  $K_L$  et  $R_L$  ainsi que le coefficient de corrélation  $R^2$  sont représentés dans **le tableau V.3** :



**Figure V.10** : Isothermes de Langmuir pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL ( $C_0 = 10$ - $100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)



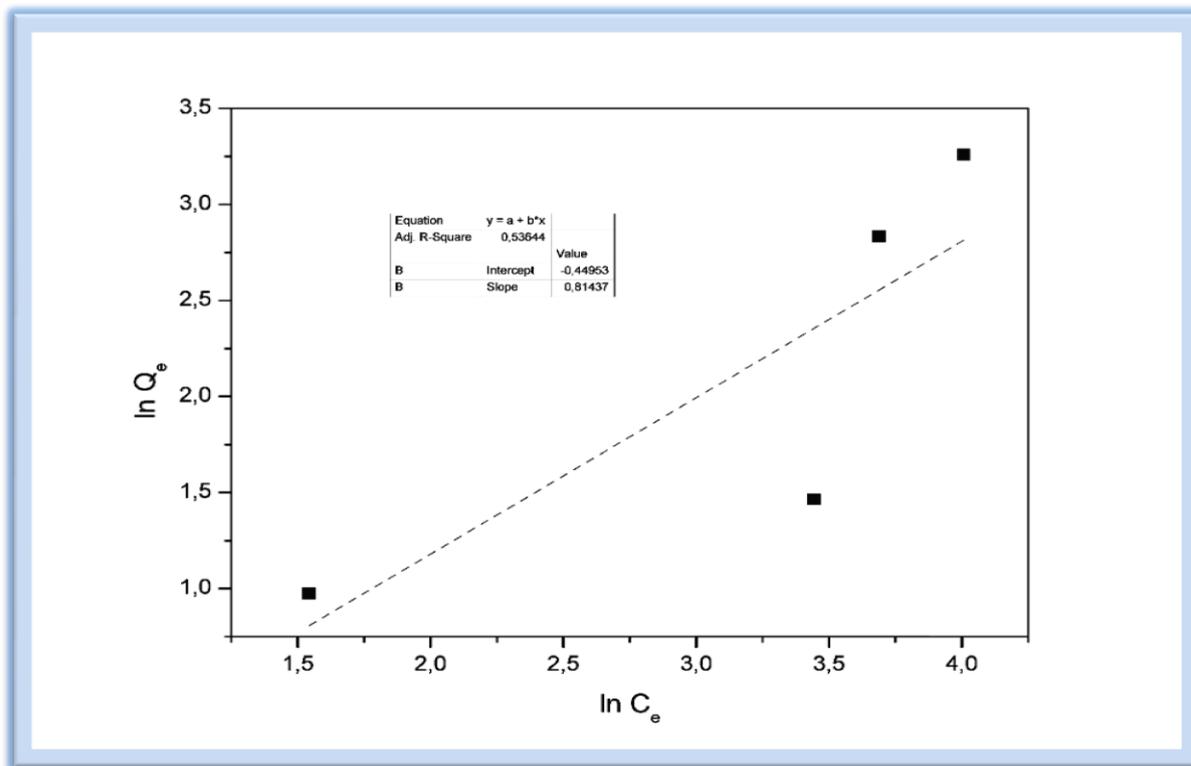
**Figure V.11** : Isothermes de Langmuir pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné ( $C_0 = 10-100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)

### V.5.2. Isotherme de Freundlich :

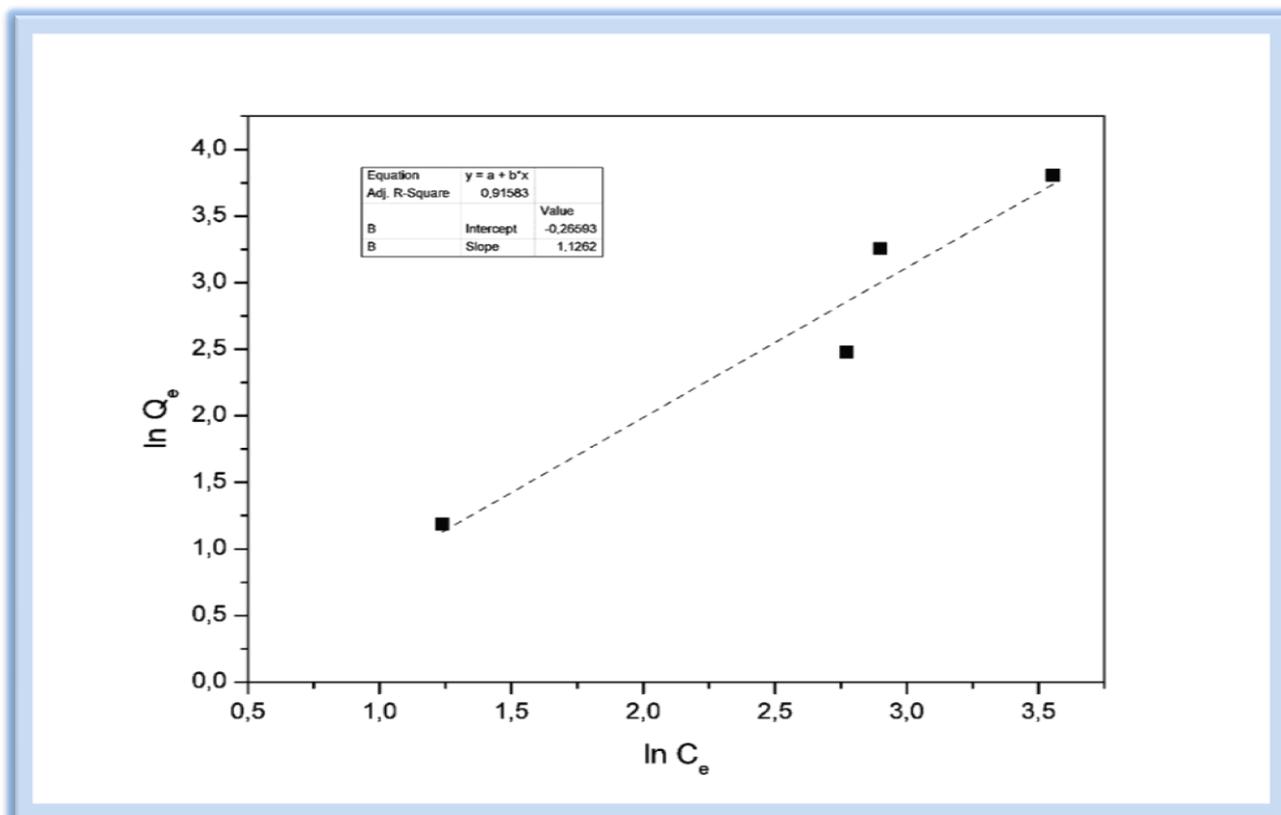
Le modèle de Freundlich suppose que l'adsorption se produit sur des surfaces hétérogènes avec formation de plus d'une monocouche d'adsorption sur la surface.

