

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي  
REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA  
RECHERCHE SCIENTIFIQUE  
UNIVERSITE SAAD DAHLEB BLIDA  
جامعة سعد دحلب البليدة



FACULTE DES SCIENCES DE TECHNOLOGIE

DEPARTEMENT DE CHIMIE INDUSTRIELLE

**MEMOIRE DE FIN D'ETUDES EN VUE DE L'OBTENTION DU  
DIPLOME DE MASTER**

**OPTION : Technologie des Matériaux**

**ÉTUDE DE L'ÉLIMINATION DES ACIDES  
HUMIQUES SUR L'HYDROXYDE  
DOUBLE LAMELLAIRE (Mg-Al-HDL)**

Promotrice :

M<sup>me</sup> Z. CHEMAT

Co-promoteur :

Mr M. LAZHAR

Présenté par :

BOUDA Abderrahmane

**Promotion 2013**

# *Dédicace*

*Je dédie ce modeste travail*

*A ma très chère mère*

*Tu es l'exemple de dévouement qui n'a pas cessé de m'encourager et de prier pour moi. Puisse dieu, le tout puissant, te préserver et t'accorder santé, longue vie et bonheur.*

*A mon père*

*Pour ses encouragements durent toutes mes années d'études.*

*A mes frères et sœurs*

*A mes amis*

*A toute ma famille*

# *Remercîment*

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de l'adsorption atomique (113) département de chimie industrielle (Saad Dahleb - BLIDA).

En préambule à ce mémoire, je tiens tout d'abord à remercier Dieu le tout puissant et miséricordieux, qui ma donné la force et la patience d'accomplir ce modeste travail.

En second lieu, je tiens à remercier mes encadreurs Mr : M.LAZHAR s'est toujours montré à l'écoute et très disponible tout au long de la réalisation de ce mémoire, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'il a bien voulu me consacrer et sans qui ce mémoire n'aurait jamais vu le jour., et Mme : Z.CHEMAT son précieux conseil et son aide durant toute la période du travail.

Mes vifs remerciements vont également aux membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ma recherche en acceptant d'examiner mon travail et de l'enrichir par leurs propositions.

Mes sincères remerciement s'adressent à toute ma famille et mes amis qui par leurs prières et leurs encouragements, j'ai pu surmonter tous les obstacles.

Enfin, je tiens à remercier tous ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à la réalisation de ce travail.



Merci

## Résumé

Le présent travail concerne les tests d'élimination des acides humiques en solution aqueuse par adsorption sur Mg-Al-HDL.

Une étude cinétique et la détermination des isothermes d'adsorption en réacteur discontinu sont ainsi réalisées pour évaluer l'effet de la masse de Mg-Al-HDL, pH, temps de contact sur la capacité d'adsorption des acides humiques.

Les résultats expérimentaux montrent qu'un temps de contact de 10 heures est suffisant pour atteindre un pseudo équilibre adsorbant / adsorbat et un rendement d'élimination d'environ 54% par Mg-Al-HDL indépendamment de pH.

De plus, les résultats montrent également que les capacités d'adsorption maximales peuvent atteindre que lorsque la masse de Mg-Al-HDL égale à 0,04 g pour des pH 3 et 7 et 0,08 g pour pH égale à 10.

Globalement, les résultats montrent que les données des cinétiques expérimentales sont bien décrites par le modèle de pseudo ordre deux, et le modèle de diffusion intra-particulaire ne permet pas une bonne approche de la totalité des résultats expérimentaux.

Les résultats montrent également que l'équilibre adsorptionnel ne peut pas être représenté par le modèle de Langmuir et Freundlich.

**Mots clés :** acide humique, adsorption, hydroxyde double lamellaire.

## **Abstract**

The main objective of this study concerns the removal tests of humic acid onto Mg/Al layered double hydroxide (Mg-Al-HDL).

Batch kinetics and isotherm studies were carried out to evaluate the effect of contact times and mass of sorbent on adsorption capacity of Mg-Al-HDL. Experimental results show that a contact time of 10 hours is sufficient to achieve a state of pseudo-equilibrium sorbent-sorbate and 54 % of maximum humic acid removal onto Mg-Al-HDL independent of pH. The maximum adsorption capacities may reach, mass (Mg-Al-HDL) equal to 0,04 g, at pH 3 and 7 and equal to 0.08 g at pH 10. In addition, the overall results show that experimental data kinetic are well described with the models of pseudo-second order while the intra-particle diffusion model comes only at the beginning of the curve. The experimental data show also that the adsorption equilibrium was not well represented by Freundlich and Langmuir isotherms models.

**Keywords:** humic acid, adsorption, layered double hydroxide.

## المخلص

العمل الحالي يتعلق بانجاز تجارب على الأحماض الدبالية في محلول مائي بواسطة الامتزاز على مادة هيدروكسيد مزدوج الطبقات.

دراسة الحركية وتحديد خط تحاور الامتزاز في مفاعل متقطع أجريت لتقييم تأثير كتلة مادة هيدروكسيد مزدوج الطبقات المستعملة، درجة الحموضة ووقت الاتصال على قدرة امتصاص الأحماض الدبالية.

تظهر النتائج التجريبية أن 10 ساعات من وقت الاتصال كافية للتوصل إلى توازن الممتزات / الممتز بغض النظر عن درجة الحموضة والقضاء على ما يقارب 54% من الأحماض الدبالية .

وبالإضافة إلى ذلك، فقد بينت النتائج أيضا أن الحد الأقصى لسعة الامتزاز يمكن الحصول عليه عند كتلة 0.04 غرام من مادة هيدروكسيد مزدوج الطبقات عند درجة الحموضة 3 و 7 و 0.08 غرام عند درجة الحموضة 10.

