



وزارة البحث العلمي والتعليم العالي
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE
LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
جامعة عبد الحميد بن باديس مستغانم
Université Abdelhamid Ibn Badis Mostaganem
كلية العلوم والتكنولوجيا
Faculté des Sciences et de la Technologie
DEPARTEMENT DE GENIE DES PROCÉDES



N° d'ordre : M2...../GPE/2022

MEMOIRE DE FIN D'ETUDES DE MASTER ACADEMIQUE

Filière : Génie des procédés de l'environnement

Option : Génie des procédés de l'environnement

Thème

Etude de la régénération d'un charbon actif chargé en
colorant synthétique

Présenté par :

M^{elle} BAHNES Meriem

M^{elle} LARBI Maroua

Soutenu le 06/07/ 2022 devant le jury composé de :

Président :	TERKHI Mohamed Cherif	MCA	Université de Mostaganem
Examineur :	SAIDJ Merzouk	MCA	Université de Mostaganem
Encadrant :	TERMOUL Mourad	MCA	Université de Mostaganem

Année Universitaire : 2021/2022

Remerciements

Nous remercions d'abord le bon **DIEU** tout puissant qui nous à donné la santé, le courage, la force de résister et la volonté d'accomplir ce travail.

Nous remercions profondément notre encadrant Monsieur **TERMOUL.M**, Maître de conférences au département de génie des procédés, université de **MOSTAGANEM**, avec qui nous avons eu le grand plaisir de travailler tout au long de ce mémoire.

Nous lui adressons notre gratitude pour ses conseils, encouragement et amabilité dont il a fait preuve tout au long de notre collaboration.

Nous remercions **Mr SAIDJ Merzouk** et **Mr TERKHI Mohamed Cherif**, les membres de jury d'examen pour l'honneur qu'ils nous font en participant au jugement de ce travail.

Nous remercions également tous les enseignants qui ont contribué efficacement à notre formation.

Merci du fond du cœur à tous nos collègues de la promotion 2022 sans exceptions.

Nous n'oublions de remercier tous les membres et les ingénieurs de laboratoire.

Bref, Un grand merci à tous.

DEDICACES

Je dédie cet humble travail aux deux êtres les plus chers au monde

À ma très chère maman et à mon très cher père,

pour leur amour, leur soutien, pour les prières de ma mère pendant mes moments
les plus difficiles.

Et que Dieu leur procure bonne santé et longue vie

Mes très chers frères **Yasseur, Akram, Abdelkader** qui ont toujours
été là pour moi,

Leur soutien inconditionnel et leurs encouragements ont été d'une grande aide.

Mon adorable binôme **Maroua** avec qui j'ai eu le plaisir de travailler.

Ma copine d'amour **Amina**

A toute la promotion de Génie des procédés de l'environnement 2021/2022

Pour tous mes enseignants de primaire à l'université

Enfin,

Je vous souhaite à tous une vie pleine de bonheur et de Succès et que Dieu,
le tout puissant, vous protège et vous garde.

Meriem

DEDICACES

Je dédie ce modeste travail

A ma mère, pour son amour, ses
Encouragements et ses sacrifices

A mon père, pour son soutien, son affection
Et la confiance qu'il m'accordé

Que Dieu les protège et les garde pour moi.

A mes très chers frères, **MOHAMED** et **ILYES**
Puisse Dieu vous donne santé, bonheur, courage, et surtout
Réussite

A ma chère binôme **Meriem**, qui a eu la patience de me supporter durant ce
mémoire, et qui m'a soutenu et encouragé pendant tous les moments
difficiles vécus

A mes meilleures **Asma** et **Taria**

A tous ma famille, mes amis

Et tous ceux qui m'aiment...

MAROUA

Résumé

Les charbons actifs sont des matériaux largement utilisés pour éliminer une variété de polluants dans différents milieux. La structure poreuse, la chimie de surface et le type d'adsorption déterminent le potentiel des carbones activés en tant que matériau adsorbant. Toutefois, dans une perspective plus globale, il est nécessaire de prendre en considération d'autres facteurs tels que la viabilité économique de la production et de la réutilisation. Ce dernier facteur dépend de la capacité de régénération des carbones activés après chaque application. Suivant cette ligne directrice, l'objectif de ces travaux était d'évaluer la capacité de régénération de charbon actif granule. Après avoir étudié les paramètres d'adsorption, la capacité d'adsorption du charbon actif (Organosorb) vis à vis du bleu de méthylène égale à 125 mg/g, suivie de la régénération du charbon actif, succédant aux plusieurs cycles de régénération. Les méthodes de régénération utilisées étaient le lavage simple à l'eau distillée par agitation magnétique pendant 4 heures et le lavage par l'extracteur Soxhlet. D'après les deux procédés de régénération utilisées, la désorption du bleu de méthylène par soxhlet pendant 8 cycles donne un rendement de 28,82 % par rapport à celle de l'agitation simple (R=18,96%).

Mots clés : bleu de méthylène, Adsorption, charbon actif, régénération.

Summary

Active coals are materials widely used to remove a variety of pollutants in different media. The porous structure, surface chemistry and adsorption type determine the potential of activated carbon as an adsorbent material. However, from a more global perspective, it is necessary to take into account other factors such as the economic viability of production and reuse. This latter factor depends on the regenerative capacity of the activated carbon after each application. According to this guideline, the objective of this work was to evaluate the regenerative capacity of granular activated charcoal. After studying the adsorption parameters, the adsorption capacity of the activated charcoal (Organosorb) in relation to methylene blue equal to 125 mg/g, followed by the regeneration of the activated charcoal, succeeding the several regeneration cycles. The regeneration methods used were simple washing with distilled water by magnetic stirring for 4 hours and washing by the Soxhlet extractor. According to the two regeneration processes used, desorption of methylene blue by soxhlet for 8 cycles gives a yield of 28.82% compared to that of simple agitation (R=18.96%).

Keywords: methylene blue, adsorption, activated charcoal, regeneration.

الفحم النشط عبارة عن مواد تستخدم على نطاق واسع لإزالة مجموعة متنوعة من الملوثات في وسائط مختلفة. تحدد البنية المسامية وكيمياء السطح ونوع الامتزاز إمكانات الكربون المنشط كمادة ماصة. ومع ذلك، من منظور عالمي أكثر، من الضروري مراعاة عوامل أخرى مثل الجدوى الاقتصادية للإنتاج وإعادة الاستخدام. يعتمد هذا العامل الأخير على القدرة التجديدية للكربون المنشط بعد كل تطبيق. وفقاً لهذا المبدأ التوجيهي، كان الهدف من هذا العمل هو تقييم القدرة التجديدية للفحم الحبيبي المنشط. بعد دراسة معاملات الامتزاز، فإن قدرة الامتصاص للفحم المنشط (Organosorb) فيما يتعلق بالميثيلين الأزرق تساوي 125 مجم / جم، يتبعها تجديد الفحم المنشط، عقب دورات التجديد العديدة. كانت طرق التجديد المستخدمة هي الغسل البسيط بالماء المقطر عن طريق التحريك المغناطيسي لمدة 4 ساعات والغسيل بواسطة مستخرج سوكلت. وفقاً لعمليتي التجديد المستخدمتين فإن استخراج الميثيلين الأزرق بواسطة مستخرج سوكلت لمدة 8 دورات يعطي عائداً قدره 28.82% بالمقارنة مع الغسل البسيط الذي يعطي عائداً قدره 18.96%.

الكلمات المفتاحية : أزرق الميثيلين، الامتزاز، الفحم النشط، التجديد.

Sommaire

Remerciements	
DEDICACES	
Résumé.....	
Introduction générale	1
Chapitre1	3
Pollutions et polluants.....	3
1. La pollution	4
2. Type des pollutions	4
2.1 Pollution de l'air	4
2.2 Pollution de sol	4
2.3La pollution de l'eau	5
3. Type des polluants	6
3.1Polluants physique	6
3.2Polluants chimiques	6
3.3Polluants biologiques	6
4. Les colorants	7
5. Traitements des colorants	7
6. Toxicité des colorants	7
7. Le bleu de méthylène	8
8. Toxicité du bleu de méthylène	8
Chapitre2	10
Adsorption sur les charbons Actif.....	10
1. Introduction	11
2. Généralité sur l'adsorption	11
3. Types d'adsorption	11
3.1Adsorption physiques (physisorption)	11
3.2Adsorption chimique (chimisorption)	12
4. Mécanismes d'adsorption	12
5. Isothermes d'adsorption	13
6. Types des isothermes d'adsorption	14
7. Modèles d'adsorption	15
7.1 Modèle de Freundlich	15
7.2 Modèle de Langmuir	16

8. Le charbon actif	17
9. Définition	17
10. Les adsorbants	18
11. Le charbon actif comme adsorbant	19
12. Différentes formes du charbon actif	19
12.1- Les charbons actifs en poudre (CAP)	19
12.2 - Les charbons actifs en grain (CAG)	19
Chapitre 3	21
Régénération des charbons	21
Actif	21
1. Introduction	22
2. Différentes méthodes de régénération	23
2.1-Méthodes de régénération par déplacement de la pollution	23
2.2-Méthodes de régénération par destruction de la pollution	24
Chapitre 4	27
Partie expérimental	27
I. Introduction	28
I.1. Le matériau adsorbant	28
I.2. Etude de l'adsorption du bleu de méthylène sur CAG	29
II.2.1. Préparation de la solution mère du bleu de méthylène	29
I.2.2. courbe d'étalonnage du BM	29
I.2.1. Le spectrophotomètre	29
II. L'isotherme d'adsorption	32
Modalisation des isothermes d'adsorption	32
III. Régénération du charbon actif	36
Taux d'adsorption-désorption.....	36
Régénération par agitation magnétique	36
Régénération par Soxhlet	38
Conclusion générale.....	42
Références bibliographiques	44

Figure 1: structure chimique du bleu de méthylène	8
Figure 2: Mécanisme du transfert d'un adsorbat vers le site d'adsorption au sein d'un grain d'adsorbant..	13
Figure 3: Les différents types d'isothermes d'adsorption	15
Figure 4: La structure des pores d'un charbon actif.....	18
Figure 5: Le charbon actif en poudre (CAP).....	19
Figure 6: Le charbon actif granulé (CAG).....	20
Figure 7: Synthèse des techniques des régénérations des CA [35].....	23
Figure 8: spectrophotomètre modèle UVmini-1240	30
Figure 9: La courbe d'étalonnage du bleu de Méthylène.	31
Figure 10: L'isotherme d'adsorption du BM sur le CAG.	34
Figure 11: modélisation linéaire par le modèle de Langmuir de l'isotherme du bleu de méthylène sur CAG	34
Figure 12: modélisation linéaire par le modèle de Freundlich de l'isotherme du bleu de méthylène sur CAG.....	35
Figure 13: taux de désorption en fonction du temps pour la désorption du bleu de méthylène par agitation simple.....	38
Figure 14: Un extracteur de Soxhlet.	40
Figure 15: taux de désorption en fonction du temps pour la désorption du bleu de méthylène par extracteur de soxhlet.	41

Introduction générale

L'eau est la source de toute vie sur Terre. Néanmoins, diverses activités humaines, comme la fabrication urbaine ou l'agriculture, contribuent à la pollution.

Les colorants synthétiques utilisés dans l'industrie textile, par exemple, sont rejetés directement dans le milieu aquatique sans aucun traitement.

En raison de cette importante menace environnementale, de nombreuses études sur la contamination de l'eau ont été menées au cours des dernières années.

Plusieurs procédés de décontamination ont été mis au point, l'adsorption étant le plus souvent utilisé [1].

La méthode d'élimination des colorants la plus utilisée est le processus d'adsorption, qui est devenue une méthode d'analyse à la fois efficace et simple d'utilisation [2].

Le principe du traitement d'adsorption est de lier les colorants avec un matériau solide appelé adsorbant.

Il existe plusieurs matériaux solides (argiles, zéolites, aluminium activé, boue, biomasses, résidus agricoles, sous-produits industriels et carbone actif) qui peuvent être utilisés dans les processus de décoloration de l'eau, selon la littérature.

Le bleu de méthylène est le colorant le plus couramment utilisé dans la teinture du coton, du bois et de la soie. Il peut causer des brûlures oculaires, qui peuvent causer des dommages durables aux yeux des humains et des animaux. Son inhalation peut causer des problèmes respiratoires, et son ingestion par la bouche provoque une sensation de brûlure, des nausées, des vomissements, de la transpiration et une pléthore de sueurs froides [3].

Le traitement des déchets industriels contenant ce type de colorant semble présenter un grand intérêt.