En traçant la courbe  $\ln q_e$  en fonction  $\ln C_e$ , on obtient les courbes représentées par la **figure V.12** et la **figure V.13**, correspondant à l'expression linéaire du modèle de Freundlich.

Les valeurs des paramètres de Freundlich  $K_f$  et  $n$  ainsi que le coefficient de corrélation  $R^2$  sont représentés dans le **tableau V.3**.



**Figure V.12 :** Isothermes de Freundlich pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL ( $C_0 = 10-100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)



**Figure V.13 :** Isothermes de Freundlich pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné ( $C_0 = 10-100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)

V.5.3. Isotherme de Temkin :

L'isotherme de Temkin est exprimée sous la forme :

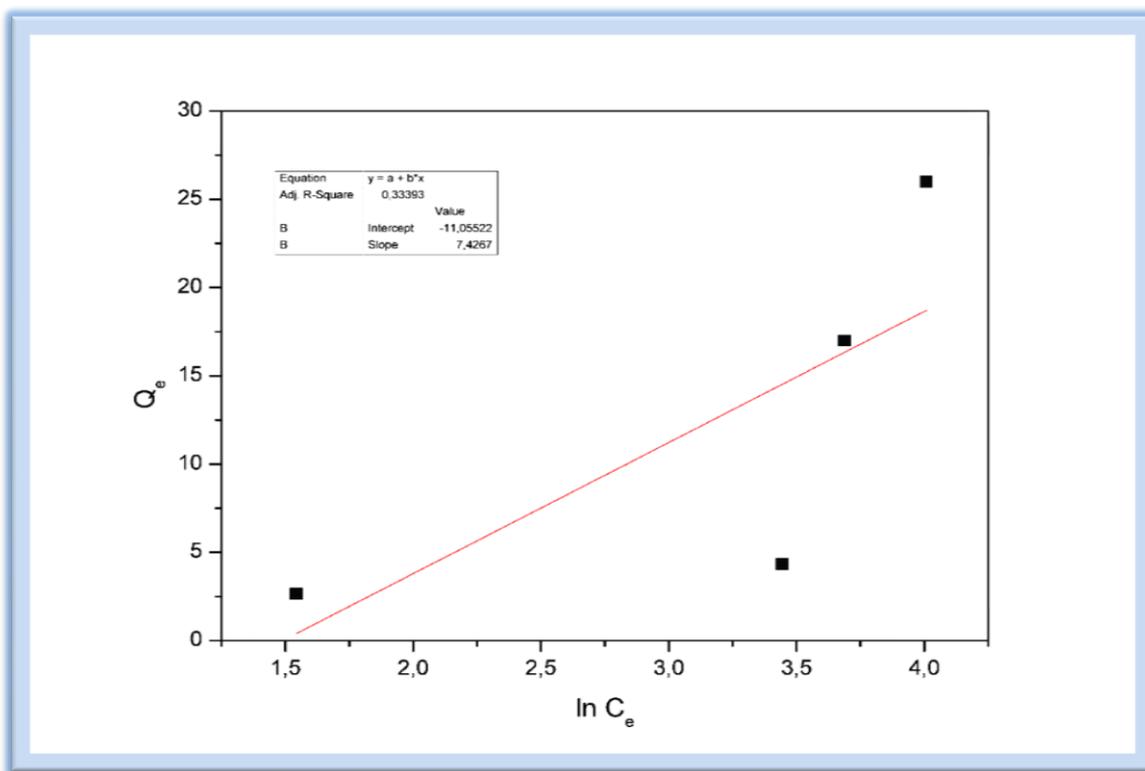
$$Q_e = (RT/b) \ln(K_t C_e)$$

Ou sous la forme :