وعموما، فقد بينت النتائج أن البيانات الحركية التجريبية موصوفة بشكل جيد من قبل تصميم الزائفة من الدرجة الثانية، و تصميم للنشر الداخلي للجسيمات لا يمكن أن يكون نهجا جيدا لجميع النتائج التجريبية. وأظهرت النتائج أيضا أن توازن الامتزاز لا يمكن أن يكون ممثلا من قبل تصميم انجميور وفرونديلتش.

**الكلمات المفتاحية** الحمض الدبالي، الامتزاز، الهيدروكسيد مزدوج الطبقات

# Sommaire

<b>INTRODUCTION GENERALE</b> .....	1
<b>CHAPITRE I : Synthèse bibliographique</b>	
I.1. Les hydroxydes doubles lamellaires (HDL) .....	3
I.1.1. Généralité .....	3
I.1.2. Structure et composition chimique .....	3
I.1.2.1. Feuille de nature $M^{II}$ et $M^{III}$ .....	4
I.1.2.2. Espèce inter-feuille.....	4
I.1.4. Application d'hydroxyde double lamellaire.....	6
I.1.4.1. En catalyse.....	6
I.1.4.2. Echangeurs anionique et adsorbants.....	7
I.1.4.3. Electrolytes, conducteurs protoniques .....	7
I.1.4.4. Applications médicales.....	7
I.1.3. Méthodes de synthèse des HDL .....	8
I.1.3.1. Co-précipitation directe.....	8
I.1.3.2. Echange Anionique.....	8
I.1.3.3. Reconstruction.....	9
I.2. Les acides humique .....	10
Introduction .....	10
I.2.1. Caractéristiques chimiques et structure des acides humiques .....	10
I.2.2. Effets indésirables de la présence des acides humique dans les eaux de surface.....	12
I.2.3. Techniques d'élimination .....	13

I.2.3.1. Coagulation / Flocculation .....	13
I.2.3.2. Décantation / Filtration .....	13
I.2.3.3. Adsorption .....	14
I.3. Utilisation des hydroxydes doubles lamellaires (HDL) en adsorption .....	14
I.4. Modélisation de l'adsorption .....	15
I.4.1. Modélisation des équilibres d'adsorption .....	15
I.4.1.1. Modèle de Langmuir.....	15
I.4.1.2. Modèle de Freundlich .....	16
I.4.2. Modélisation des cinétiques .....	17
I.4.2.1. Modèle de pseudo second ordre .....	17
I.4.2.2. Modèle de diffusion intra-particulaire .....	17

## **CHAPITRE II : Partie expérimentale (Matériels et Méthodes)**

II.1. Préparation de l'hydroxyde double lamellaire (Mg-Al-HDL) .....	18
II.2. Caractérisation physico-chimique de Mg-Al-HDL .....	19
II.2.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) .....	19
II.2.2. Point de charge nulle (PZC) .....	20
II.2.3. Mesure de la masse volumique.....	20
II.2.4. Taux d'humidité .....	21
II.2.5. Analyse granulométrique .....	21
II.3. Application à l'adsorption des acides humiques en système discontinu .....	22
II.3.1. Choix de l'adsorbat étudié .....	22
II.3.2. Préparation des solutions de l'acide humique .....	23
II.3.3. Les courbe d'étalonnage .....	23
II.4. Effet de masse de Mg-Al-HDL sur le rendement d'élimination des acides humiques ...	25

II.5. Etude cinétique .....	26
II.5.1. Effet du temps de contact .....	26
II.5.2. Effet de pH .....	26
II.6. Etablissement des isothermes .....	27

### **CHAPITRE III : Résultats et Discussions**

III.1. Caractérisation physico-chimique de Mg-Al-HDL .....	28
III.1.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (IRTF).....	28
III.1.2. Point de charge nulle (PZC) .....	29
III.1.3. Mesure de la masse volumique .....	30
III.1.4. Taux d'humidité .....	30
III.1.5. Analyse granulométrique .....	31
III.2. Effet de masse de Mg-Al-HDL sur le rendement d'élimination de l'acide humique ....	32
III.3. Etude cinétique .....	33
III.3.1. Effet du temps de contact .....	33
III.3.2. Effet de pH .....	34
III.3.3. Modélisation de cinétique .....	35
III.3.3.1. Modèle de pseudo second ordre .....	35
III.3.3.2. Modèle de diffusion intra-particulaire .....	37
III.4. Etude des équilibres d'adsorption .....	39
III.4.1. Etablissement des isothermes .....	39
III.4.2. Modélisation des isothermes .....	40