Dans le traitement des effluents colorés, un large éventail d'approches physiques, chimiques et biologiques a été développé et testé [4].

En raison de leur structure poreuse, de leur grande surface spécifique et de leur capacité d'adsorption élevée, les carbones actifs synthétisés à partir de déchets agricoles ont été largement utilisés comme adsorbants pour traiter les effluents colorés au cours des dernières années.

Nous avons mené cette étude pratique pour déterminer l'efficacité du carbone actif granulé vis à vis du bleu de méthylène et son régénération par différentes méthodes.

Introduction

Nous verrons comment nous avons choisi la meilleure concentration du bleu de méthylène que nous avons utilisée pour une meilleure régénération du charbon actif.

Il s'agit des effets de la concentration, du pH, de la vitesse d'agitation, de la température, du temps de contact et de la masse. L'objectif principal de notre travail est de régénérer le charbon actif saturé en bleu de méthylène.

Le premier chapitre est consacré à une étude bibliographique sur les pollutions de l'air et de sol et de l'eau, et aussi sur les polluants chimiques physique et biologique. Nous avons abordé les concepts de la toxicité des colorants et leur traitement en particulier le bleu de méthylène.

Le second chapitre décrit, des généralités sur le processus d'adsorption, ses types et les quatre étapes de ce mécanisme.

Le troisième chapitre est à l'étude bibliographique de différentes méthodes de régénération : par déplacement de la pollution (Régénération extractive, Réactivation de la vapeur, Régénération par ultrasons) et par destruction de la pollution (Régénération thermique à hautes températures, Réactivation chimique, électrochimique, biologique).

Le dernier chapitre présent l'ensemble des résultats expérimentaux et leurs discussions, concernant l'équilibre d'adsorption sur le CAG et régénération.

Ce travail se termine par une conclusion générale récapitulant les principaux résultats obtenus, et quelques perspectives qui pourraient être la continuation de ce travail.

Chapitre 1 :

Pollutions et polluants

1. La pollution :

La pollution est définie comme la modification des propriétés physiques, chimiques et biologiques de l'air ou sol ou eau et il cause des dommages à la vie humaine dans le domaine de l'activité quotidienne, industrielle et agricole causant dommages causés aux sources naturelles de l'environnement [5].

La pollution de l'environnement a également été définie comme tout changement quantitatif ou qualitatif dans les composantes du milieu de vie et non vivant, qui les écosystèmes peuvent l'absorber sans perturber leur équilibre, et la pollution en ce sens est biologiquement diversifiée.

Chimiquement ou physiquement, provoquant la propagation de polluants dans des proportions différentes dans l'air, l'eau et le sol [6]. Ainsi, les scientifiques ont convenu de définir la pollution de l'environnement comme la perturbation comprend l'équilibre naturel des composants de l'environnement qui affecte la vie des organismes vivants.

2. Type des pollutions :

2.1 Pollution de l'air :

La pollution de l'air (ou pollution atmosphérique) est un changement de la qualité de l'air causé par des polluants chimiques, biologiques ou physiques présents dans l'air, avec des conséquences négatives pour la santé humaine, les êtres vivants, l'environnement ou les biens matériels. Ces polluants peuvent être naturels ou d'origine humaine, et ils affectent l'atmosphère et/ou l'air à l'intérieur des lieux clos (voitures, maisons, usines et terriers). Ils sont généralement composés de cocktails de polluants tels que des particules en suspension ou d'autres composés dont la concentration et la durée de présence sont suffisantes pour produire un effet toxique ou écotoxique. Ils ont la capacité d'interagir avec la lumière (pollution photochimique) [7].

2.2 Pollution de sol :

La pollution des sols est l'accumulation et le dépôt de nombreuses substances dangereuses, telles que les substances toxiques et nocives, les produits chimiques dangereux, provenant de déchets industriels. Il affectant la couche supérieure du sol, réduisant la fertilité des sols et réduisant leur production, et l'impact grave de ces substances toxiques entraîne des déséquilibres environnementaux qui causent des problèmes de production végétale,

En plus d'entraîner de graves problèmes de santé pour ceux qui consomment ces cultures parce qu'elles sont contaminées par des substances toxiques dangereuses. le sol contient un groupe de composés naturellement présents dans leur composition en raison de l'activité microbienne dans le sol tels que les minéraux, les ions, les sels tels que les phosphates, le carbonate, les sulfates, les nitrates et de nombreux composés organiques tels que les graisses, les protéines, les acides gras, l'ADN, les hydrocarbures et l'alcool. Ces composés sont formés par l'activité microbienne dans le sol, et la pollution du sol est appelée lorsque la proportion de ces composés dépasse le niveau normal et est reconnue dans différents types de sol [8].

2.3La pollution de l'eau :

L'eau joue un rôle primordial pour les êtres vivants. Bien qu'une surface importante de notre planète soit recouverte d'eau, seulement 3% des réserves correspond à de l'eau douce, et est donc propre à la consommation ou directement utilisable pour les besoins domestiques, agricoles ou industriels. Sachant que 70% de l'eau douce est piégée dans les glaces ou située dans les nappes souterraines profondes, moins de 1% de l'eau sur la planète est donc accessible pour les besoins humains et peut être consommée, ce qui la rend si précieuse. L'eau propre potable devient un bien de plus en plus rare et il devient donc urgent de la préserver.

La pollution de l'eau peut être définie comme une altération de ses qualités naturelles qui peut être de nature physique, chimique ou biologique et qui rend sa consommation dangereuse et/ou perturbe la vie aquatique. Elle peut concerner les eaux superficielles (rivières, plans d'eau) et les eaux souterraines. L'eau contaminée est devenue une réelle problématique mondiale et menace à la fois la qualité de vie et la santé publique.

L'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) publie régulièrement des recommandations sur Les origines de la pollution de l'eau sont diverses, mais restent toujours liées aux activités humaines : pollutions domestiques et urbaines (eaux usées ménagères et hospitalières), industrielles (eaux contaminées par des produits chimiques tels que les métaux lourds ou les hydrocarbures) et agricoles (produits issus de l'épandage, engrais, pesticides, etc.).

La pollution de l'eau la plus ancienne est celle due à la matière organique, suivi au début du XXème siècle par la pollution métallique engendrée par le développement industriel.

Avec l'augmentation de la population, l'urbanisation, l'industrialisation et l'intensification agricole, de nouveaux types de polluants sont donc apparus comme les solvants organiques, les engrais, les pesticides et les produits pharmaceutiques.

Dans le but d'enrayer la croissance de la contamination des eaux, les effluents issus des activités industrielles doivent faire l'objet d'une attention particulière [9].

3.Type des polluants :

3.1Polluants physique :

Les phénomènes physiques qui incluent le rayonnement (qui est plus dangereux Sur l'environnement et le renouveau) la chaleur, le bruit, les vibrations, les ondes électromagnétiques et ces polluants interfèrent avec les caractéristiques physiques des éléments de l'environnement ou du matériau vivant [10].

3.2Polluants chimiques :

Un large éventail de polluants les plus répandus dans l'environnement comprennent un grand nombre de substances naturelles telles que l'huile et ses dérivés, les huiles, les graisses, les toxines naturelles, le plomb et le mercure et les gaz provenant des volcans et d'un grand nombre de matériaux manufacturés tels que les pesticides et les produits agrochimiques déchets industriels d'acides, de sels, de règles, d'incendies, d'échappements automobiles et d'usines particules fines provenant des cimenteries et produits chimiques liquides lorsqu'ils sont déversés dans le sol ou l'eau [11].

3.3Polluants biologiques :

Ce sont pour la plupart des organismes microscopiques qui modifient certaines caractéristiques ou caractéristiques environnementales lorsqu'elles sont présentes ou nocives pour la santé humaine ou toute autre renaissance. Selon les fondements scientifiques de l'écologie, il s'agit d'un composant biologique naturel, y compris un parasite Vit dans l'intestin humain ou les animaux et peut causer un état pathologique comme dans le cas des parasites intestinaux ou n'a pas d'effet néfaste sur la santé comme dans le cas de nombreuses bactéries intestinales que les pratiques humaines ont conduit Mauvais sur l'environnement, comme mettre des déchets humains dans les rivières ou jeter des animaux morts dans les sources. aquatique pour créer de nombreux problèmes environnementaux et sanitaires et ainsi transporter ces quartiers à des polluants environnementaux de sorte que le L'expression des bio polluants est limitée aux agents pathogènes tels que les bactéries, les parasites, les champignons et les virus [12].

3. Les colorants :

Les colorants sont des composés chimiques colorés, naturels ou synthétiques. La terminologie industrielle moderne définit un colorant comme, un produit contenant le colorant organique pur, avec différents additifs, qui facilitent son utilisation [13]. Un colorant est défini comme étant un produit capable de teindre une substance d'une manière durable. Il possède des groupements qui lui confèrent la couleur appelés chromophores et des groupements qui permettent sa fixation [14].

4. Traitements des colorants :

Compte tenu de la variabilité du contenu des rejets de textiles, il est généralement nécessaire de développer une chaîne de traitement qui assure l'élimination de divers polluants par phases. Le prétraitement (criblage, dessalage, déshuilage, etc.) et/ou les procédures physiques ou physico-chimiques qui assurent la séparation solide/liquide sont les premières étapes de l'élimination des polluants insolubles.

Les techniques de dépollution intervenant le plus couramment en deuxième étape dans les industries textiles d'après Barclay et Buckley et kurbus et al [15], se divisent en trois types :

- Biologique :
 - Traitement aérobie,
 - Traitement anaérobie
- Physique :
 - Méthodes de précipitation (coagulation, floculation, sédimentation),
 - Adsorption (sur charbon actif), - Osmose inverse, filtration, - Incinération.
- Chimique :
 - Oxydation (oxygène, ozone, oxydants tels que NaOCl, H₂O₂),
 - Réduction (Na₂S₂O₄),
 - Méthode complexométrique,
 - Résine échangeuse d'ions.

5. Toxicité des colorants :

Actuellement, de nombreux complexes de l'industrie rejettent des quantités importantes d'eau colorée dans la nature. Ces rejets peuvent se transmettre à l'être humain par infiltration du

colorant dans les nappes phréatiques et de la poussière. Ils peuvent causer de graves problèmes pour les êtres humains au niveau des reins, du foie, du cerveau et du système nerveux central. Les rejets d'effluents chargés en colorants des industries textiles, dans les rivières, peuvent nuire grandement aux espèces animales, végétales ainsi qu'aux divers microorganismes vivant dans ces eaux. Cette toxicité, est liée à la diminution de l'oxygène dissout dans ces milieux. Par ailleurs, leur très faible biodégradabilité, due à leur poids moléculaire élevé et à leurs structures complexes, confère à ces composés un caractère toxique pouvant être élevé ou faible. De ce fait, ils peuvent persister longtemps dans ce milieu, engendrant ainsi des perturbations importantes dans les différents mécanismes naturels existant dans la flore (pouvoir d'autoépuration discours d'eau, inhibition de la croissance des végétaux aquatique. etc.) ainsi dans la faune (destruction d'une catégorie de poissons, de microorganisme, etc....) [16].

6. Le bleu de méthylène :

Le bleu de méthylène (ou chlorure de méthylthioninium) est un composé organique dont la formule chimique est bis-(diméthylamino)- 3,7 phenazathioniumchlorure, de formule brute: $C_{16}H_{18}ClN_3S$, Sa masse molaire est de 319,852 g/mol. Il est soluble dans l'eau (50 g/L à 20 °C) et plus légèrement dans l'alcool (10 g/L dans l'éthanol à 20 °C).

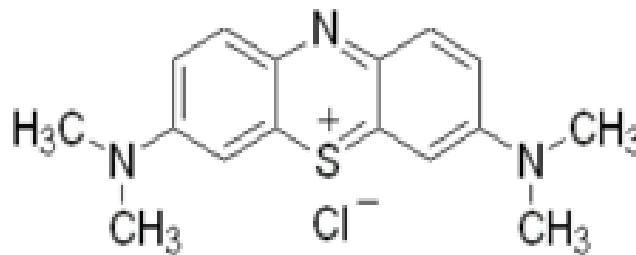


Figure 1: structure chimique du bleu de méthylène

Il a de nombreuses applications. Il agit comme un indicateur de couleur redox, avec sa forme oxydée étant bleu et sa forme réduite étant incolore, C'est un colorant cationique (basique) qui est utilisé comme antiseptique. Afin de lutter contre la méthémoglobine. Si elle est consommée, elle peut irriter les yeux, les voies respiratoires et la peau.