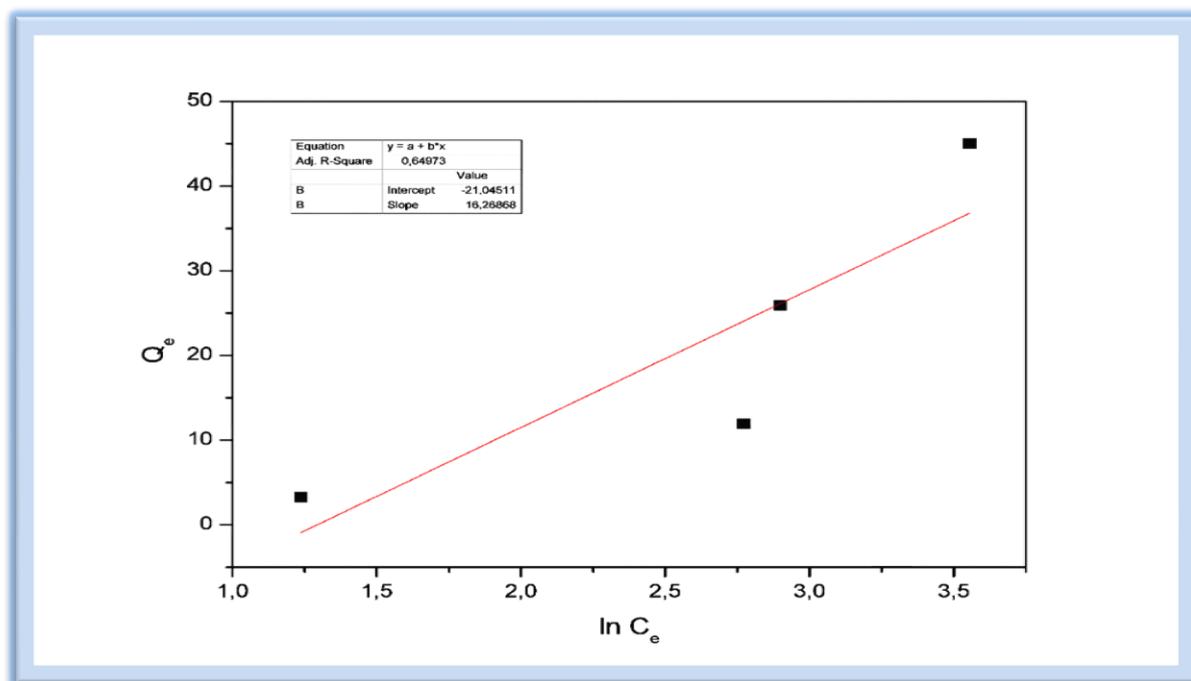
$$Q_e = B_1 \ln K_t + B_1 \ln C_e$$

Avec  $B_1 = RT/b$  (J/mol), la constante de Temkin relative à la chaleur de sorption et  $K_t$  (L.mg<sup>-1</sup>), la constante d'équilibre d'adsorption correspondant à l'énergie de liaison maximale.

Le tracé de  $Q_e = f(\ln C_e)$  est représenté dans **la figure V.14 et la figure V.15 :**



**Figure V.14 :** Isothermes de Temkin pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL ( $C_0 = 10-100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)



**Figure V.15 :** Isothermes de Temkin pour l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné ( $C_0 = 10-100$  mg/l, masse adsorbant = 0.2 g, Température ambiante, pH= 3)

**Tableau V.3 :** Paramètres des isothermes de l'adsorption du Tartrazine sur le HDL calciné et le non calciné

Adsorbant	Modèle de Freundlich			Modèle de Langmuir				Modèle de Temkin		
	$K_f$ (mg /g)	$n_f$	$R^2$	$K_l$ (L/mg)	$q_m$ mg/g	$R_L$	$R^2$	$B_T$ (j/mol)	$K_T$ (L/g)	$R^2$
<b>HDL non Calciné</b>	0,3551	1,2279	0,53644	0,0122	48,8997	0,5393	0,99091	7,4267	0,2256	0,33393
<b>HDL calciné</b>	0,5420	0,8879	0,91583	0,0138	65,1041	0,5086	0,99766	16,2586	0,2742	0,64973

D'après les résultats des isothermes illustrées sur les figures précédentes et des résultats du tableau V.3, on peut conclure que le modèle de Langmuir semble le plus approprié pour décrire le phénomène de fixation du Tartrazine sur les deux adsorbants (HDL non calciné et HDL calciné), cela en regardant les valeurs des coefficients de corrélation plus élevés et proches de 1 (0.9909 pour HDL non calciné et 0.9976 pour le HDL calciné) et des valeurs  $R_L$  ( $0 < R_L < 1$ ).

En outre, la capacité d'adsorption maximale calculée pour le HDL calciné à 600°C est égale à 65,1041( mg/g) supérieure à celle calculée pour le HDL non calciné, cela conduit à dire que le HDL calciné présente la plus grande capacité d'élimination des molécules du Tartrazine par rapport au HDL non calciné .

# *Conclusion Générale*

Le travail que nous venons de présenter dans ce présent mémoire avait comme objectif la synthèse et la recherche de nouveaux matériaux destinés à l'adsorption à savoir les hydroxydes doubles lamellaires (HDL). Cette étude a été réalisée au niveau de laboratoire de génies des procédés de l'université de Bouira.

Le matériau HDL a été préparé par la méthode de coprécipitation à pH constant, le support obtenu ont été caractérisé par la spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (FTIR), la diffraction des rayons X (DRX) et la détermination du PZC. Afin de montrer l'efficacité de ces adsorbants vis-à-vis de l'adsorption du Tartrazine, une étude détaillée d'adsorption a été faite.

D'après les résultats obtenus nous pouvons conclure que :

- Les spectres infrarouges à Transformée de Fourier (IFTR) d'adsorption des échantillons HDL montrent que l'allure des spectres est similaire à celle des hydroxydes doubles lamellaires.
- Les diffractogrammes des rayons X des échantillons confirment la structure de l'hydrotalcite. Les diffractogrammes montrent les raies typiques de la structure HDL et révèle une assez bonne cristallinité des solides préparés.
- Le point de zéro charge  $pH_{PZ}$  est obtenu à :  $pH = 8,4$  pour lequel la surface de l'HDL présente une charge nulle.

L'optimisation des paramètres opératoires par l'étude de l'influence de chaque paramètre opératoire sur l'efficacité de l'adsorption a été effectuée. Les paramètres opératoires étudiés sont : masse de l'adsorbant, la concentration initiale en polluant et le pH de la solution.

- Tout d'abord nous avons étudié l'influence de la masse d'adsorbant sur l'adsorption nous avons trouvé que le meilleur rendement d'élimination est obtenu pour une masse égale à 0,2g
- Ensuite on a passé à l'étude d'influence de la concentration initiale en Tartrazine nous avons trouvé que capacité d'adsorption du augmentait avec la concentration initiale, on a pu retenir que la concentration optimale est de 100 ml/g de polluant.

- Enfin on a optimisé le pH de la solution en différents domaines on a pu conclure que l'adsorption dépend du pH de la solution, le matériau présente une capacité d'adsorption élevée au milieu acide et diminue en augmentant le pH.
- Les résultats obtenus montrent que les HDL calcinés à 600 °C présentent des capacités d'adsorption meilleures par rapport à celles des HDL non calcinés. Le dégagement de particules de  $\text{CO}_3^{-2}$  dans la structure HDL a permis d'améliorer la capacité d'adsorption des HDL.
- L'étude de la cinétique d'adsorption a été effectuée en variant la concentration initiale en Tartrazine entre 10 et 100 mg/l. La modélisation de la cinétique a montré que le modèle de pseudo second ordre est le plus adéquat pour décrire la cinétique d'adsorption du Tartrazine sur les deux matériaux étudiés à savoir le HDL calciné et le HDL non calciné. Dans ce modèle, les coefficients de corrélation sont proches de 0,99.
- Ce qui concerne la modélisation des isothermes, les résultats expérimentaux ont été confrontés aux modèles de Freundlich, ce dernier décrit mieux les isothermes étudiées, révélant une adsorption multicouches.