<b>CONCLUSION GENERALE</b> .....	42
----------------------------------	----

Références bibliographique

## Liste des figures

Figure I.1: Représentation schématique de la structure d'une phase HDL .....	4
Figure I.2 : Acide humique en poudre.....	10
Figure I.3 : Modèle de la structure de l'acide humique selon STEVENSON.....	12
Figure II.1 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=10 et $\lambda=254\text{nm}$ .....	24
Figure II.2 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=7 et $\lambda=254\text{nm}$ .....	24
Figure II.3 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=3 et $\lambda=254\text{nm}$ .....	25
Figure III.1 : Spectre infrarouge transformée de fourrier (IRTF) de Mg-Al-HDL préparé ....	29
Figure III. 2 : Détermination du point de charges nulles du Mg-Al-HDL .....	30
Figure III.3: Distribution de taille des particules du Mg-Al-HDL .....	31
Figure III.4 : Variation de rendement d'élimination de l'acide humique en fonction de la masse à différents pH .....	32
Figure III.5 : Cinétique d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction du temps à différents pH, $C_0 = 10 \text{ mg/L}$ , $T = 22 \text{ }^\circ\text{C}$ , $m = 0,04 \text{ g}$ .....	33
Figure III.6 : Quantité adsorbée de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction de pH de la solution .....	34
Figure III.7 : Modélisation de la cinétique d'adsorption de l'acide humique par Mg-Al-HDL à différents pH par l'emploi du modèle pseudo second ordre .....	36
Figure III.8 : Modélisation des cinétiques d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l'emploi du modèle de diffusion intra-particulaire .....	37
Figure III.9 : Isothermes expérimentales d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL à différents pH, $C_0 = 10 \text{ mg/g}$ , $T = 22 \text{ }^\circ\text{C}$ .....	39
Figure III.10 : Modélisation des isothermes d'adsorption de AH sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l'emploi du modèle de Langmuir .....	40
Figure III.11 : Modélisation des isothermes d'adsorption de AH sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l'emploi du modèle de Freundlich .....	41

## Références bibliographique

- [1] ACHOUR, S., GUERGAZI, S., HARRAT, N. 'L'état des ressources en eau au Maghreb (Chapitre 14 : Pollution organique des eaux de barrage de l'est algérien et effet de la chloration)', 241-256, Ed. GEB-Environnement-UNESCO, Maroc. (2009).
- [2] DE ROY A. 'Lamellaire double hydroxydes', Mol. Cryst. Liq. Cryst., 311, 173-193, 1998.
- [3] MIYATA S. "The synthesis of hydrotalcite-like compounds and their structures and physico-chemical properties the systems MgAlNO<sub>3</sub>, MgAlCl, MgAlClO<sub>4</sub>, NiAlCl, ZnAlCl" Clays Clay Miner., 23, 369-375. ., 1975
- [4] ZENG H.C., PANG X.Y., App. Cata. B, 13, 113.
- [5] HOURI B., LEGROURI A., BARROUG A., FORANO C., BESSE J.P. "Use of the ion exchange properties of layered double hydroxides for water purification". Czech. Chem. Commun., 63, 732-740, 1998.
- [6] F.CANAVI, F. TRIFIRO and A. VACCARI. Catal. Today, 11 - 173. 1991.
- [7] ALLMANN, R. Acta Cryst, B24, 972 (1968)  
ALLMANN, R., LOHSE, H.H., N. Jhb. Miner. Mh., 6, 161 (1966)
- [8] INGRAM, L., TAYLOR, HFW. Miner. Mag., 36, 465 .1967
- [9] ALLMANN, R., JESPER. P., N. Jb. Miner. Mh., 12, 544 , 1969
- [10] MIYATA. S. Clay and Clay Mineral., 31, n°4, 305, 1983.
- [11] LEROUX. F, ADACHI-PAGANO. M, INTISSAR. M, CHAUVIERE. S, FORANO. C, BESSE. J. P., J. Mater Chem, 11, 105, 2001.
- [12] DRITS. V. A, SOKOLOVA. T. N, SOKOLOVA. G. V, CHERKASHIN. V. I Clay Clay Miner, 35, 401, 1987.
- [13] A. VACCARI. Catal. Today, (1998), 41 - 53.
- [14] C.S. SWAMY, S. KANNAN and S. VELU, "in Main Group Elements and Their Compounds", Narosa Publishing House, (1996), New Delhi.
- [15] SATO. T, WAKABAYASHI. T. and SHIMADA. M . Ing.chem.Prod.Res.Dev, 25, 89(1986).
- [16] REICHLER. W. chem.tech, 58, 1986.
- [17] MOUSTY. C, THERIAS. S, FORANO. C. and BESSE J.P, J.Electroanal.chem., 374, 63 (1994).
- [18] DE ROY. A, BESSE J.P, and BONDOT. P, Mat;Res.Bull, 20, 1091 (1985).

- [19] SYZUKI. E, OKAMOTO. M. and ONO. Y. *chem.Lett*, 1487 (1989).
- [20] DE ROY. A and BESSE. J.P. *solid state ionics*, 35, 35 (1989).
- [21] MIYATA. S. *Kagaku Gijutsushi Mol*, 15, 32 (1977).
- [22] PLAYLE. A. C, GUNNING. S. R and LENWLLYN. A. F. *Pharma. Acta. Hel.*, 49, 298 (1974).
- [23] PISSON. J, TAVIOT-GUEHO. C, Israëli. Y, LEROUX. F, MUNSCH. P, ITIR. J.P, BRIOIS. V, Morel-Desrosiers. N and Besse. J. P., *J. Phys. Chem. B.*, 107, 9243-9248 (2003).
- [24] V. RIVES and M. A. Ulibarri, *Coord. Chem. Rev.*, (1999), 181 – 61
- [25] A. DE RO. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, (1993), 311 -173.
- [26] B. I. INTORRE and A. E. Martell, *J. Am. Chem. Soc.*, (1960), 82 - 358.
- [27] A. MENDIBOUR and R. SCHOLLHORN. *Rev. Chim. Miner*, (1986), 23 - 819.
- [28] ANABUKI H. and S. MIYATA. *Eur. Patent*, 611, 75 (1982).
- [29] ALLISON, [1973]; VISSER, [1987].
- [30] DOMMERGUES et MANGENOT. [1970]; Flaig, [1970].
- [31] Dj. GHERNAOUATE, ‘Elimination des acides humiques par floculation en lit fluidisé’. *Mémoire de fin d’étude*. Blida, 1993.
- [32] J. ROOK, ‘formulation of haloform during chlorination of natural waters’. *J. Water. Treat, Exam*, 1974, 23, 234-243.
- [33] L. BOUTEMAK et F. BOUKHATEM, ‘Réduction des acides humiques par les procédés physico-chimique’. *Mémoire de fin d’études*, Blida, 1993.
- [34] JIANYONG LIU, CHAO DUAN, JIZHI ZHOU, XIANGLING LI, GUANGREN QIAN, ZHI PING XU, “Adsorption of bacteria onto layered double hydroxide particles to form biogranule-like aggregates”. *Applied Clay Science* 75-76 (2013) 39-45.
- [35] YANWEI GUO, ZHILIANG ZHU, YANLING QIU, JIANFU ZHAO, “Enhanced adsorption of acid brown 14 dye on calcined Mg/Fe layered double hydroxide with memory effect”. *Chemical Engineering Journal* 219 (2013) 69-77
- [36] Z.M. Ni, S.J. Xia, L.G. WANG, F.F. XING, G.X. PAN, “Treatment of methyl orange by calcined layered double hydroxides in aqueous solution: adsorption property and kinetic studies”. *J. Colloid Interface Sci.* 316 (2007) 284–291.