7. Toxicité du bleu de méthylène :

Depuis de nombreuses années, les recherches toxicologiques sur l'utilisation du bleu de méthylène chez l'homme ont démontré qu'il n'y a aucun danger associé à l'utilisation de cette substance comme produit thérapeutique. Si la dose est trop élevée, elle peut provoquer des douleurs thoraciques, une dyspnée, de l'anxiété, des tremblements, des hypertensions et même une décoloration de la peau [17].

Le bleu de méthylène n'est pas particulièrement dangereux, mais il nuit aux organismes vivants et à l'eau. L'exposition externe à cette substance provoque une irritation de la peau et des dommages durables aux yeux. L'inhalation entraîne une respiration rapide ou difficile et l'augmentation de la fréquence cardiaque. L'ingestion : inconfort gastro-intestinal, nausées, transpiration excessive, désorientation mentale, cyanose et nécrose des tissus humains [18].

Chapitre2 :

Adsorption sur les charbons Actif

1. Introduction :

Kaiser a suggéré l'adsorption pour la première fois en 1881[19], et c'est maintenant une technologie de séparation couramment utilisée pour le traitement de l'eau et des effluents industriels. L'inverse de l'adsorption est la désorption, qui a été proposée pour la première fois en 1909. L'adsorption est fréquemment utilisée pour la séparation et l'épuration des gaz et des liquides [20]. Le charbon actif qui est le matériau entièrement utilisé dans le traitement des gaz et liquide. En raison de ses caractéristiques uniques (surface spécifique élevée et hétérogénéité chimique et structurale), il est efficace comme adsorbant.

2. Généralité sur l'adsorption :

L'adsorption est le processus d'accumulation d'un matériau à l'interface entre deux phases (gaz-solide, gaz-liquide, liquide-solide, liquide-liquide, solide-solide). Les forces d'attraction moléculaire, qui peuvent être de différents types et intensités, sont responsables de la cohésion des phases condensées (liquides ou solides). Les molécules qui sont bien adsorbées sont appelées "adsorbat," et la phase qui attire les éléments de l'autre phase est appelée "adsorbant." L'adsorption se produit lorsque l'énergie ou les circonstances cinétiques permettent à une molécule de se fixer à la surface de la phase adsorbant [21].

3. Types d'adsorption :

3.1 Adsorption physiques (physisorption):

L'adsorption physique se produit sans changer la structure chimique et peut se faire en configuration monocouche ou multicouches. Cette physisorption est le résultat de la physique non spécifique (forces de Van der Waals : forces de dispersion de Londres, forces de polarisation de Debye et force d'orientation de Keesom) et d'interactions spécifiques telles que les forces électrostatiques pour les adsorbants contenant des ions (zéolite) ou des groupes de surface (charbons) [22].

Il est réversible et généralement peu spécifique, les molécules adsorbées pouvant couvrir toute la surface de l'adsorbant en raison de forces intermoléculaires de faible énergie (moins de 40 kJ.mol^{-1}).

3.2 Adsorption chimique (chimisorption):

Il s'agit d'un type d'adsorption chimique qui provient des forces de liaison chimiques naturelles (beaucoup plus fortes que les forces de Van der Waals) avec regroupement ou transfert d'électrons, provoquant des ruptures de surface et la formation de liaisons chimiques. Entre les sites adsorbants actifs et le réactif [23]. La chimisorption est définie comme suit :

- un long équilibre entre la phase adsorbée et le fluide doit être atteint ;
 - La température entraîne une augmentation de la quantité de matière adsorbée
 - La chaleur d'adsorption est comparable à la chaleur de réaction (de 40 à 60 °C). 400 kJ/mol), environ dix fois celle de l'adsorption physique ;
 - Un degré élevé de spécificité, en ce sens que des adsorbants particuliers sont plus spécifiques que d'autres adsorbats.
 - L'adsorption chimique peut souvent être empilée sur l'adsorption physique si nécessaire [24].

4. Mécanismes d'adsorption :

L'adsorption de molécules d'un soluté initial existant en solution sur des adsorbants solides poreux en fonction du temps est décrite en quatre étapes. La figure 2 montre :

1. Transfert de matière par diffusion de soluté de la phase liquide extérieure à la phase liquide à proximité immédiate de la surface adsorbante.
2. Transfert de soluté à la surface par une couche liquide fixée à la particule solide. Grains de l'extérieur.
3. Transfert de matière dans la structure poreuse de la surface extérieure du grain.
4. Adsorption aux sites actifs ; la molécule est considérée comme immobile une fois adsorbée [25].

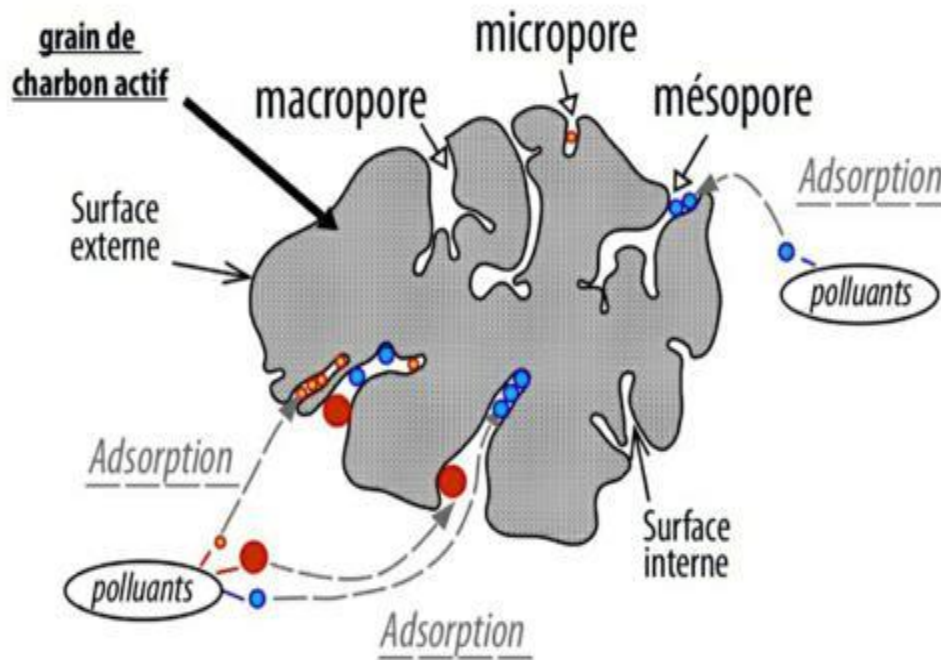


Figure 2: Mécanisme du transfert d'un adsorbant vers le site d'adsorption au sein d'un grain d'adsorbant.

5. Isothermes d'adsorption :

Un isotherme d'adsorption peut être utilisé pour caractériser un processus d'adsorption. A Un isotherme est une courbe qui illustre le lien entre la quantité de soluté adsorbée par une substance et sa concentration. La concentration du soluté dans la solution C_e et l'unité de masse de l'adsorbant q_e ou x/m . Les résultats des tests de laboratoire effectués sur une personne sont utilisés pour créer cette courbe. La même température, pour ce faire, des quantités connues d'adsorbant sont ajoutées à la solution. Les quantités d'eau à traiter, et la concentration peut être surveillée après un temps de contact précis soluté dans une solution résiduelle [26]. La quantité de soluté adsorbé est calculée à l'aide de l'équation :

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e) \cdot V}{m \cdot 1000} \dots \dots \dots (I.1)$$

Où

C_0 : Concentration initiale de soluté (mg/L) ;

C_e : Concentration de soluté à l'équilibre (mg/L) ;

q_e : Quantité de soluté adsorbé à l'équilibre par unité de poids de l'adsorbant (mg/g) ;

x : Quantité de soluté adsorbé à l'équilibre (mg).

$$x = (c_0 - c_e) \cdot v \dots \dots \dots (I.2)$$

m : masse d'adsorbant (g)

6. Types des isothermes d'adsorption :

Tous les systèmes adsorbant-adsorbât ne se comportent pas de la même manière. Expérimentalement, on distingue quatre classes principales nommées :

- Isotherme de type I: L'interprétation classique de cette isotherme est qu'elle est relative à une formation d'une couche mono moléculaire complète. Cette isotherme est relative à des solides microporeux de diamètre inférieur à 25 Å.

- Isotherme de type II: C'est la plus fréquemment rencontrée, quand l'adsorption se produit sur des poudres non poreuses ou ayant des macropores de diamètre supérieurs à 500 Å.

- Isotherme de type III : Cette isotherme est caractéristique des adsorptions où la chaleur d'adsorption de l'adsorbat est inférieure à la chaleur de liquéfaction. Cette isotherme est relativement rare, elle indique la formation de couches poly-moléculaires, dès le début de l'adsorption, et avant que la surface n'ait été recouverte complètement d'une couche mono-moléculaire.

- Isotherme de type IV : Cette isotherme se produit sur des solides ayant des pores, avec des diamètres compris entre 15 et 1000 Å. La pente croît à des pressions relatives élevées, ce qui indique que les pores sont totalement remplis. Comme pour l'isotherme de type II, la poly-couche démarre quand la monocouche est totalement réalisée.

- Isotherme de type V: Cette isotherme donne aussi comme l'isotherme de type IV lieu à une hystérésis, elle est similaire à l'isotherme du type III, c'est-à-dire que la poly-couche démarre, bien avant que la monocouche ne soit pas totalement réalisée. Ce type d'isotherme est aussi caractéristique de solides poreux, ayant des diamètres de pores du même ordre que ceux des solides donnant des isothermes de type IV et V présente à la fin, une pente différente attribuée, à la géométrie des pores. De présents cinq types d'isothermes dans la figure suivante :

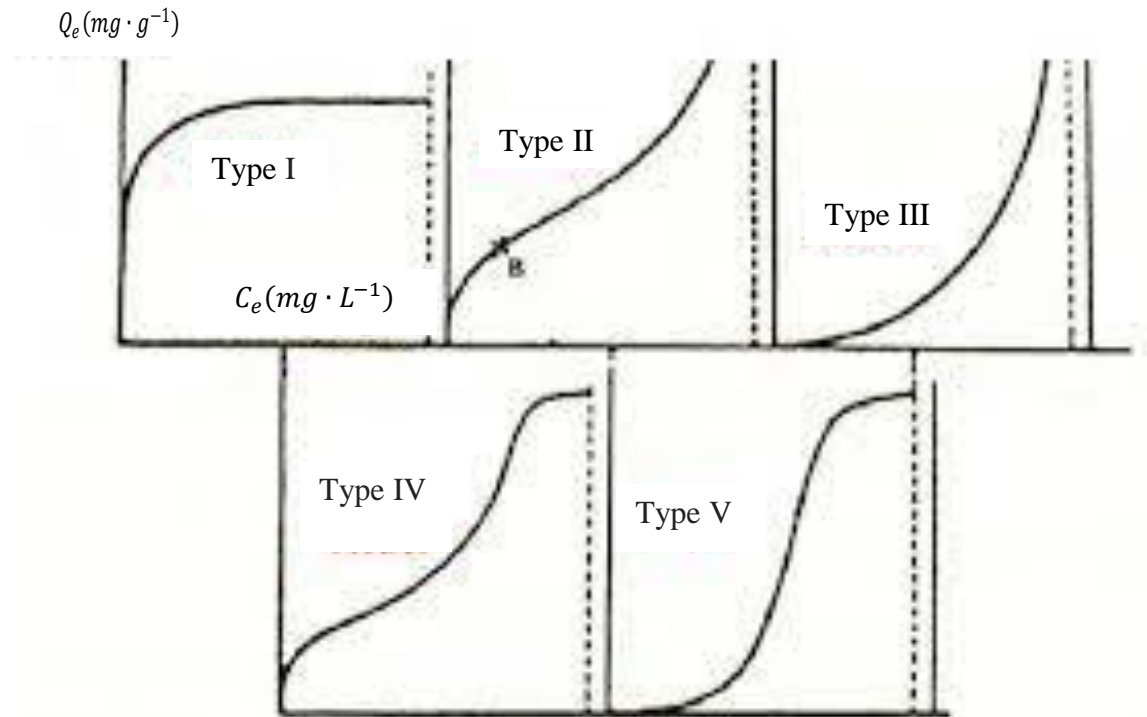


Figure 3: Les différents types d'isothermes d'adsorption[27]

7. Modèles d'adsorption :

Les modèles d'adsorption sont utilisés pour calculer la quantité absolue de matière adsorbée. Les modèles d'adsorption comprennent des modèles analytiques et numériques. Voici plusieurs modèles analytiques empiriques courants pour décrire l'adsorption.