Les résultats obtenus lors de cette étude à l'échelle laboratoire, confirment l'intérêt pratique et économique de l'utilisation des HDL dans le domaine de la dépollution des eaux contaminées par les colorants anioniques. On conclure que les HDL peuvent être bien utilisés dans la purification des eaux usées.

Vu les résultats encourageants obtenus, nous trouvons judicieux de proposer les perspectives suivantes pour compléter ce travail :

- Régénération des adsorbants et optimisation du cycle de vie des matériaux et la possibilité du traitement en mode continu.
- Tester la capacité de notre matériau dans l'adsorption d'autres polluants comme les produits pharmaceutiques et les métaux lourds.
- Effectuer des essais d'adsorption sur des eaux usées réelles des stations de traitement des eaux usées ou bien des rejets industriels.

*Références*  
*Bibliographiques*

- [1] M.S. Metahri, Elimination simultanée de la pollution azotée et phosphatée des eaux usées traitées par des procédés mixtes : cas de la STEP est de la ville de TiziOuzou, Thèse de Doctorat, TiziOuzou, (2012).
- [2] B. Drobenko, Droit de l'eau, Gualino - Mémentos LMD, Paris, (2007).
- [3] D. Djedouani, Etude de l'élimination de l'oxytétracyclinehydrochloride par adsorption sur charbon actif, Thèse de Doctorat, Alger, (2016).
- [4] INRS., (2004). Dermatoses professionnelles aux colorants, document pour le médecin de travail N°100, France, 4ème trimestre.
- [5] Daneshvar N., Salari, D., Khataee, A.R., *J. Photochem. Photobiol A: Chemistry*, 157 (2003) 111.
- [6] SALPIN, F. *Laine et colorants : fixation, quantification et vieillissement. Etude par spectrométrie Raman*. Thèse de Doctorat : Chimie Physique. France : Université de Pierre et Marie Curie, 2008, 146.
- [7] Définition d'un colorant selon le dictionnaire français LAROUSSE édition 2009
- [8] FARIDA HARRLEKAS «couplage des procédés membranaires aux technique physico- chimique ou biologique pour le traitement des rejets liquides, l'industrie de textile »thèse de doctorat université Cadi Ayyad de marrakech et institut national polytechnique de lorraine 2008
- [9] N. Azbar, T. Yonar, K. Kestioglu, *Chemosphere* 55 35-43; (2004)
- [10] Bousnoubra. I, Contribution à l'élimination de colorants (Vert de méthyle et Bromocrésol pourpre) par procédés photochimiques en phase homogène (séparés et mélangés), en phase hétérogène en milieu aqueux et par adsorption (Vert de méthyle) sur ZnO, Thèse du doctorat, Université des frères Mentouri-Constantine1. (2017).
- [11] BENAMARAOUI FOUZIA ; Elimination des colorants cationique par charbons actifs synthétisés à partir des résidus de l'agriculture; Thèse magister; Université Farhat Abbas setif ; (2014).
- [12] C.CUILLERMO ; l'évolution des colorants a travers les âges ; revues .Fr .Histotechnol n°1 pp 8-38 ; (1998)
- [13] BENAÏSSA Akila ; Etude de la dégradation photocatalytique d'un colorant synthétique et d'un tensioactif ; Thèse de Doctorat ; Université Mentouri Constantine ;(2010/2011).
- [14] BOUAFIA Souad ; Dégradation des colorants textiles par procédés d'oxydation avancée basées sur la réaction de fenton, application à la dépollution des rejets industriels ; Thèse de Doctorat ; Université PARIS-EST; (2010)
- [15] DERRADJI CHEBLI ; traitement des eaux usées industrielle : dégradation des colorants azoïques par un procédé intégré couplant un procédé d'oxydation avancée et un traitement biologique ; thèse de doctorat université Farhat Abbas SETIF ; 2009
- [16] INRS, Dermatoses professionnelles aux colorants, document pour le médecin de travail N°100, France, 4ème trimestre, (2004).
- [17] J.P.S. R. Perrin, Chimie industrielle, Tome 2. Edition Masson Paris(1995).
- [18] U. Pagga, D. Brown, The degradation of dyestuffs: Part II Behaviour of dyes tuffs in aerobic

biodegradation tests, *Chemosphere* 15 (1986) 479-491.

[19] N. Barka, L'élimination des colorants de synthèse par adsorption sur un phosphate naturel et par dégradation photocatalytique sur TiO<sub>2</sub> supporté, Thèse de Doctorat Agadir, (2008).

[20] Y. Bentahar, Caractérisation physico-chimique des argiles marocaines : application à l'adsorption de l'arsenic et des colorants cationiques en solution aqueuse, Thèse de Doctorat, Tetouan (2016).

[21] L. Amalric, C. Guillard, E. Blanc-Brude, P. Pichat, *Water Res.*, 30 1137-1142, 1996.

[22] J.P. Chen, L. Wang, «Characterization of metal adsorption kinetic properties in batch and fixed-bed reactors» *Chemosphere* 54, 397-404 2004.

[23] Merouni Djillali Redha « traitements azoïque et anthraquinonique par procédés d'oxydation avancée (POA) » Thèse doctorat « Université abd Alhamid Ibn Badis de Mostaganem » (2011).

[24] E.R. Nestmann, G.R. Douglas, T.I. Matula, C.E. Grant, D.J. Kowbel, Mutagenic activity of rhodamine dyes and their impurities as detected by mutation induction in *Salmonella* and DNA damage in Chinese hamster ovary cells, *Cancer Research* 39 4412-4417 (1979).