- [37] A.R. AUXILIO, P.C. ANDREWS, P.C. JUNK, L. SPICCIA, D. NEUMANN, W. RAVERTY, N. VANDERHOEK, “Adsorption and intercalation of Acid Blue 9 on Mg–Al layered double hydroxides of variable metal composition”. *Polyhedron* 26 (2007) 3479– 3490.
- [38] M.M. BOUHENT, Z. DERRICHE, R. DENOYEL, V. PREVOT, C. FORANO, “Thermodynamical and structural insights of orange II adsorption by MgRAIN<sub>3</sub> layered double hydroxides”. *J. Solid State Chem.* 184 (2011) 1016–1024.
- [39] WEBER, W.J, MORRIS, J.C, “Kinetics of adsorption of carbon from solutions”. *J, Sanit, Eng, Div, Amer, Soc, Civ, Eng, 89, (1963), 31-63.*
- [40] S. CARLINO. *Solid State Ionics*, 98 (1997) 73
- [41] RUSSEL, W.B., SAVILLE, D.A., and SCHOWALTER, W.R. *Colloidal Dispersions*. Cambridge University Press. (1989).
- [42] SEGHAIRI, 1998
- [43] JACQUELINE LAROSE, “Le traitement des eaux humiques, procédé physico-chimique et biologiques avec pré-ozonation”. Thèse de Doctorat 3eme cycle, MONTPELLIER, 1982
- [44] J. M. FERNANDEZ, M.A. ULIBARRI, F. M. LABAJOS, V. RIVES, J. MATER. *Chem.*, 2507, (1998)
- [45] YOSHIMI SEIDA and YOSHIO NAKANO ‘Removal of humic substances by layered double hydroxide containing’ Elsevier Science Ltd. All rights reserved Printed in Great Britain *Wat. Res.* Vol. 34, No. 5, pp. 1487±1494, 2000
- [46] GUOCHEN ZHANG, TAO WU, YUJIANG LI, XINGHAI HUANG, YAN WANG, GUOPENG WANG ‘Sorption of humic acid to organo layered double hydroxides in aqueous solution’ *Chemical Engineering Journal* 191 (2012) 306– 313

## Liste des tableaux

Tableau I.1 : utilisation des HDL en adsorption .....	14
Tableau II.1 : Caractéristiques des acides humiques .....	22
Tableau III.1 : Paramètres du modèle pseudo ordre deux pour différents pH .....	36
Tableau III.2 : Coefficient de diffusion intra-particulaire de l'acide humique en fonction de pH .....	38
Tableau III.3 : Paramètres des modèles Langmuir et Freundlich .....	41

## Liste des symboles et abréviations

HDL : Hydroxyde double lamellaire

Mg-Al-HDL : Hydroxyde double lamellaire à base de Magnésium et Aluminium.

A.H : Acide humique.

IRFT : Infra Rouge à Transformé de Fourier.

$pH_{PZC}$  : Point de charge nulle.

H(%) : Taux d'humidité.

$\rho$  : Masse volumique.

R(%) : Rendement d'élimination.

T : Température.

$Q_e$  : Capacité d'adsorption à l'équilibre

$C_0$  : Concentration initiale de la solution

$C_e$  : Concentration en soluté dans la phase liquide à l'équilibre

$Q_m$  : Capacité maximale d'adsorption

$K_L$  : Constante d'équilibre pour le couple : soluté / adsorbant.

$K_f$  : Constante de Freundlich

$K_d$  : Constante de diffusion

---

## Conclusion générale

---

Dans ce travail de mémoire, nous avons préparé un support adsorbant sous forme de poudre (Mg-Al-HDL) par la méthode co-précipitation. Le support adsorbant obtenu a été caractérisé par la spectroscopie infra rouge à transformée de fourrier (FTIR), les mesures du taux d'humidité, de la masse volumique, la détermination du PZC et l'analyse granulométrique. Afin de montrer l'efficacité de cet adsorbant dans l'adsorption en réacteur discontinu, nous avons utilisé un composé organique (acides humiques) couramment détectés dans les eaux de surfaces.