7.1 Modèle de Freundlich :

Freundlich a développé un modèle en 1962 qui décrit l'adsorption dans des milieux liquides ou gazeux avec une surface d'adsorption hétérogène (adsorption d'énergie des sites), aucun mouvement de molécule sur la surface, et aucun contact d'adsorbat. Il a deux paramètres (K_f et $1/n$) dans son équation.

L'équation suivante décrit le modèle de Freundlich :

$$q_e = K_f \cdot C_e^{1/n}$$

Avec :

- q_e : quantité adsorbée par unité de masse de l'adsorption (mg/g).
- C_e : concentration à l'équilibre de la substance dissoute dans la solution (mg/L).

- k_f : constante de Freundlich correspondante à l'énergie d'adsorption ($\text{mg}^{1-(1/n)} \text{L} (1/n)/\text{g}$).
- n : constante, a une valeur supérieure à 1, en général comprise entre 2 et 10.

La linéarisation du modèle de Freundlich $\ln q_e = f(\ln c_e)$ donne l'équation suivante :

$$\ln q_e = \ln K_f + \frac{1}{n} \ln c_e$$

- Lorsque $n=1$, l'adsorption est linéaire, c'est à dire que les sites sont homogènes et qu'il n'y a pas d'interaction entre les espèces adsorbées.
- Lorsque $n > 1$, l'adsorption est favorable, la capacité d'adsorption augmente et de nouveaux sites d'adsorption apparaissent ;
- Lorsque $n < 1$, l'adsorption n'est pas favorable, les liaisons d'adsorption deviennent faibles et la capacité d'adsorption diminue [28].

7.2 Modèle de Langmuir :

La théorie proposée par Langmuir (1918) a permis l'étude de l'adsorption de molécules de gaz sur une surface métallique. Elle est basée sur les hypothèses suivantes :

- L'adsorption se produit en monocouche ;
- Il n'y pas d'interaction entre les molécules adsorbées ;
- Le nombre de sites d'adsorption est limité ;
- La réaction est réversible (c'est-à-dire qu'il y a équilibre entre l'adsorption et la désorption);
- Chacun de ces sites à la même affinité pour un certain soluté (surface d'adsorption énergétiquement homogène) [29].
- Le modèle Langmuir exprimé par la relation suivante :

$$\frac{q_e}{q_m} = \frac{K_L \cdot C_e}{1 + C_e \cdot K}$$

L'affinité entre l'adsorbant et l'adsorbat est déterminée en calculant le rapport R_L en fonction de la constante de Langmuir comme est présenté ci-dessous :

$$R_L = \frac{1}{1 + k_l \cdot c_0}$$

Si :

$0 < R_L < 1$, adsorption favorable.

$R_L > 1$, adsorption défavorable.

$R_L = 1$, adsorption linéaire.

$R_L = 0$, adsorption irréversible.

8. Le charbon actif :

Les charbons actifs sont tous d'origine végétale, minérale et animale. Ils jouent depuis longtemps un rôle important dans les activités domestiques, industrielles et agricoles de l'homme. Les charbons actifs ont une capacité d'adsorption élevée et une place particulière dans l'environnement. Les charbons actifs sont utilisés dans la purification de l'eau, décoloration du sucre, récupération des solvants, fixation des colorants et traitement des gaz.

9. Définition :

Le charbon actif est un mot large qui se réfère à une variété de matériaux carbonés avec un haut degré de porosité et une grande surface développée allant de 500 à 2000 m²/g. Il n'est pas vraiment amorphe, bien qu'il ait une structure microcristalline extrêmement poreuse avec une grande variété de diamètres de pores, de fissures visibles, de fissures moléculaires et de fissures moléculaires. Selon le diamètre des pores, ils sont divisés en trois types de porosité. La porosité est classée comme suit selon la définition de l'UICPA [30].

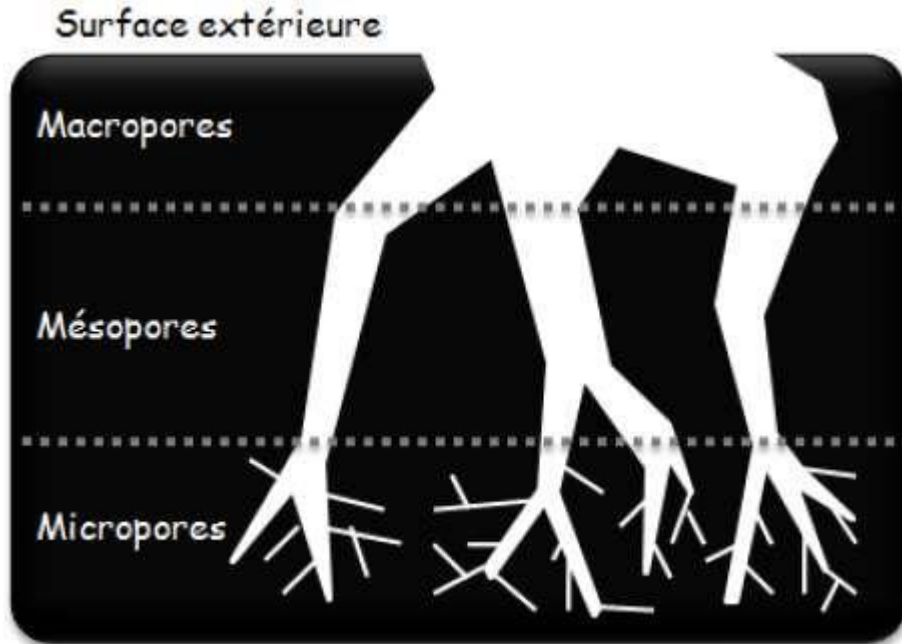


Figure 4: La structure des pores d'un charbon actif

La taille des pores de charbon actif est répartie en trois grandes catégories [31]:

- Micropores : largeur inférieure à 2 nm.
- Mésopores : largeur entre 2nm et 50 nm.
- Macropores : largeur supérieure à 50 nm.

10. Les adsorbants :

On trouve des adsorbants dans tous les solides. Seuls les adsorbants ayant une surface suffisamment spécifique peuvent présenter un intérêt pratique. Pour avoir une grande capacité, il est préférable d'avoir une grande surface spécifique. Pour choisir un adsorbant pour une séparation, il faut d'abord déterminer la distribution granulométrique des pores en particulier [32].

On distingue cinq grands types d'adsorbants qui sont plus utilisées dans le domaine de l'industrie : les argiles activées, les zéolithes, les alumines activées, les gels de silice et les charbons actifs.

11. Le charbon actif comme adsorbant :

De loin les adsorbants les plus couramment fabriqués, les charbons actifs sont utilisés dans un large éventail d'applications domestiques et industrielles. Surtout dans les domaines de l'eau et du nettoyage de l'air [33], la puissance d'adsorption des charbons actifs est due à la porosité, à la surface spécifique et aux groupements fonctionnels de la surface.

12. Différentes formes du charbon actif :

12.1- Les charbons actifs en poudre (CAP) :

Pulvérisé avec une taille de moins de 0,18 mm (US Mesh 80). Ce charbon est principalement employé dans des applications en phase liquide et pour le traitement des flux gazeux.



Figure 5: Le charbon actif en poudre (CAP).

12.2 - Les charbons actifs en grain (CAG) :

Ce sont des particules de formes irrégulières parmi une gamme de tailles allant de 0,2 mm à 5 mm Ce type de charbon est utilisé pour des applications en phase liquide et gazeuse.



Figure 6: Le charbon actif granulé (CAG).

Les deux structures ci-dessus sont couramment utilisées dans le traitement des eaux usées pour rendre ce type d'eau consommable, en particulier pour l'extraction moléculaire de produits chimiques de faible poids. L'un des problèmes rencontrés dans l'application des procédures, cependant, est la diffusion progressive des particules dans les adsorbants est adsorption au traitement de l'eau (par exemple le CAG). En revanche, le PAC a un taux d'adsorption plus rapide, mais son applicabilité industrielle est limitée en raison de sa manipulation difficile.

Chapitre 3 :
Régénération des charbons
actif

1. Introduction :

Le charbon actif est un article dont le prix est relativement élevé. D'un point de vue économique (et environnemental), il est préférable de renouveler cet adsorbant afin qu'il puisse être réutilisé plutôt que de devenir un déchet ultime, et qu'il puisse retrouver ses qualités adsorbantes d'origine. On considère que le charbon actif est saturé ou sursaturé lorsque tous les sites d'adsorption sont saturés.

C'est pourquoi il est fréquemment rajeuni. Le but de la réactivation, également appelée régénération, est de désorber les molécules piégées par le charbon actif.

En 1828, des charbons actifs chauffés générés à partir d'os d'animaux ont été utilisés pour créer la première technique de régénération à l'échelle commerciale [34].

Depuis, les méthodes ont évolué et se sont diversifiées. La désorption (augmentation de la température ou extraction par solvant) et/ou la dégradation du polluant sont utilisées comme procédures de régénération (procédé électrochimique ou microbiologique). Certaines techniques sont arrivées à maturité au point d'être largement employées dans l'industrie, tandis que d'autres sont encore au stade de la recherche et du développement en laboratoire, deux approches de régénération du matériau seront présentées : l'une impliquant l'extraction de la molécule (migration de phase de désorption) et l'autre utilisant la dégradation de la molécule (dégradation), changement des propriétés physico-chimiques de la molécule adsorbée.

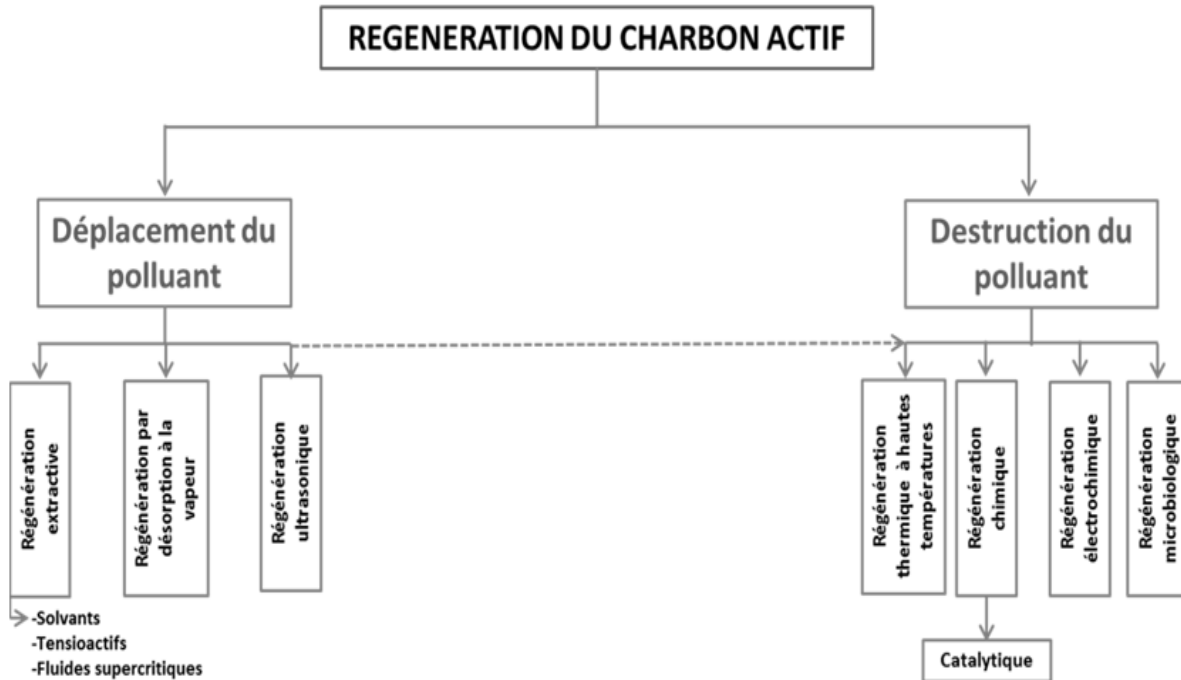


Figure 7: Synthèse des techniques des régénérations des CA [35].

2. Différentes méthodes de régénération :

2.1-Méthodes de régénération par déplacement de la pollution :

Régénération extractive :

Pour extraire les contaminants du charbon actif, ce procédé peut utiliser un solvant organique volatil, un fluide supercritique tel que le CO_2 , ou des solutions concentrées de tensioactifs.

Ensuite, des traitements supplémentaires sont nécessaires pour recycler le solvant (par exemple, par distillation) et détruire les contaminants (le plus souvent par incinération). La présence de solvant résiduel peut également avoir un impact sur les caractéristiques d'adsorption du charbon actif.