[25]-Fatima Zahra SAIDI ; Elimination du Bleu de Méthylène par des Procédés d'Oxydation Avancée ; Thèse magister ; Université Abou Bakr Belkaid Telemcen ; (2013)

[26] Chenini.H , Etude de la dégradation par voie photochimique de polluant organique «orange G » en milieu aqueux homogène et hétérogène, Thèse du doctorat, Université Mentouri-Constantine

[27] WINNACKER K., KÜCHLER L. *Traité de Chimie appliquée*. Paris : Editions Eyrolles, 1968. [5<sup>ème</sup> Ed] 165-166. Tome 7 : Chimie Organique, 3<sup>ème</sup> partie.

[28] Capon.Mady, Véronique Comlleau-Havérlent, Cécile Valette, *Chimie des couleurs et des odeurs*, 30 Septembre 1993.

[29] Robert Perrin, Jean-Pierre Scharff, *Chimie industrielle*, 2<sup>ème</sup> Edition, 19 août 2002

[30] R.G. Zepp et D.M. Cline, *Environment. Sci. Tech.*, 11 359-366 ;(1997).

[31] M.H.B. Hayes, Adsorption of triazine herbicides on soil organic matter, including a short review on soil organic matter; *chemistry Residue Rev.*, 32, 131, (1970).

[32] V. Golob and A. Ojstresk, Removal of vat and disperse dyes from residual pad liquors, *Dyes Pigments*, Vol 64, 57 – 61, (2005).

[33] P.C Vandevivere, R. Bianchi, W. Verstraete, *J. Chem. Techn. Biotechn.*, Vol 72, 289 – 302, (1998).

[34] V. Calabro, G. Pantano, R. Kang, R. Molinari, E. Drioli, *Energy and exergy analysis, Desalination*, vol 78, 257 - 277, (1990).

- [35] C. Raghavacharya, Chem. Eng. World.32, 53 – 54, (1997).
- [36] O. J. Hao, H. Kim, P. C. Ching, " Decoloration of waswater. Critical review", Environ. Sci.Techno. 30, 449 – 505, (2000).
- [27]W.T. Tsai, Y.M. Chang, C.W. Lai, C.C. Lo, Technical Note, applied Clay Science 29, 149 – 154, (2005).
- [37] J. Orthman, H.Y. Zhu, G.Q. Lu, Use of anion clay hydrotalcite to remove coloured organics from aqueous solutions Separation and Purification Technology 31, 53 – 59, (2003).
- [38] Mao-Xu Zhu, Yan-Ping Li, Mei Xie, Hui-Zhen Xin, Journal of Hazardous Materials B120, 163 – 171, (2005)
- [39] W.W. Eckenfelder ; Lavoisier. Paris, (1982).
- [40] E.Neyens, J. Baeyens, M. Weemaes, B. De Heyder ,J. Hazard. Mat. Vol. 98, 91 – 106, (2003).
- [41] K. Hamada, M. Nishizawa, D. Yoshida, M. Vol. 36, 313 – 322, (1998).
- [42] Santé Canada « Chloration de l'eau, votre santé et vous » revue mensuelle, ministère de la santé, Canada, (1999).
- [43] U. Pagga and K. Taeger ,Wat. Res. Vol. 28, 1051 – 1057, (1994).
- [44] R. K. Sani, U.C. Banerjee « Decolorization of triphenylmethane dyes and textile and dye-stuffeffluent by kurthiasp» Enzyme and microbial Tech. Vol. 24, 433 – 437, (1999).
- [45] E.Zawlotzki, Guivarch,Thèse de Doctorat en Chimie, Université de Marnc-La-Vallé, France(2004).
- [46] Bouanimba.N, Modélisation et optimation de la cinétique de dégradation photocatalitique de polluants organiques en solution aqueuse , Mémoire en magister, Université Mentouri - Constantine.(2009).
- [47] Gouarir. B, Elimination d'un colorant par adsorption sur support solide et par procédés photochimiques, en milieu aqueux, Mémoire en magister, Université Constantine 1.
- [48] A. Ouakouak, Elimination du cuivre, des nitrates et des phosphates des eaux paradsorption sur différents matériaux, Thèse de Doctorat, Biskra, (2017).
- [49] N. Barka, «L'élimination des colorants de synthèse par adsorption sur un phosphate naturel et par dégradation photocatalytique sur TiO2 supporté», thèse doctorat, Agadir, (2008).
- [50] E.L.cochrane et al, «A comparison of low-cost biosoents and commercial sordents for the removal of copper from aqueous media », journal of hazardous materials 137 (2006) 198-206.
- [51] ZEMOURI. K etZOUAGAGH. D , Etude de l'adsorption de colorants organiques (Bleu de Méthylène et Méthyle Orange) sur les coquilles de noix de coco , Mémoire master , Université Abderrahmane MIRA de Bejaia.(2019).
- [52] BOUALLA.Net BENZIANE.A , Étude expérimentale sur l'élimination des nitrates par