A travers les résultats expérimentaux obtenus, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- ✓ Le support adsorbant (Mg-Al-HDL) se caractérise par un taux d'humidité et une masse volumique respectivement de 12 % et  $1,66 \text{ g/cm}^3$ . Nous notons que le point de zéro charge  $\text{pH}_{\text{PZC}}$  est égale à 11,8 et que la granulométrie est très fine, elle a un diamètre moyen des particules d'environ de 85  $\mu\text{m}$ .
- ✓ Le temps de contact de 10 heures est suffisant pour atteindre l'équilibre adsorbant / adsorbat.
- ✓ Le rendement d'élimination augmente jusqu'à 51.94 % lorsque la masse de Mg-Al-HDL atteint 0,04 g pour un pH de 7 et 3, et 57 % quand la masse atteint 0,08 g pour un pH de 10.
- ✓ La quantité adsorbée de l'acide humique sur Mg-Al-HDL augmente dans le sens contraire du pH, en milieu acide cette quantité est importante et d'environ 13,23 mg/g, elle diminue par la suite jusqu'à 6,68 mg/g en milieu basique.
- ✓ Les données des cinétiques expérimentales sont bien décrites par le modèle de pseudo second ordre, et le modèle de diffusion intra-particulaire ne permet pas une bonne approche de la totalité des résultats expérimentaux.

---

## Conclusion générale

---

- ✓ Les modèles de Freundlich et Langmuir ne s'adaptent pas pour décrire l'adsorption de l'acide humique sur (Mg-Al-HDL) car les valeurs de coefficient de corrélation  $R^2$  sont faibles.

## **I.1. Hydroxydes doubles lamellaires (HDL)**

### **I.1.1. Généralité**

Les HDL sont des hydroxydes lamellaires mixtes de métaux di et trivalents. La structure peut être décrite par l'empilement de feuillets de composition  $M(OH)_2$ . La présence de métal trivalent conduit à des feuillets chargés positivement. L'électro-neutralité est assurée par des espèces anioniques solvatées par des molécules d'eau présentes dans l'espace inter-feuillet [2]. Il existe comme minéraux les hydrotalcites [Mg-Al], les hydrocalumites [Ca-Al], les « rouilles vertes »  $[Fe^{2+}, Fe^{3+}]$ . Cependant ces minéraux ne sont jamais abondants dans la nature, les matériaux argileux sont principalement des argiles cationiques.

Les travaux de MIYATA dans les années 70 [3], notamment sur la synthèse par « chimie-douce » des HDL, a permis leur développement. Étant donné les multiples combinaisons possibles entre les métaux constitutifs des feuillets et les espèces inter-lamellaires ainsi que les nombreuses variables de préparation, il est possible de faire varier les propriétés chimiques et physiques des HDL d'où l'intérêt croissant pour ces matériaux en particulier dans le domaine de la catalyse [4].

D'autre part, avec des capacités d'échange les plus fortes parmi les échangeurs ioniques 3-4 meq/g et une surface hydroxylée très réactive favorisant la chimisorption, les HDL offrent également des possibilités de piégeage de polluants chimiques. L'efficacité des HDL dans le traitement d'eaux polluées par des anions nitrates, phosphates ou chromates a déjà été démontrée [5].

### **I.1.2. Structure et composition chimique**

La structure des composés de type hydrotalcite a été mise en évidence par les travaux d'ALLMANN [6], INGRAM et TAYLOR [7], suite à des études de diffraction des rayons X sur des nanocristaux dans un premier temps, et plus tard sur l'hydrotalcite elle-même [8].

La formule générale des HDL est  $[M^{II}_{1-y} L^{III}_y(OH)_2]^{y+} X^{n-}{}_{y/n}(H_2O)_z$  où chaque feuillet présente une structure de type brucite constitué d'octaèdres  $M(OH)_6$  et  $L(OH)_6$  à arêtes communes. La substitution partielle de  $M^{II}$  par  $L^{III}$  entraîne un excès de charge positive dans les feuillets compensé par la présence d'espèces anioniques dans l'espace inter-feuillet.

En théorie, la quantité d'anions  $X^{n-}$  intercalés est directement dépendante du nombre  $n$  et de la concentration  $y$  de cations trivalents  $L$  (Figure I.1).

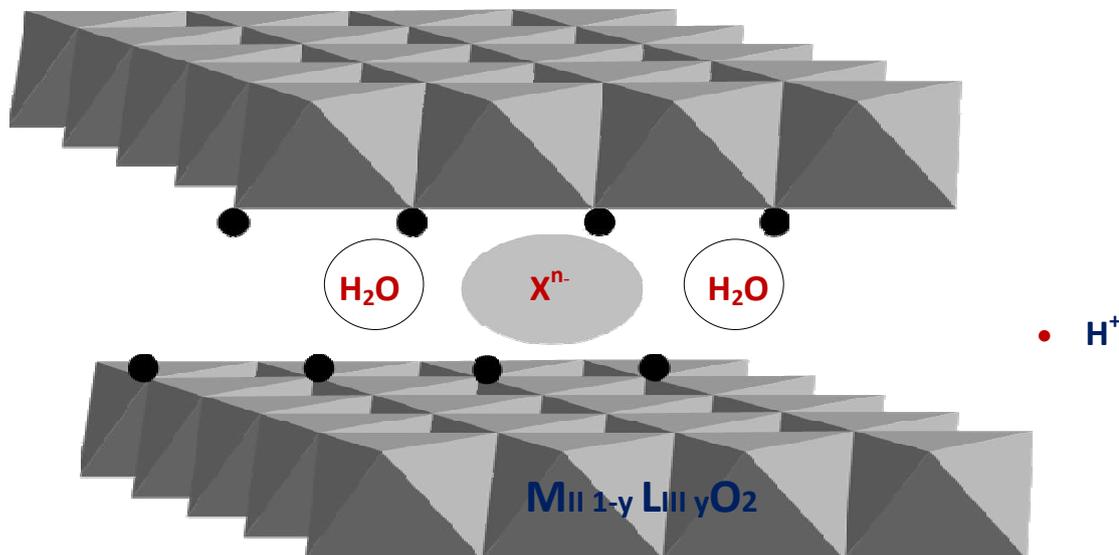


Figure I.1: Représentation schématique de la structure d'une phase HDL.