L'utilisation de CO_2 supercritique (qui a également l'avantage d'être un bon solvant avec des propriétés de transfert semblables à celles d'un gaz) résout cette difficulté tout en facilitant la séparation ultérieure des contaminants extraits (en abaissant simplement la pression).

Cependant, même si certaines estimations le situent à un coût inférieur à celui des régénérations thermiques, sa mise en œuvre reste coûteuse.

Réactivation de la vapeur :

Ce procédé est uniquement utilisé pour régénérer les charbons actifs qui ont été simplement absorbés.

Les produits qui sont extrêmement volatils. Le traitement à la vapeur, en revanche, peut être utilisé pour désengorger la surface des granulés de charbon. Le charbon actif s'échauffe très rapidement. Les molécules d'eau s'adsorbent et poussent les molécules à l'extérieur. La condensation de la vapeur et des produits chimiques désorbés se produit lorsque le flux sortant est refroidi à la température ambiante.

Régénération par ultrasons :

L'utilisation des ultrasons (US) pour la régénération du charbon actif est également étudiée, mais elle en est encore au stade de la recherche. En utilisant les effets thermiques et mécaniques, les États-Unis peuvent aider à la désorption des contaminants. En raison de la génération concomitante de radicaux OH^- , issus des molécules d'eau qui oxydent les contaminants, ce procédé peut également être considéré comme nocif. La sonication, en revanche, reste une technique de désorption en raison de la cavitation acoustique limitée de la structure microporeuse. De plus, la génération de radicaux est négligeable aux basses fréquences couramment utilisées.

2.2-Méthodes de régénération par destruction de la pollution :

Régénération thermique à hautes températures :

C'est le mode de régénération le plus courant. Il s'agit d'un procédé de pyrolyse. Il s'agit d'une technologie de pyrolyse qui permet de brûler les matières organiques adsorbées par les charbons actifs.

Pour éviter que le charbon ne s'enflamme, il est chauffé à une température appropriée (entre 500 et 1000°C, avec une température moyenne de 800°C) dans un environnement contrôlé où les contaminants sont volatilisés. Les polluants sont vaporisés au cours de ce processus.

Comme elle nécessite l'achat de fours, cette méthode est d'un coût prohibitif. Faible rendement en vrac, avec des pertes de l'ordre de 7 à 10 %.

Réactivation chimique :

Un solvant est utilisé dans ce processus, qui est réalisé à une température de 100°C. Cette stratégie est utilisée pour réduire au maximum les pertes de charbon actif (1 %). L'incinération est utilisée pour éradiquer les contaminants. La régénération du charbon en poudre (PAC) est plus difficile que celle du charbon en grain (GAC).

Il est difficile de désorber une molécule d'adsorbat qui a été étroitement maintenue pendant la régénération. Les adsorbats sont oxydés pendant la combustion, ce qui produit des acides qui seront découverts dans l'eau de lavage et qui doivent être neutralisés.

Régénération électrochimique :

En présence d'un électrolyte, tel que NaCl, Na₂SO₄ ou NaHCO₃, les charbons actifs peuvent être régénérés électro chimiquement à la pression atmosphérique et à température ambiante. Deux électrodes de platine et deux compartiments indépendants constituent une disposition raisonnablement typique. Les mécanismes impliqués sont l'électro désorption des polluants (suivie de leur élimination dans la phase liquide) et/ou la dégradation des polluants directement dans la phase adsorbée. L'efficacité de la technique est déterminée par un certain nombre de facteurs, notamment l'emplacement du charbon actif (à la cathode ou à l'anode, le premier étant préféré), l'électrolyte (NaCl donne de meilleurs résultats mais produit également des composés organochlorés toxiques), sa concentration et la densité de courant. Pour les charbons saturés en phénol, des taux de régénération allant jusqu'à 80% ont été rapportés.

Régénération biologique :

Il utilise la vie microbienne qui a été placée à l'intérieur du charbon pour le purifier. Il faut savoir que les micro-organismes ne peuvent accomplir que les tâches pour lesquelles ils ont été génétiquement programmés et qu'ils ne peuvent détruire qu'un seul type de pollution dans la plupart des cas.

De plus, l'activité de ces organismes vivants est très dépendante des circonstances de fonctionnement (température, pH, présence d'oxygène dissous, de minéraux, etc.) et est limitée en présence de polluants peu biodégradables. Cette méthode de régénération n'a pas encore été testée à grande échelle.

Chapitre 4 :

Partie expérimentale

I. Introduction :

Ce travail est réalisé au laboratoire de recherche « SEA2M » de la faculté des sciences et de la technologie de l'université ABDELHAMID IBN BADIS à MOSTAGANEM. L'objectif principal de cette étude est l'étude de l'équilibre d'adsorption et la régénération d'un charbon actif commerciale saturé en bleu de méthylène par différentes méthodes.

I.1. Le matériau adsorbant :

Dans cette étude, le charbon actif granulé utilisé d'origine commerciale « OrganoSorb » de dimension [1,7-2,36 mm]. Les caractéristiques physico-chimiques générales de ce charbon sont regroupées dans le tableau 1.

Tableau 1 : caractéristiques physico-chimiques de charbon actif étudié.

Adsorbant	CAG Organosorb 10
Indice d'iode (mg/g)	998,6
Surface accessible au BM (m ² / g)	271,4
Densité apparente (g/mL)	0,483

L'indice d'iode est un paramètre très important dans la caractérisation de la porosité des charbons actifs. La valeur obtenue de l'indice d'iode montre que le CAG utilisé dispose une microporosité importante, donc on peut dire que leurs qualités poreuses sont de type micro et mésopore. La surface accessible est déterminée par la molécule du bleu de méthylène car cette molécule occupe une surface de 119 Å² (molécule assez grande) [36]. L'indice du bleu de méthylène donne une idée sur la surface disponible pour les adsorbants micro et mésoporeux. La valeur obtenue de la surface accessible montre que la molécule migre dans les pores du CAG, ceci indique une porosité hétérogène où une structure mixte mesoporeuse et macroporeuse existe. La densité apparente est une caractéristique importante du charbon actif pour le transport, le traitement et la régénération. Dans cette étude, a montré une densité apparente pour le CAG à égale à 0,483 g.mL⁻¹.

I.2. Etude de l'adsorption du bleu de méthylène sur CAG :

II.2.1. Préparation de la solution mère du bleu de méthylène :

La solution mère du bleu de méthylène de concentration 1000 mg/L a été préparé par la dissolution de 1 g de colorant dans un volume de 1000 ml de l'eau distillée. la solution a été transvasée dans un flacon teinté et stockée à abri de la lumière. Les concentrations filles ont été obtenues par la dilution.

I.2.2. courbe d'étalonnage du BM :

A partir d'une solution mère de bleu de méthylène de concentration 1g/L, nous avons préparé une solution fille de concentration 100 mg/l, et à partir cette dernière nous avons préparé une série de solutions de concentrations bien déterminées (1 ; 1,5 ; 2 ; 2,5 ; 3 ; 3,5 ;4 mg/L) ont été préparées par dilution afin d'établir la droite d'étalonnage.

I.2.1. Le spectrophotomètre :

Spectrométrie et spectrophotométrie sont des méthodes d'analyse grâce auxquelles nous parvenons à déterminer le taux d'absorbance d'une substance chimique, c'est-à-dire sa capacité d'absorption de la lumière. Pour procéder à un dosage par spectrophotométrie, nous utilisons un appareil spécial, le spectrophotomètre qui est capable d'évaluer le spectre d'absorbance d'une solution. Le principe de la spectrophotométrie est simple : l'appareil réalise une mesure de l'intensité de la lumière qu'il reçoit, une fois celle-ci passée à travers un récipient transparent (cuvette dont la matière doit être adaptée à la longueur d'onde), contenant la solution à étudier.

À partir de l'intensité de la lumière qui est émise (notée I_0) et d'après la mesure de l'intensité de la lumière transmise (I), l'appareil calcule l'absorbance (A). La formule algébrique de cette opération est :

$$A = \log \frac{I_0}{I}$$

Un spectrophotomètre est un appareil qui permet de mesurer l'absorbance d'une solution à une certaine longueur d'onde ou dans une région spécifique du spectre.

La détermination de la concentration des colorants est effectuée par dosage spectrophotométrique, en utilisant la loi de Beer-Lambert [37] :

$$A = \varepsilon \cdot C \cdot L$$

Avec :

- A : Absorbance.
- ε : Coefficient d'extinction spécifique du soluté (L/mg.cm ou L/mol.cm).
- C : La concentration du soluté (mg/L ou mol/L).
- L : épaisseur de la cellule optique (cm).

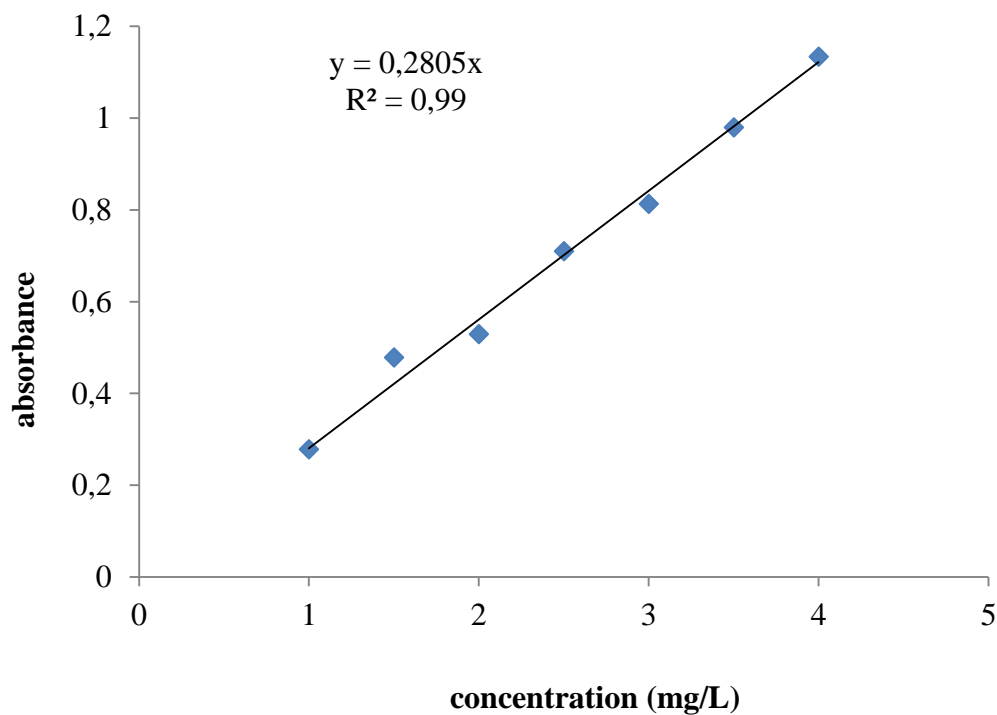


Figure 8: spectrophotomètre modèle UVmini-1240

Le spectrophotomètre UV-Visible utilisée pour cette étude est **UVmini-1240** au laboratoire de SEA2M de l'université de Mostaganem. Les absorbances des solutions de bleu de méthylène précédemment préparées sont mesurées à la longueur d'onde d'absorption de cette solution $\lambda = 665$ nm. Le tableau (2) regroupe les résultats de cette mesure qui permet de tracer la courbe d'étalonnage montrée dans la figure (9).

Tableau 2 : Résultats de l'analyse spectrophotométrique des solutions de bleu de méthylène.

Numéro de la solution	1	2	3	4	5	6	7
Volume solution mère (ml)	0,5	1,5	1	2,5	1,5	3,5	4
Concentration (mg/l)	1	1,5	2	2,5	3	3,5	4
Absorbance	0,278	0,478	0,529	0,710	0,813	0,995	1,134

**Figure 9**: La courbe d'étalonnage du bleu de Méthylène.

L'équation de la droite donnant l'absorbance en fonction de la concentration de Bleu de Méthylène est $A = 0,2805 \cdot C$, avec un coefficient de régression $R^2 = 0,99$, ce qui peut être

considéré comme un bon ajustement linéaire. Cette équation est utilisée pour calculer la concentration inconnue du bleu de méthylène.

II. L'isotherme d'adsorption :

L'isotherme permet aussi de donner des informations sur le mode d'adsorption (adsorption en monocouche ou en multicouches). Toutes ces informations pourront être extraites à partir des modèles d'équilibre décrivant le processus d'adsorption.