adsorption sur des argiles activées et non activées de la sebkha d'Oran, Article

- [53] WEBER W.J., VANVLIET B.M. Activated carbon adsorption of organic from the aqueous phase, Ed. I.H. Suffet, M.J. Mc Guire<sup>1</sup>, 2002.
- [54] K. Bellir, Caractérisation et étude de la rétention du cuivre par des matériaux naturels utilisés dans l'imperméabilisation des décharges, Mémoire de Magister, Constantine,(2002).
- [55] C.H. Giles, D. Smith, A. Huitson, A general treatment and classification of the solute adsorption isotherm. I. Theoretical, Journal of colloid and interface science 47 (1974) 755-765.
- [56] C.H. Giles, D. Smith, J. Colloid Interf. Sci. 47 (1974) 755-765.
- [57] M. Belmouden, Thèse de Doctorat, Faculté des Sciences d'Agadir, (2000).
- [58] Moulay-Rachid BABAA «Contribution à l'étude de l'adsorption physique de gaz sur les nanotubes de carbone mono- et multiparois» thèse de doctorat l'Université Henri Poincaré, Nancy-I 2004.
- [59] A. Dąbrowski, P. Podkościelny, Z. Hubicki, M. Barczak. Adsorption of phenolic compounds by activated carbon-a critical review. Chemosphere, 58(2005)1049-1070.
- [60] F. Boudrahem, « Contribution à l'étude de l'adsorption des ions Pb (+II) par des charbons actifs dans un réacteur agité fermé », thèse de magistère, université de Bejaïa,Algérie. (2006).
- [61] I. Langmuir, The constitution and fundamental properties of solids and liquids. Part I. Solids, Journal of the American chemical society 38 (1916) 2221-2295.
- [62] R.Baccara et al, Journal of Hazardous Materials 162(2009) 1522-1529.
- [63] J-M.Vanson, Interdépendance entre géométrie, adsorption et transport dans les matériaux à porosité hiérarchique, Thèse de Doctorat, Paris (2016).
- [64] H. Freundlich, Über die adsorption in lösungen, Zeitschrift für physikalische Chemie 57 (1906) 385-470.
- [65] J.Lyklema, "Fundamentals of Interface and Colloid Science", Vol. 3, Liquide-fluideInterface, (2000).
- [66] W. Stumm, J.J. Morgan, Aquatic chemistry, Ed.2, Wiley inter-science J., Wiley & sons (1981).
- [67] H. Aksas, Etude cinétique et thermodynamique de l'adsorption des métaux lourds par l'utilisation des adsorbants naturels, Thèse de Doctorat, Boumerdes, (2013).
- [68] A. Khalfoui, Etude expérimentale de l'élimination de polluants organique et Inorganique par adsorption sur des matériaux naturels : Application aux peaux d'orange et de banane, Thèse de Doctorat, Constantine, (2012).
- [69] D. Yadav, M. Kapur, P. Kumar, M.K. Mondal, Adsorptive removal of phosphate from aqueous

solution using rice husk and fruit juice residue, *Process Safety and Environmental Protection* 94 (2015) 402-409.

- [70] M.T. Amin, A.A. Alazba, M. Shafiq, Adsorptive removal of reactive black 5 from wastewater using bentonite clay: isotherms, kinetics and thermodynamics, *Sustainability* 7 (2015) 15302-15318.
- [71] L. Amalric, C. Guillard, E. Blanc-Brude, P. Pichat, *Water Res*, 30 1137-1142, 1996
- [72] E.L. cochrane et al, «A comparison of low-cost biosorbents and commercial sorbents for the removal of copper from aqueous media », *Journal of hazardous materials* 137 (2006) 198-206.
- [73] A. Ouakouak, Elimination du cuivre, des nitrates et des phosphates des eaux par adsorption sur différents matériaux, Thèse de Doctorat, Biskra, (2017).
- [74] N. Barka, «L'élimination des colorants de synthèse par adsorption sur un phosphate naturel et par dégradation photocatalytique sur TiO<sub>2</sub> supporté», thèse doctorat, Agadir, (2008).
- [75] C.H. Giles, D. Smith, A. Huitson, A general treatment and classification of the solute adsorption isotherm. I. Theoretical, *Journal of colloid and interface science* 47 (1974) 755-765.
- [70]. Lei L., Hu M., Gao X. et Sun Y., *Electrochimica Acta*, 54, 671-676 ; (2008).
- [71] El Gaini L., Lakraimi M., Sebbar E., Meghea A., Bakasse M., *J. of Hazard. Mater.*, 161, Issues 2-3, 627-632 ; (2009).
- [72] A. Ait Ichou, M. Abali, M. Chiban, G. Carja, M. Zerbet, E. Eddaoudi, F. Sinan, « Élaboration et caractérisation d'argiles synthétiques de type HDL et leur application pour l'adsorption des ions Cu<sup>2+</sup> », Université Ibn Zohr, FSA, Département de Chimie, Agadir, Maroc et Université Technique Gh. Asachi, FGCPE, Iasi, Roumanie, 18 Octobre 2014.
- [73] F- Cavani, F-Trifiro, A-Vaccari, *Today* 11 (1991) 173- 30.
- [74] H-Zhu: Adsorption of metal cations by anions clay hydrotalcite. *Wars with town send. Individual Inquiry*, (2001).
- [75] M-L- Occelli, J-P. Olivier, A. Auroux, H-Ecker, *Chem. . Mater.* 15(2003) 4231- 4238 .
- [76] A. de Roy, C. Forano, K. El Malki, J. P. Besse, M. L. Occelli, H. E. Robson Editions, *Expanded Clays and Other Microporous Solids, Vol.2*, Reinhold, New York, (1992).
- [77] V. Rives. S. Kannan, " Layered double hydroxides with the hydrotalcite-type structure containing Cu<sup>2+</sup>, Ni<sup>2+</sup> and Al<sup>3+</sup> ", *Mater. Chem.*, 10 (2000) 489-495.
- [78] S. A. Solin, D. R. Hines, G. T. Seidler and M. M. J. Treacy, *J. Phys Chem. Solids*, (1996), 57- 1043.
- [79] M. Khaldi, M. Badreddine, A. Legrouri, M. Chaouch, A. Barroug. A. De Roy and J. P. Besse. *Mat. Res. Bull*, (1998), 33 -1835.