### I.1.2.1. Feuillet de nature $M^{II}$ et $L^{III}$

Les cations des métaux divalents et trivalents des HDL appartiennent principalement à la troisième et quatrième période de la classification périodique des éléments:

- cations divalent: Mg, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn...
- cations trivalent: Al, Mn, Fe, Co, Ni, Cr, Ga...

### I.1.2.2. Espèce inter-feuillet

Dans les HDL, les domaines inter-lamellaires contiennent des anions et des molécules d'eau. Et la nature des liaisons qui se produisent entre ces ions ou molécules et la structure hôte impose l'arrangement des espèces inter-lamellaires dans l'inter-feuillet, et facilitent les processus de réorientation et de diffusion. En revanche, une forte affinité des anions diminue la mobilité, comme dans le cas de phases « carbonates » pour lesquels l'anion

est difficilement échangeable [9]. L'échange anionique demeure pourtant une caractéristique essentielle des composés HDL.

Une grande variété d'espèces anioniques peut être intercalée par conséquent entre les couches, soit lors de la formation de la structure lamellaire, soit par échange anionique ultérieur. Ces anions peuvent être:

- ✓ Anions inorganiques simples: fluorures, chlorures,...
- ✓ Oxo anions: carbonates, nitrates, sulfates, bromates,...
- ✓ Oxo et polyoxo-metallates: chromates, dichromates,  $(\text{Mo}_7\text{O}^{24})^{6-}$ ,  $(\text{V}_{10}\text{O}_{28})^{6-}$
- ✓ Complexe anionique: ferro et ferricyanure,  $(\text{PdCl}_4)^{2-}$
- ✓ Anions organiques: carboxylates, phosphonates, alkylsulfates,...

Par rapport à la dimension, charge et disposition des espèces inter-lamellaire, l'espacement fondamental des couches est fortement modifié. La grande variété d'espèces inorganiques et organiques rencontrées dans le domaine inter-lamellaire introduit un caractère hydrophobe ou bien des contraintes géométriques particulières (inclinaison de molécules, inter-digitation [10] qui induiront alors la dimension de l'espace inter-lamellaire.

Le composée  $[\text{Mg-Al-SO}_4, \text{CO}_3]$  avec  $d=16,5 \text{ \AA}$  [11] présente une structure constituée de feuillets type brucite avec une structure selon l'axe  $c$ , caractérisée par une alternance ordonnée du contenu inter-foliaire  $\text{CO}_3^{2-}$  et  $\text{SO}_4^{2-}$  dont les distances lamellaires correspondent respectivement à  $7,56 \text{ \AA}$  et  $8,85 \text{ \AA}$ . D'autres systèmes présentent également ces effets de stade. La présence d'une inter- stratification semble due aux différentes orientations des molécules dans l'espace inter-lamellaire, nous citerons ainsi le cas des téréphtalates et des carbonates 35 et ceux plus récents des succinates [12].

### **I.1.3. Application des hydroxydes doubles lamellaires**

Les hydroxydes doubles lamellaires, ou bien leur produit de décomposition thermique trouvent leur place dans beaucoup d'applications industrielles.

#### **I.1.3.1. En catalyse**

Les composés utilisés en catalyse sont issues des HDL, ils possèdent les propriétés suivantes [13]:

- ✓ Basicité de la phase décomposée, cette propriété étant utilisée en catalyse.
- ✓ Non stœchiométrie des phases spinelles obtenues après un traitement thermique de la phase HDL de départ, cette non stœchiométrie est due à un excès d'anions par rapport à la valeur attendue dans la phase spinelle  $M^{II}L^{III}_2O_4$ .
- ✓ Formation d'oxydes de métaux mixtes homogènes (solution solide d'oxydes de métaux) avec une taille cristalline très petite, conférant une surface spécifique élevée ils sont également stables en traitement thermique.
- ✓ Effet mémoire que permet la reconstruction de la structure lamellaire quand le produit calciné est mis en contact avec des aqueux contenant les anions à intercaler.

Les HDL, trouvent place dans beaucoup d'applications industrielle et probablement d'autre encore dans le futur, dans des domaines encore inexplorés.

- ✓ Catalyse basique (anionique ou cationique) : elle intervient dans les réactions de polymérisation de l'oxyde de propylène ou de  $\beta$ -propiolactone, elle est également utile pour la condensation d'aldols.
- ✓ Catalyse redox : elle intervient pour le reformage des hydrocarbures, le recours aux HDL intervient aussi pour l'hydrogénation du nitrobenzène la réaction de méthanation de CO (à partir de HDL à base de nickel), la synthèse de méthanol en basse et haute pression, aussi que pour la réaction de FISHER – TROPSCH et les réactions d'oxydations.
- ✓ Supports de catalyseurs: les HDL sont utilisés comme précurseurs pour la polymérisation des oléfines avec des catalyseurs de type ZIEGLER– NATTA.

### **I.1.3.2. Echangeurs anionique et adsorbants**

De par leurs propriétés de surface et d'échange anionique, les HDL sont largement étudiées pour des applications dans le domaine de l'environnement, le traitement des eaux polluées. L'immobilisation de molécules organiques, inorganiques [14] voire même Radioactives [15], est envisageable par adsorption ou bien incorporation.