Dans cette étude, l'effet de la concentration initiale du bleu de méthylène sur la quantité adsorbée (mg.g^{-1}) par le CAG, a été étudié dans une gamme de concentrations initiales (300-1700 mg.L^{-1}) et masse de 0,2 g CAG avec temps de contacte 4 heures. Les données expérimentales de l'isotherme d'adsorption du bleu de méthylène sur le CAG sont mesurées à température ambiante sont regroupées dans le tableau (3) et représentées sur la Figure (10). L'adsorption du bleu de méthylène sur CAG (Organo sorb 10) montre que l'isotherme est de type L selon la classification de Giles, indiquant une affinité relativement élevée entre l'adsorbat et l'adsorbant.

Modalisation des isothermes d'adsorption :

Les paramètres obtenus à partir de la modélisation de l'isotherme fournit des informations importantes sur le mécanisme d'adsorption, les propriétés de surface et les affinités adsorbant-adsorbat. Les deux modèles à deux paramètres les plus couramment employés sont les modèles de Langmuir et Freundlich, mais aussi pour aller un peu plus loin dans la compréhension des mécanismes d'adsorption. Le meilleur modèle applicable parmi ceux que nous avons choisis sera évalué à partir de ce coefficient de corrélation R^2 ($0 < R^2 < 1$) et la valeur de la quantité maximum obtenue à partir des différents modèles et celle obtenue expérimentalement.

Les modèles linéaires de Langmuir et Freundlich sont représentés sur la Figure (11) et (12) et les résultats obtenus pour les différentes constantes, calculées à partir de modélisation linéaire des modèles utilisés, sont données dans le Tableau (3).

Pour calculer les valeurs de tableau (3) :

$$\frac{x}{m} = \frac{(C_0 - C_{eq}) \cdot V}{m \cdot 1000}$$

Tableau 3 : Isotherme d'Adsorption du bleu de Méthylène sur le charbon actif.

C ₀ (mg/L)	Abs	C _{eq} mg/L	x/m (mg/g)	C _{eq} /(x/m)	logC _{eq}	Log(x/m)
300	0,013	0,071	29,99	0,002	-2,64	1,48
400	0,029	0,159	39,98	0,004	-1,84	1,6
500	0,014	0,077	49,99	0,002	-2,57	1,7
600	0,063	0,346	59,97	0,006	-1,06	1,78
700	0,014	0,077	69,99	0,001	-2,57	1,85
800	0,102	0,56	79,94	0,007	-0,58	1,9
900	0,121	16,594	88,34	0,188	2,81	1,95
1000	0,215	29,484	97,05	0,304	3,38	1,99
1100	0,234	32,09	106,79	0,3	3,47	2,03
1200	0,473	64,866	113,51	0,571	4,17	2,06
1300	0,938	128,634	117,14	1,098	4,86	2,07
1400	0,654	179,375	122,06	1,47	5,19	2,09
1500	0,811	222,436	127,76	1,741	5,4	2,11
1600	0,588	322,545	127,75	2,525	5,78	2,11
1700	0,953	522,765	117,72	4,441	6,26	2,07

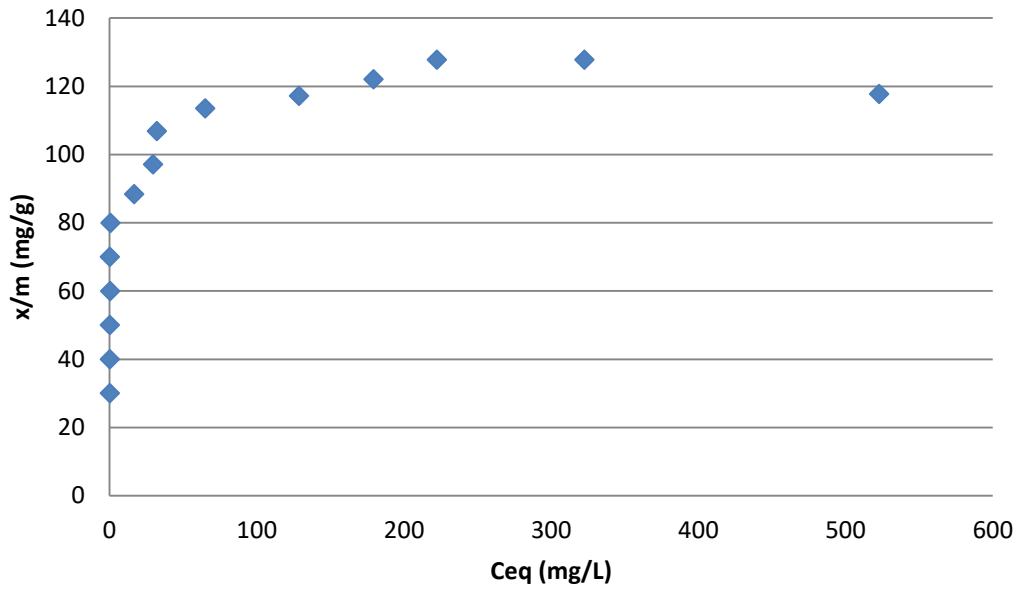


Figure 10: L'isotherme d'adsorption du BM sur le CAG.

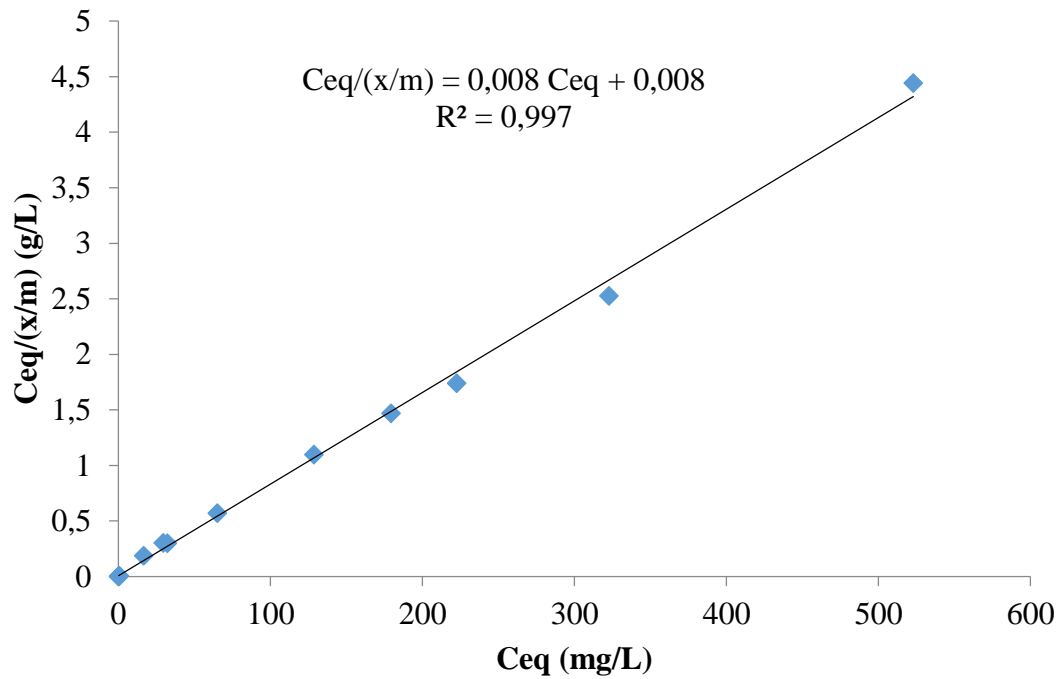


Figure 11: modélisation linéaire par le modèle de Langmuir de l'isotherme du bleu de méthylène sur CAG

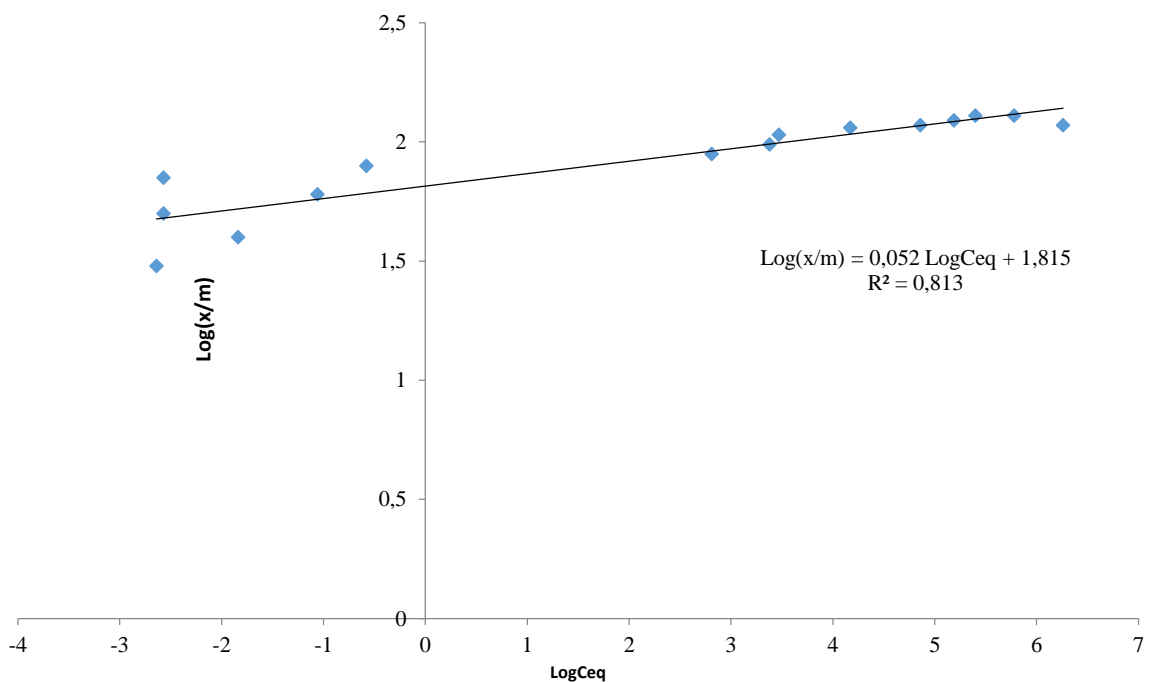


Figure 12: modélisation linéaire par le modèle de Freundlich de l'isotherme du bleu de méthylène sur CAG.

Tableau 4 : paramètres de Langmuir et Freundlich pour l'adsorption du bleu de méthylène sur le CAG.

Paramètre	Modèle de Langmuir			Modèle de Freundlich		
	b (mg/g)	K_L (l/mg)	R^2	1/n	K_F	R^2
CAG (organosorb10)	125	1,00	0,997	0,052	65,31	0,813

Le coefficient de corrélation pour la droite obtenue de R^2 supérieure à 0,98 pour le modèle de Langmuir mais pour le modèle de Freundlich le coefficient de corrélation est une inférieure à 0,81 donc l'adsorption du bleu de méthylène est mieux décrite par le modèle de Langmuir que le modèle de Freundlich. Selon le modèle de Langmuir, la capacité d'adsorption est reliée à la pente de la droite. La capacité maximale d'adsorption du bleu de méthylène sur le CAG (Organo sorb 10) est de 125 mg/g est très proche à la valeur expérimentale trouvée.

Le modèle de Langmuir montre que la surface du charbon actif granulé étudié est homogène sur le plan énergétique et une adsorption monomoléculaire de la molécule du Bleu de Méthylène.

III. Régénération du charbon actif :

La régénération de CA est un facteur très important et repose sur sa stabilité. Afin de mieux évaluer l'effet d'adsorption-désorption observé sur le charbon actif préparé deux techniques ont été réalisées.

Taux d'adsorption-désorption

Pour déterminer la quantité adsorbée de la saturation, une masse de 2 g de CAG a été mis en contact avec 500 ml de la solution du bleu de méthylène de concentration $C_{BM} = 1000 \text{ mg/L}$ qui a été choisie arbitrairement dans le palier de saturation de l'isotherme, le tout est agité pendant 6 h ensuite la suspension a été filtré en utilisant le papier filtre (Whatman). Le filtrate obtenu a été analysé et la capacité d'adsorption obtenue égale à 151,25 mg /g avec un taux d'élimination de 99,96 %. Le CAG qui reste dans le filtre a été séché à l'étuve à 64°C pendant 24 heures. Après le séchage le charbon actif doit être posé dans le dessiccateur pour protéger les substances contre l'humidité.

Régénération par agitation magnétique :

On appelle cycle un enchaînement d'étape adsorption-régénération. L'étape d'adsorption est au même principe.