- [80] V. Rives and M. A. Ulibarri, *Coord. Chem. Rev.* (1999), 181 - 61.
- [81] U. Castantino, V. Ambrogi, M. Nocchetti and L. Perioli, *Microp. Mesop. Mater.* 107 (2008) 149.
- [82] J.-H. Choy, S.-J. Choi, J.-M. Oh, T. Park, *Appl Clay Sci*, 36 (2007) 122–132
- [83] F. Leroux, M. Adachi-Pagano, M. Intissar, S. Chanvière, C. Forano and J.P.Besse, *J. Mater. Chem.* 11 (2001) 105
- [84] M. Lakraimi, A. Legrouri, A. Barroug, A. DeRoy and J. P. Besse. *J. Mater. Chem*, 10 (2000) 1007-1011.
- [85] B. I. Intorre and A. E. Martell, *J. Am. Chem. Soc.*, 82-358 (1960)
- [86] U. Costantino, F. Marmottini, M. Nocchetti, R. Vivani, *European. J. Inorganic. Chem*, (1998) 1439- 1446.
- [87] E. L. Crepaldi, J. B. Valim; *Quimica. Nova* 21 (1998) 300-311.
- [88] Carlino, S., *Solid state ionic*, 98 p. 73 (1997).
- [89] S. Touati, *Elaboration d'aérogels d'hydroxydes doubles lamellaires et de bionanocomposites à base d'alginate*, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II, (2013).
- [90] B. Grégoire, *Relation Composition-Structure des Hydroxydes Doubles Lamellaires: Effets de la charge du feuillet et de la nature de l'anion interfoliaire*, (2012).
- [91] U. Echahid, H. Lakhdar, F. Des, S. Et, D.E.S. Technologie, U.D. El-oued, *Utilisation d'une argile synthétique comme charge renforçant pour les matériaux composites*, (2016).
- [92] A. Ookubo, K. Ooi, H. Hayashi, *Hydrotalcites as potential adsorbents of intestinal phosphate*, *J. Pharm. Sci.* 81 (1992) 1139–1140.
- [93] J. Choy, S. Kwak, Y. Jeong, J. Park, *Inorganic layered double hydroxides as nonviral vectors*, *Angew. Chemie Int. Ed.* 39 (2000) 4041–4045.
- [94] S. P. Newman, W. Jones. *J. Solid State Chem.* 148 (1999) 26–40.
- [95] T. Toraishi, S. Nagasaki, S. Tanaka. *Clay Sci.* 22(2002)17–23.
- [96] R. L. Goswamee, P. Sengupta, K. G Bhattacharyya, D. K. Dutta. *Appl Clay Sci.* 13 (1998) 21–34.
- [97] T. Kameda, F. Yabuuchi, T. Yoshioka, M. Uchida, A. Okuwaki. *Water Res.* 37(2003)1545–1550.
- [98] B. Hourri, A. Legrouri, A. Barroug, C. Forano, J.P. Besse, *Czech.Chem.Comm.*, 63 (1998) 732-740.
- [100] L.M. Parker, N.B. Milestone, R.H. Newman. *Ind. Eng. Chem. Res.* 34(1995)1196-1202.
- [101] J. Inacio, C. Taviot-Guého, C. Forano, J.P. Besse., *Appl Clay Sci* 18 (2001) 255-264.

- [102] R. S. Jayashree, P. V. Kamath, J. of Electrochem. Soc, 149 (2002) 761.
- [103] H.Chen, J. M. Wang, T. Pan, H. M. Xiao, J. Q.Zhang, C. N. J.Cao, Hydr. Energ, (2002) 489.
- [104] H. Chen, J. M. Wang, T. Pan, Y. L Zhao, J. Q. Zhang, C. N. J. Cao, Electrochem. Soc 150 (2003) 1399.
- [105] R. S. Jayashree, P. V. Kamath. J. of Pow. Sour, 107 (2002) 120.
- [106] H. Sakaebe, H. Uchino, M. Azuma, M. Shikano, S. Higuchi, Solid, Stat, Ion, 15 (1998) 35.
- [107] C. Mousty, S. Therias, C. Forano, J.P. Besse, J. Electroanal. Chem, 374 (1994) 63-69.
- [108] N.T.Wihilton, P.J.Vickers ,S.Mann, Bioinorganic clays ;.J.Mater.Chem7 (1997)1623-1629.
- [109] M. W ei , S.Shi , J.Wang , Y ; Li and Xue Duan; Journal of solid State Chemistry 177(2004)2534\_2541.
- [110] B. Li ,J.He, D.Evans,X .Duan Applied Clay Science 27(2004)199-2007.
- [111] L.Dussault, Thèse de Doctorat, Université de Pau et des pays de l'Adour, Ecole Doctorale des Sciences Exactes et de leurs Applications, (2005).
- [112] F. P. Bonina, M. L. Giannossi, L.Medici, C. Puglia; V. Summma, F.T Ateo; Diclofenac-hydrotalciter: In vitro and in vivo release experiments; Applied Clay Science 41(2008) 165171.
- [113] H. Nakayama, N. Wada, M. Tshako; Pharmaceutics,269(2004) 469-478.
- [114] F. Wong, R. G. Buchheit, Prog. Org. Coatings, 51 (2004) 91.
- [115] A. Ait Ichou, M. Abali, M. Chiban, G. Carja, M. Zerbet, E. Eddaoudi, F. Sinan, « Élaboration et caractérisation d'argiles synthétiques de type HDL et leur application pour l'adsorption des ions  $Cu^{2+}$  », Université Ibn Zohr, FSA, Département de Chimie, Agadir, Maroc et Université Technique Gh. Asachi, FGCPE, Iasi, Roumanie, 18 Octobre 2014.
- [116] Docteur Guillaume BOUDARHAM ; Spectromètre Infrarouge à Transformée de Fourier ; Laboratoire Pluridisciplinaire de Criminalistique ; 2014.
- [117] Thierry COLLET ; Professeur de Physique-Chimie ; COMPRENDRE La spectroscopie infrarouge (39 – 42) ; Lycée Vauvenargues, Aix-en-Provence ; 14 septembre 2016
- [118] Michel GIORGI ; Responsable du Service Commun de Cristallographie au Spectropole ; Fédération Sciences Chimiques Marseille ; Diffraction des rayons X sur monocristal ; 2021.
- [1119] Michel Deneken (Président) ; Institut de Chimie et Procédés pour l'Énergie, l'Environnement et la Santé ; *Université de Strasbourg* ; Fiche Identité DRX ; 2013.
- [120] A.K., Kushwaha, Neha Gupta, M.C ; Chattopadhyaya Élimination des colorants cationiques bleu de méthylène et vert malachite de la solution aqueuse par les déchets de *Daucuscarota* ; Journal de la société chimique saoudienne ; 2011.
- [121] J. Inacio, C.Forano, C.Taviot – guého, J. P.Besse, Microp Mater 10(2000) 67-84.