### **I.1.3.3. Electrolytes, conducteurs protoniques**

Ces matériaux s'avèrent électro-chimiquement actifs, notamment dans le domaine des électrodes modifiées [16]. Ils ont également montré des performances en conduction ionique [17 ; 18]. Etudiée surtout pour la phase  $Zn_2Cr(OH)_6Cl_2 \cdot 2H_2O$ , la conductivité ionique est attribuée d'une part aux échanges protoniques entre les feuillets hydroxylés et les molécules d'eau inter-lamellaires [19], d'autre part, à la mobilité des anions dans cet espace.

### **I.1.3.4. Applications médicales**

Des hydrotalcites [Mg-Al-CO<sub>3</sub>] sont utilisées pour maîtriser l'action de l'acide chlorhydrique et celle de la pepsine dans l'estomac. C'est un traitement efficace de l'ulcère Gastrique [20 ; 21]. Des phases à base de Mg, Al et Fe se sont révélées efficaces pour la prévention et le traitement de maladies associées à des déficiences en fer [22].

### **I.1.4. Méthodes de synthèse des HDL**

Elles sont principalement au nombre de trois [23]. Les deux plus utilisées sont la Co-précipitation directe et l'échange anionique. Celle dite de reconstruction est moins courante.

#### **I.1.4.1. Co-précipitation directe**

C'est la méthode la plus utilisée pour préparer un HDL, elle consiste à provoquer la précipitation simultanée des cations métalliques divalents et trivalents par ajout d'une espèce basique à une solution de sels correspondant pris en proportion adéquates. Les meilleurs résultats sont généralement obtenus en ajoutant simultanément dans un réacteur contenant initialement de l'eau, la solution acide des sels métalliques et la solution basique de façon à maintenir le pH à une valeur constante de 10 : une addition lente de réactifs est généralement favorable à une bonne organisation de la phase préparée [24]. La précipitation se fait sous atmosphère exempte de CO<sub>2</sub>, afin d'éviter la formation préférentielle d'une phase contenant des ions carbonate intercalés, cependant, certains HDL ne peuvent être obtenus par co-précipitation : cela est dû notamment à la complexation des anions par les métaux présents dans la solution [25], la préparation se fait alors par d'autres voies, telles que celle de l'échange anionique.

#### **I.1.4.2. Echange Anionique**

On utilise ici une des principales propriétés de HDL, la réaction d'échange est une réaction topo-tactique, c'est à dire que la structure iono-covalente des feuilles est conservée alors que les liaisons plus faibles anions, feuillettes sont cassées. Pour réaliser l'échange, il faut mettre un HDL précurseur contenant généralement des ions carbonates, des chlorures ou des nitrates en suspension dans une solution avec un pH souhaité, en maintenant une agitation et il faut également opérer à l'abri du CO<sub>2</sub> de l'air. Les anions carbonates s'intercalent préférentiellement. Il à noter que les échanges se font plus facilement à partir des phases contenant des anions carbonates ou chlorures intercalés, car l'affinité des ions NO<sub>3</sub><sup>-</sup> pour la matrice est moindre que celles des ions Cl<sup>-</sup> et CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> [26], cette affinité diminue en effet selon l'ordre suivant : CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> >> Cl<sup>-</sup> >> NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.

### **I.1.4.3. Reconstruction**

Les hydroxydes doubles lamellaires ont la propriété de pouvoir « se régénérer» après calcination et formation d'oxyde mixte, si l'anion est détruit dans le domaine de température de calcination, il faut être remplacé par un autre anion, on parle alors de façon abusive de "l'effet mémoire" des HDL, remis dans une solution contenant l'anion à intercaler, sous atmosphère exempte de CO<sub>2</sub> se recombinent pour former une nouvelle phase HDL, tout le problème consiste à trouver les bonnes conditions de calcination.

Pour la phase MgAl-CO<sub>3</sub>, CARLINO et AL en 2003 [27] préconise une calcination lente de 1°C/min jusqu'à 500°C afin d'éviter un départ trop rapide des molécules d'eau et des anions carbonate qui conduirait après la reconstruction à une phase faiblement cristalline

## **I.2. Les acides humiques**

### **Introduction**

En général, les acides humiques sont considérés comme composante la plus précieuse de l'humus [28]. Ils sont peu mobiles, mais sont capables de se lier plus ou moins fortement selon leur type avec d'autres corps présents dans le sol et en particulier avec l'argile. Dans ce cas, on parle d'acides humiques gris ; le complexe formé avec l'argile ou complexe argilo-humique est très stable. Il existe également des acides humiques bruns qui constituent des composés relativement peu stables (Figure I.2).

Les acides humiques sont des polymères à haut poids moléculaire, chargés négativement, de couleur noire à brun foncé, résultant d'un processus de condensation oxydative des composés phénoliques [29] et liés à des acides aminés, des peptides et des polysaccharides. Ils sont riches en carbone mais moins riches en oxygène [30].



Figure I.2 : Acide humique en poudre

### **I.2.1. Caractéristiques chimiques et structure des acides humiques**

Conférant des teintes jaunâtres ou brunâtres à l'eau et contribuant à sa turbidité, les composés humiques se situent près de la limite inférieure du domaine colloïdale ; en effet leur taille est estimée à 100 Å°.

Les composés humiques notamment, les acides humiques et fulviques, contiennent des groupes fonctionnels carboxyliques, hydroxyliques et en plus faibles proportions des groupes phénoliques qui, une fois au contact des molécules d'eau et en fonction de pH, deviennent plus au moins dissociés en formant des polyélectrolytes de charge négative. Ces composés sont donc des substances colloïdales hydrophiles.