Nous avons étudié l'effet de solvant (eau distillée) pour un cycle de régénération, une masse de 1 g de charbon actif qui contient 151,25 mg de BM est mis en contact avec 250 ml de l'eau distillée de pH = 6,34, la suspension est agitée avec une vitesse de 400 t/min pendant 2 heures à la température ambiante. La solution a été filtrée et analysée et taux de désorption est calculé par l'équation ci-dessous

$$\text{quantité désorbée} = \frac{C_{désor} \cdot V}{1000}$$

Avec $C_{désor}$: concentration désorbée après régénération du charbon actif (mg/L)

V : volume de la solution de régénération (mL)

1000 : facteur de conversion des volumes.

$$\text{taux de désorption} = \left(\frac{m_{\text{désorbée}}}{m_{\text{adsorbée}}} \right) \cdot 100 \text{ (\%)}$$

Avec $m_{\text{désorbée}}$: masse de colorant après régénération du charbon actif (mg/g)

$m_{\text{adsorbée}}$: quantité adsorbé de colorant avant régénération du charbon actif (mg/g).

Nous avons procédé plusieurs cycles de régénération jusqu'à huit (08) cycles, deux (02) heures pour chaque cycle au totale 16 heures du temps de contact. Les résultats expérimentaux sont représentés dans la Figure (13).

Tableau 5 : résultats de cycles de désorption du bleu de méthylène par agitation simple.

cycle	0	1	2	3	4	5	6	7	8
temps (heure)	2	2	4	6	8	10	12	14	16
abs	0	0,343	0,178	0,03	0,014	0,024	0,011	0,007	0,01
Taux de dilution	0	50	50	10	10	1	1	1	1
Ceq	0	61,25	31,785	1,071	0,5	0,086	0,039	0,025	0,0357
x/m (mg/g)	0	15,313	7,9464	0,268	0,125	0,021	0,010	0,00625	0,0089
masse désorbée	0	15,313	23,258	23,527	23,652	23,673	23,683	23,689	23,698
Rendement (%)	0	12,250	18,607	18,821	18,921	18,939	18,946	18,951	18,959

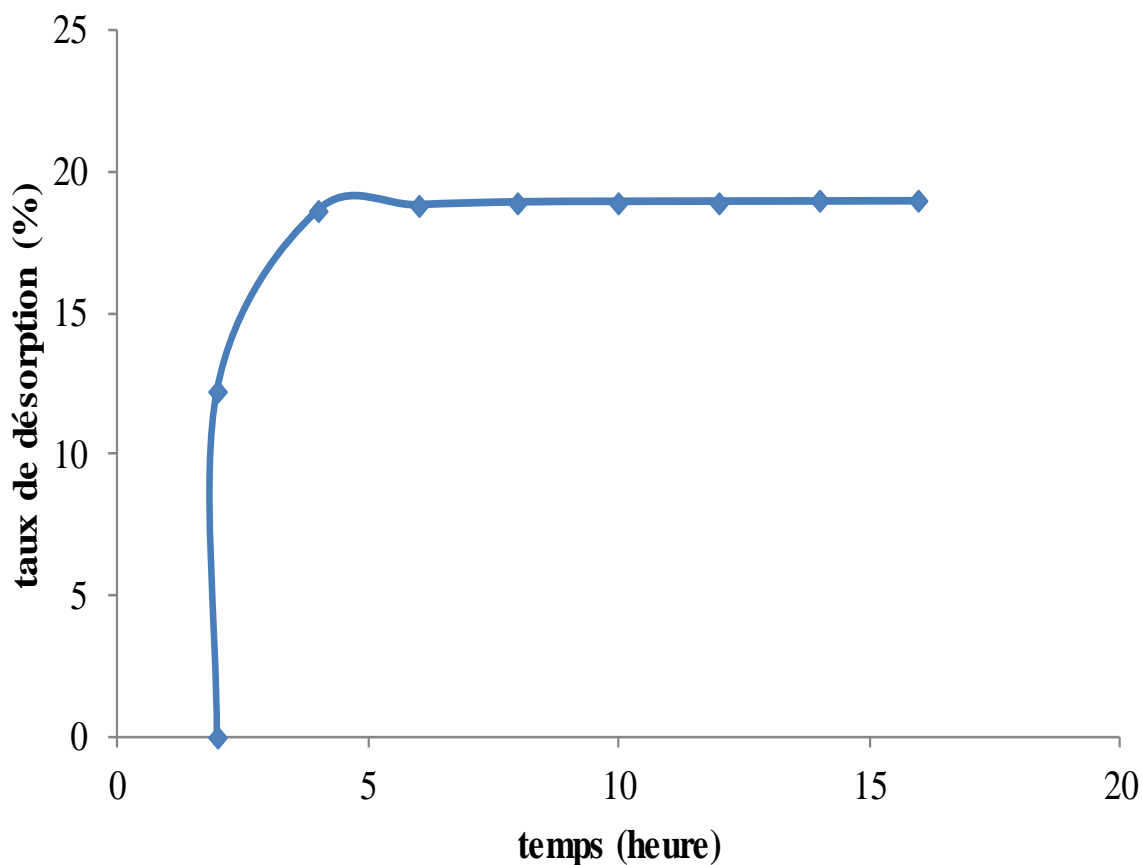


Figure 13: taux de désorption en fonction du temps pour la désorption du bleu de méthylène par agitation simple.

Sur le figure ci-dessus, nous avons le taux de désorption (%) sur l'axe vertical tandis que l'axe horizontal représente le temps (heure).

D'après la figure (13), le taux de désorption augmente brusquement après 2 heures d'agitation jusqu'à ce que le taux de désorption atteigne son maximum à 18 % après 5 heures puis reste constante, s'explique par le fait qu'il y a une affinité entre le colorant et le charbon rend difficilement de détacher cette molécule. Ces résultats sont en parfait accord avec ceux trouvés par le modèle de Freundlich ($1/n = 0,052$). *HONGYAN et All* ont montré que le taux de désorption du bleu de méthylène par HCl sous agitation simple après 3 cycle atteint 62,53 % [38].

Régénération par Soxhlet :

Un extracteur de Soxhlet (ou appareil de Soxhlet) est une pièce de verrerie utilisée en chimie analytique et en chimie organique qui permet de faire l'extraction par solvant en continu d'une espèce chimique contenue dans une poudre solide. Cet appareil porte le nom de son inventeur : Franz Von Soxhlet [39].

Pour extraire le bleu de méthylène, nous avons utilisé l'extracteur Soxhlet, une pièce de verrerie permettant d'effectuer une extraction solide-liquide avec une grande efficacité.

Nous avons placé 1g de CAG dont nous souhaitons extraire notre polluant une substance constitutive dans la cartouche, puis dans le réservoir de soxhlet. Nous remplissons le ballon avec 250 ml de l'eau bien distillée (solvant). A l'aide d'un chauffe-ballon porter le solvant à ébullition, Cette dernière traverse le réfrigérant pour être condensé.

Le condensat tombe alors dans le réservoir contenant la cartouche et solubilise la substance à extraire et le réservoir se remplit. Quand le liquide atteint le niveau de débordement, un siphon aspire la solution de la cartouche et la décharge de nouveau dans le ballon à distiller.

Le nombre de cycles de régénération pour le l'extracteur de Soxhlet est déroulée d'une manière similaire à celle indiquée dans la régénération par agitation simple.

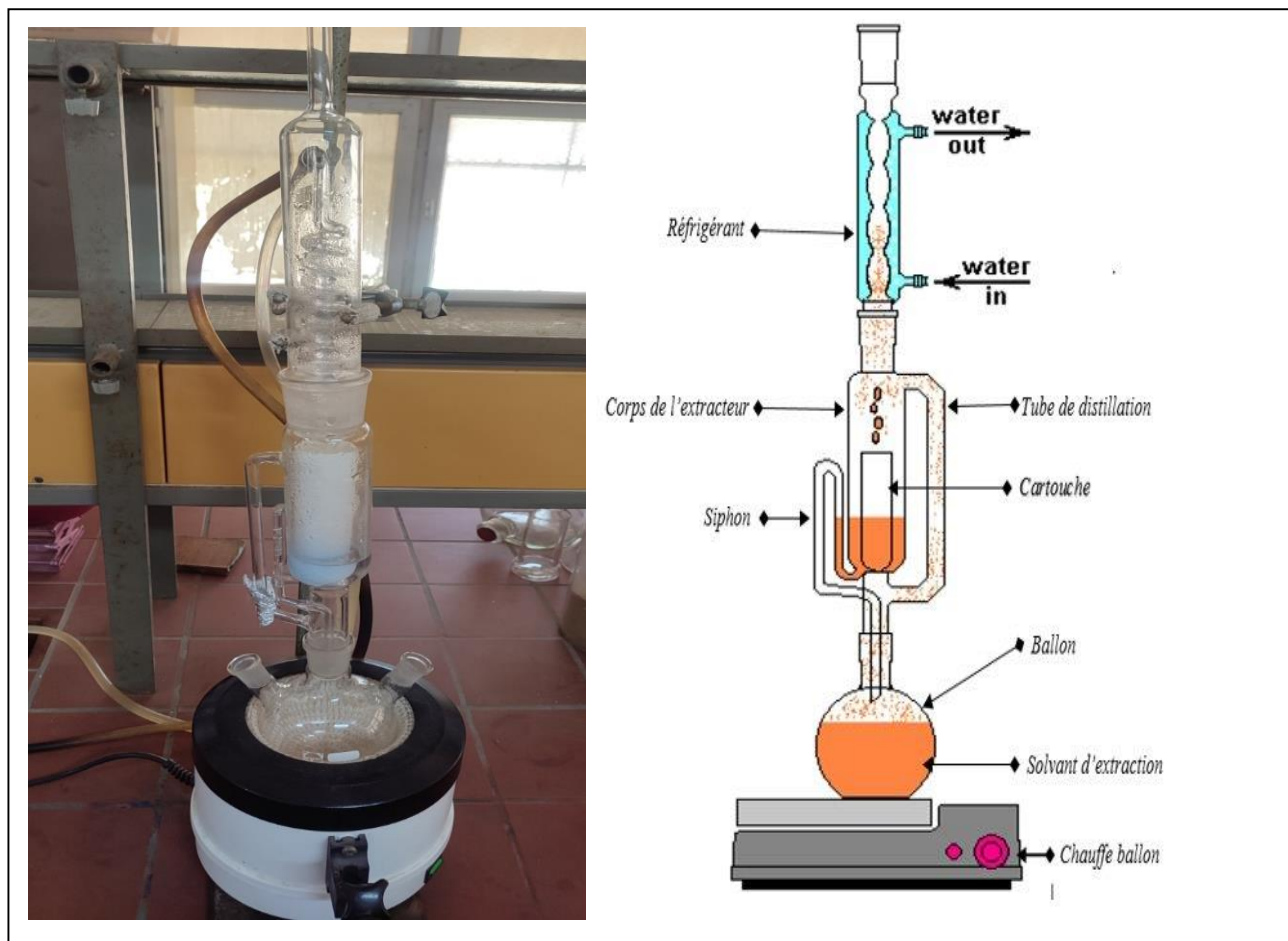


Figure 14: Un extracteur de Soxhlet.

Tableau (6) : Résultats de cycles de désorption du bleu de méthylène par extracteur de soxhlet.