- [122] M. SILION, M. IONEL POPA «la cinétique de la libération du ketoprofène intercalé dans les hydroxydes doubles lamellaires» Colloque Franco-Roumain de Chimie Appliquée – COFRROCA 2008”, 25 – 29 June 2008, Bacău, Romania.
- [123] Frédéric Élie, Tartrazine et colorants, french governmental institution ; ResearchGate ; Article de juillet 2004
- [124] N. HOUDJEDJI. M. NEE. Evaluation du risque toxicologique du colorant alimentaire tartrazine, à court terme chez la Souris swiss. Thèse de doctorat. Université d'ORAN 2011/2012.
- [125] Claudine Biellmann, Stabilité et réactivité des carbonates à très hautes pression et température : Implications pour le stockage du carbone dans le manteau terrestre, Rennes, Université de Rennes I, coll. « Mémoires de géosciences Rennes », 1993, 230.
- [126]: H.S. Shin, M.J. Kim, S.Y. Nam, H.C. Moon. (1996) Phosphorus removal by hydrotalcite-like compounds (HTLcs), *Water Science and Technology* 34: 161–168.
- [127]: G.P. Gillman. A simple technology for arsenic removal from drinking water using hydrotalcite, *Science of the Total Environment* 366: 926–931; (2006).
- [127]: Zhiqing Tong, Pei Zheng, Bo Bai, Honglun Wang and Yourui Suo. (2016) Adsorption performance of Methyl Violet via Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>@Porous Hollow Carbonaceous Microspheres and Its Effective Regeneration through a Fenton-Like Reaction, *Catalysts*, 6, 58.
- [128]: L.R. Bonetto, F. Ferrarini, C. De Marco, J.S. Crespo, Regis Guegan, M. Giovanela. (2015) Removal of methyl violet 2B dye from aqueous solution using a magnetic composite as an adsorbent, *Journal of Water Process Engineering, Elsevier*, 6: 11-20.
- [129] HALIMI, H, AYAD, M. *Synthèse d'un charbon actif pour l'élimination des polluants en phase aqueuse par adsorption et photocatalyse*. Mémoire de Master : Génie des Procédés de l'Environnement. Algérie : Université Mohammed Seddik Benyahia (Jijel), 2018, 67.
- [130] F. Leroux, M. Adachi-Pagano, M. Intissar, S. Chanvière, C. Forano and J.P. Besse, *J. Mater. Chem.* 11 (2001) 1
- [131]: Marcio Jose, Fabiano Silve'rio, Jairo Tronto, Joao Barros Valim. (2004) Effects of pH, temperature, and ionic strength on adsorption of sodium dodecylbenzenesulfonate into Mg–Al–CO<sub>3</sub> layered double hydroxides. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 65: 487–492.
- [132] Kubilay, S., Gürkan, R., Savran, A. and Sahan, T., (2007) Removal of Cu(II), Zn(II) and Co(II) Ions from Aqueous Solutions by Adsorption onto Natural Bentonite. *Adsorption*, 13, 41-51.

## Résumé :

Ce travail porte sur la synthèse des matériaux (HDL) et son application dans l'adsorption d'un colorant organique nommé Tartrazine. La technique utilisée pour la préparation de HDL est la co-précipitation.

Le matériau synthétisé a été caractérisé par la diffraction des rayons X (DRX), spectroscopie infrarouge (FTIR) et la détermination du point zéro charge  $pH_{pzc}$ .

Une calcination d'une petite quantité de HDL synthétisée a été faite puis une étude d'adsorption d'un colorant sur le HDL préparé à été détaillée dans ce manuscrit. On a tout d'abord étudié l'influence des paramètres opératoires sur le phénomène d'adsorption, on a commencé par la variation de la masse d'adsorbant, puis la concentration initiale du polluant et enfin le pH de la solution utilisée.

L'étude cinétique de l'adsorption du polluant étudié montre que le mécanisme d'adsorption est décrit par une cinétique du pseudo-second ordre et que les isothermes d'adsorption sont décrites par le modèle de Freundlich.

**Mots clés :** HDL. Adsorption. Tartrazine. Photocatalyse.

## Summary:

This work focuses on the synthesis of materials (HDL) and its application in the adsorption of an organic dye named Tartrazine. The technique used for the preparation of HDL is co-precipitation.

The synthesized material was characterized by X-ray diffraction (XRD), infrared spectroscopy (FTIR) and determination of the zero point charge  $pH_{pzc}$ .

A calcination of a small quantity of synthesized HDL was made then a study of adsorption of a dye on the HDL prepared was detailed in this manuscript. We first studied the influence of the operating parameters on the adsorption phenomenon; we started with the variation of the mass of adsorbent, then the initial concentration of the pollutant and finally the pH of the solution used.

The kinetic study of the adsorption of the studied pollutant shows that the adsorption mechanism is described by pseudo-second order kinetics and that the adsorption isotherms are described by the Freundlich model.

**Keywords:** HDL. Adsorption. Tartrazine. Photocatalysis.

ملخص:

يركز هذا العمل على توليف المواد (HDL) وتطبيقها في امتزاز صبغة عضوية تسمى Tartrazine. التقنية المستخدمة

لتحضير HDL هي الترسيب المشترك.

تميزت المادة المركبة بحيود الأشعة السينية (XRD)، والتحليل الطيفي للأشعة تحت الحمراء (FTIR) وتحديد شحنة نقطة

الصف  $pH_{pzc}$ .

تم إجراء تكليس لكمية صغيرة من HDL المُصنَّع ثم تم تفصيل دراسة امتزاز الصبغة على HDL المُعد في هذه المخطوطة. درسنا أولاً تأثير معلمات التشغيل على ظاهرة الامتزاز ، وبدأنا باختلاف كتلة المادة الماصة ، ثم التركيز الأولي للمادة الملوثة ، وأخيراً الرقم الهيدروجيني

للمحلول المستخدم.

أظهرت الدراسة الحركية لامتصاص الملوثات المدروسة أن آلية الامتزاز موصوفة بحركية الرتبة الثانية وأن متساويات الامتزاز موصوفة بنموذج فروندليش.

الكلمات الرئيسية: HDL. الامتزاز. تارترازين. التحفيز الضوئي