Cycle		1	2	3	4	5	6	7	8
temps (heure)	2	2	4	6	8	10	12	14	16
abs	0	0,189	0,479	0,497	0,169	0,13	0,092	0,035	0,041
taux de dilution	0	50	50	10	10	1	1	1	1
Ceq	0	33,75	85,536	17,75	6,036	0,464	0,329	0,125	0,1464
x/m (mg/g)	0	8,438	21,384	4,4375	1,509	0,116	0,082	0,03125	0,0366
masse désorbée	0	8,438	29,821	34,259	35,768	35,884	35,966	35,997	36,034
Rendement	0	6,750	23,857	27,407	28,614	28,707	28,773	28,798	28,827

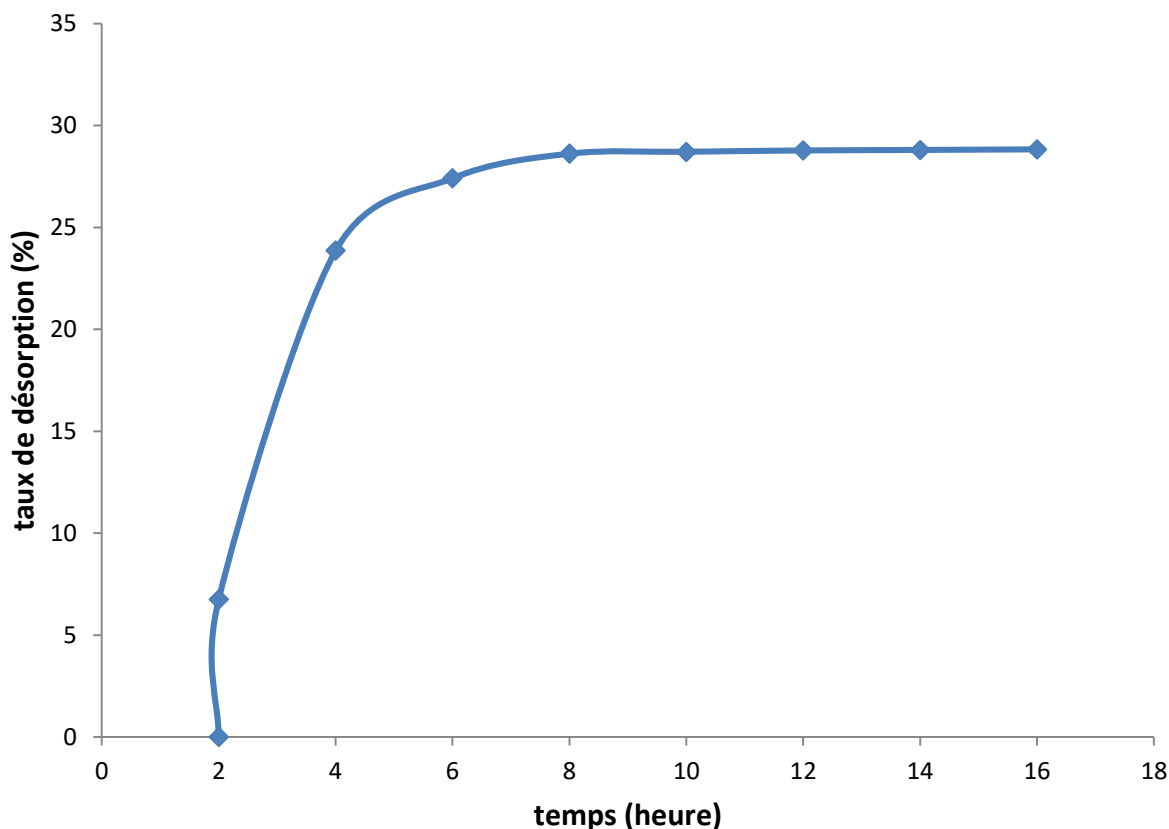


Figure 15: taux de désorption en fonction du temps pour la désorption du bleu de méthylène par extracteur de Soxhlet.

Tout comme le graphique précédent, le graphique ci-dessus représente l'évolution du taux de désorption (pourcentage) par Soxhlet sur l'axe vertical et le temps (heure) sur l'axe horizontal.

Nous pouvons voir que cette courbe commence à partir de 2h environ, s'intensifie progressivement, lors de 5 h jusqu'à ce que le taux de désorption atteigne 28%.

En gardant toujours le même rythme, le taux atteint après 8 heures environ 29 %. Cette méthode n'a pas donnée des résultats concluants.

Certaines études ont montré que le taux de désorption de la molécule du toluène fixé par les fibres de charbon actif par l'extracteur de Soxhlet atteint une valeur de 70 % [40].

Conclusion générale

Conclusion générale

Cette étude entre dans le cadre de l'étude de l'équilibre d'adsorption du bleu de méthylène par du charbon actif granulé et de chercher aussi le meilleur procédé de régénération. Nous avons étudié deux différentes méthodes de régénération en utilisant le même solvant qui 'est l'eau distillée : régénération par agitation simple et par l'extracteur de soxhlet.

Plusieurs paramètres ont été étudiés, à savoir : la masse de l'adsorbant et le temps de régénération.

A l'issu du présent travail, nous pouvons conclure :

- Les isothermes d'adsorption sur le charbon actif, sont bien décrites par le modèle de Langmuir avec une constante de corrélation R^2 de 0.997.
- La capacité maximale d'adsorption du bleu de méthylène égale à 125 mg /g avec un taux d'élimination de 99,96 %.
- la régénération par agitation magnétique pendant 16 heures a permis d'aboutir un rendement 18,959%.
- la désorption du bleu de méthylène par l'extracteur de soxhlet pendant 16 heures a permis d'aboutir un rendement 28,827%.
- le processus d'adsorption/désorption dépend également du diamètre de la molécule à désorber et de la nature physique et chimique de la surface de l'adsorbant.
- Une température de chauffage plus élevée a entraîné un taux de désorption plus élevé.
- La nature du solvant et le temps de régénération ont eu un effet direct sur le rendement de la régénération.

La méthode de régénération par soxhlet est plus efficace à celle de l'agitation.

Nous proposons d'approfondir ce travail en étudiant :

- La caractérisation de CAG par d'autres techniques (DRX, FTIR...)
- utiliser d'autres solvants (acides, bases surfactants, ...)
- utiliser d'autres méthodes de régénération (thermique sous haute température, ultrason, photodégradation, ...).

Références bibliographiques :

Références bibliographiques :

- [1] Robinson T, G. McMullan, R. Marchant et P. Nigam (2001). Remediation of dyes in textile effluent: 388 Adsorption du bleu de méthylène à critical review on current treatment technologies with a proposed alternative. *Bioresour. Technol.*, 77, 247-255.
- [2] M.J. Ahmed, S.K. Dhedan. Equilibrium isotherms and Kinetics modeling of methylene blue adsorption on agricultural Wastes-based activated carbons. *Flui. Phas. Equil.* 317 (2012) 9-14.
- [3] Juang R.S, F.C. Wu et R.L. Tseng (1997). The ability of activated clay for the adsorption of dyes from aqueous solutions. *Environ. Technol.*, 18, 525 - 531.
- [4] H.Sadki, K.Zait, M.Saidi, Adsorption d'un colorant cationique d'un milieu aqueux sur une argile locale activée, Rapport bibliographique, Université Abdelmalek Essaâdi - Maroc, 2014.
- [5] AzaShehada Mahmoud Protection de l'environnement humain (Lumière et aspirations) Numéro spécial du bulletin de recherche Ministère du Tourisme et des Antiquités Royaume hachémite de Jordanie Mars 1980.
- [6] Mohamed Hassan discute des techniques de planification pour la revue de contrôle de la pollution de l'environnement *National studies and socialism* 4, Numéro de l'Université Mustansiriyah de Bagdad en janvier 2001.
- [7] Environnement - La pollution de l'air responsable de plus d'un demi-million de décès prématurés.
- [8] environmental pollution centers, Retrieved 21/6/2021.
- [9] World Health Organization, 2011.
- [10] Al-Khashab, Fiq Hussein, Dr. Haidar, Ahmed Saeed, Mohammed Majid Al Sayed Wali, Ressources en eau en Irak Bagdad University Press, 1983.
- [11] Long Mohammed Nabil environnement et pollution localement et mondialement la discussion a eu lieu Liban 1999.

Références bibliographiques :

[12] Département de la protection et de l'amélioration de l'environnement (Water Pulse of Life) Bagdad, janvier 2000.

[13] I M, CAPON., V, COURILLEU., C, VALETTE. Chimie des couleurs et des odeurs, Nantes, Culture, et technique, Paris: Cultures et Techniques, 1999, Formation, ISBN-10 : 2950244424.

[14] B BENTALEB, S. Etude expérimentale d'adsorption d'un colorant cationique «Rhodamine B Modélisation par application d'un plan » sur argile naturelle. Mémoire de Master : Université Saida, 2018.

[15] (ORANUSI, N A: OGUGBUE, C J.J. Appl. Sci. Environ. Mgt. 2005 Vol. 9 1) 39-43). Application au traitement des eaux. Thèse de Doctorat : Université de Lille, 1996.

[16] O, Kebiche. Biodégradabilité, adsorbabilité et échange ionique de quelques colorants cationiques présents dans les effluents liquides de la teinturerie de l'unité convertex d'Ain. Djasser. Mémoire de Magistère : Université de Constantine, 1996

[17] : P. Barriot, V. Danel. « Intoxications aiguës en réanimation ». Groupe liaisons S.A. 2ème édition, 1999.

[18] : M.S.U. Rahman, JI Han. « Biosorption of methylene blue from aqueous solution by typhaangustataphytomass ». Int. J. Environ. Sci. Technol, 2012

[19] H. Hiram Lowry, G. Augustus Hulett. Studies in the adsorption by charcoal Relation of oxygen to charcoal. The American Chemical Society, 42 (1920) 1408–1419.

[20] Belaid Ouahiba, Utilisation d'un charbon actif préparé à partir des noyaux de dattes locales dans l'épuration des eaux usées urbaines. Influence de la variété de dattes, thèse de doctorat, Université Kasdi Merbah – Ouargla, 2017

[21] Aksas Hamouche, Etude cinétique et thermodynamique de l'adsorption des métaux lourds par l'utilisation des adsorbants naturels, thèse de doctorat, Université M'hamed Bougaraboumerdes, 2013.

Références bibliographiques :

[22] [Dubinin, 1987 ; Narasimhan et coll., 2003] Généralité sur l'adsorption : http://fr.wikipedia.org/w/index.php?title=Charbon_actif&oldid=75679853.

[23] N. Sedira. Etude de l'adsorption des métaux lourds sur un charbon actif issu de noyaux de dattes. Mémoire de magister (2013), p 30.

[24] M, AMOURACHE-BENAZZOUEZ. Etude de l'élimination du bleu de méthylène et de composés organiques toxiques à partir de solutions aqueuses par un biosorbant non conventionnel, *Claviceps purpurea* hébergé par *Elytrigia repens* L: Implications sur la dépollution de l'eau et cas d'études. Thèse Doctorat : Université de Guelma, 2019.

[25] S, BENCHABANE., S, BENNACER. Etude Cinétique et Optimisation par la Méthode des Surfaces de Réponses de L'adsorption du Phénol sur le Charbon Actif. Mémoire de Master : Université de Béjaïa, 2016.

[26] GAO, Z., LI, X., WU, H., DELIGEER, W., Directacide activation of kaolinite and its effects on the adsorption of methylene blue. *Applied Clay Science*, 2016. vol126,98-106 .

[27] Benamrui F. Elimination des colorants cationiques par des charbons actifs synthétisés à partir des résidus de l'agriculture. Mémoire de magister, Université Ferhat Abbas Sétif, 2014.

[28] S. Brunauer, L. S. Deming, W. S. Deming, E. Teller "on a theory of the van der Waals adsorption of gases" *Journal of the American Chemical Society*, vol 62, page 1723-1732 (1940).

[29] Manole, C. Procédé AD-OX d'élimination de polluants organiques non biodégradables: par adsorption puis oxydation catalytique. Thèse de doctorat, Doctoral dissertation Toulouse INPT, 2007.

[30] Medekhel, A. Adsorption du bleu de méthylène par charbon actif. Mémoire de master, Université Echahid Hamma Lakhdar -El Oued, 2018.

Références bibliographiques :

- [31] N, PETIT. Couplage des procédés d'adsorption sur charbon actif et de photocatalyse TiO₂ / UV pour l'élimination de composés organiques volatils. Thèse Doctorat : Université de Rennes1,2007.
- [32] R. Malik, D.S. Ramteke, S.R. Wate. Adsorption of malachite green on groundnut shell waste based powdered activated carbon. *Waste Management*, 27 (2007) 1129-1138.
- [33] -P.L. Walker, P.A.Thrower, *Chemistry and Physics of Carbon*, Marcel Dekker, New York 16 (1981)1–146.
- [34] M. SHEINTUCH et Y. I. MATATOV-MEYTAL, « Comparison of catalytic processes with other regeneration methods of activated carbon », *Catalysis Today* 53, 73-80 (1999).
- [35] zanella et coll en 2014
- [36] Goyal, M., Singh, S. and Bansal, R.C. *Carbon Sci.* 5, 170. (2004)..
- [37] L, NAIDJA. Elimination du colorant orange en solution aqueuse, par voie photochimique et par adsorption. Mémoire de Magistère: Université de Constantine, 2010.
- [38] hongyan Li, a Lianxin Liu, JianguoCui,aJialiCui,a Fang Wangb and Feng Zhang, royal society of chemistry, 2020
- [39] « Franz von Soxhlet ». In: *Die Deutsche Zuckerindustrie* 51^e année, 1926, pp. 501-502. Theodor Henkel: « Franz von Soxhlet zum Gedächtnis ». In: *Süddeutsche Molkerei-Zeitung*, 46^e année, 1926, pp. 493-494 (avec illustration et liste d'ouvrages)
- [40] Marina Cerasa , Ettore Guerriero and Silvia Mosca, ,23 October 2021