D'autre part, le caractère hydrophobe peut s'attribuer à ces structures moléculaires complexes.

Cette dualité hydrophile-hydrophobe s'explique, par la grande diversité des conditions naturelles de l'humification (site, acidité, ...etc.). [31]

En outre, la partie hydrophobe est imputée à la fraction de masse moléculaire la plus élevée et au humines, et la partie hydrophile est attribuée par ordre croissant de priorité aux acides humiques et fulviques.

Les masses moléculaires des substances humiques sont en général, inférieures à 10.000 g/mole, bien qu'une faible partie (10 % de la matière humique), se présente sous forme colloïdale aurait une masse moléculaire supérieure à 100.000 g/mole.

Leurs compositions élémentaires sont :

C = 40 – 60 %

O = 30 – 50 %

H = 6 – 4 %

N = 0,5 – 2 %



### **I.2.3. Techniques d'élimination**

La matière organique contenue dans les eaux naturelles constitue jusqu'à l'heure actuelle un gros problème pour bon nombre de stations de potabilisation.

Cette matière organique représentée principalement par les acides humiques peut être plus au moins bien éliminée par coagulation-floculation, filtration ou adsorption sur différents matériaux poreux.

#### **I.2.3.1. Coagulation / Floculation**

Aux pH caractérisant les eaux naturelles, les acides humiques sont généralement porteurs de charges négatives, ce qui permet de les considérer comme des matières colloïdales classiques susceptibles d'être traitées par coagulation-floculation.

Divers expériences ont été effectuées, en vue d'essayer d'améliorer l'efficacité de la méthode.

Ainsi GHERNAOUT [31], a montré que pour la coagulation-floculation sur électrolyseur d'une eau synthétique d'acide humique à  $15 \text{ mg l}^{-1}$ , la meilleure réduction d'acide humique (27,7%) est obtenue pour un pH 4, par contre, pour un couplage d'acide humique et Bentonite, l'augmentation de la réduction va jusqu'à 83% à pH 5. L'efficacité de ce procédé dépend de plusieurs paramètres à savoir le pH, la concentration et le type coagulant.

#### **I.2.3.2. Décantation / Filtration**

Par définition, la décantation est un procédé ayant pour but de permettre le dépôt des particules en suspension dans l'eau, soit que celles-ci existent dans l'eau ou résultent de l'action d'un réactif chimique ajouté (coagulation, floculation).

Par contre, la filtration est un procédé permettant la séparation de la phase continue de la phase dispersée en retenant les particules sur lit fixe. [33]

### I.2.3.3. Adsorption

L'adsorption est un phénomène physico-chimique se traduisant en particulier, par une modification de la concentration à l'interface de deux phases non miscibles.

Plusieurs paramètres influent sur le transfert de matière organique d'une solution vers la surface d'un adsorbant, parmi lesquels la nature de l'adsorbat qui joue un rôle très important dans l'adsorption.

Il existe plusieurs types d'adsorbants. On peut citer : les gels de silice, l'alumine et bauxite activée, la bentonite ainsi que le charbon actif qui est le plus utilisé.

L'utilisation du charbon actif dans les stations de potabilisation des eaux en vue de retenir de nombreuses micros molécules organiques et minérales, est de plus en plus fréquente.

Cependant l'élimination des composés à haut poids moléculaires (tels que les acides humiques), exige un charbon macroporeux avec de nombreuses fonctions de surface.

Dans notre étude, on s'est proposé à un traitement d'adsorption sur Mg-Al-HDL préparé au niveau de notre laboratoire.

### I.3. Utilisation des hydroxydes doubles lamellaires (HDL) en adsorption

Nous donnons dans ce qui suit un aperçu bibliographique des différents travaux effectués sur l'application des Mg-Al-HDL, essentiellement dans le domaine de traitement des eaux (tableau I. 1).

Tableau I.1 : utilisation des HDL en adsorption

Type de HDL	Polluant	T (°C)	pH	Quantité éliminée	Réf.
NiFeCO <sub>3</sub> -LDH Rapport molaire de 3 (co-précipitation)	bactéries	25–30 °C	7–8	45–55 mg/g	[34]
Mg / Fe calciné	colorant brun acide 14	Température ambiante	4	41,7 mg/g	[35]
Zn/AL-LDH calciné	orange de méthyle	25	6	55,6.10 <sup>-2</sup> mmol/g	[36]
Mg/Al-LDH	Acide bleu 9	Température ambiante	9,5	6,09.10 <sup>-2</sup> mmol/g	[37]
Mg/Al-LDH	Orange II	25	7	0,361.10 <sup>-2</sup> mmol/g	[38]

## **I.4. Modélisation de l'adsorption**

### **I.4.1. Modélisation des équilibres d'adsorption**

La capacité d'adsorption à l'équilibre est définie par l'équation suivante :

$$Q_e = \frac{V(C_0 - C_e)}{m} \quad (\text{Eq I.1})$$

Où :

$Q_e$  : représente la capacité d'adsorption à l'équilibre ( $\text{mg.g}^{-1}$ ).

$C_e$  : concentration en soluté dans la phase liquide à l'équilibre ( $\text{mg.L}^{-1}$ ).

$C_0$  : concentration initiale de la solution ( $\text{mg.L}^{-1}$ ).

$m$  : masse d'adsorbant (g).

$V$  : volume de la solution (ml).

La modélisation des équilibres d'adsorption consiste, non seulement, à décrire les résultats expérimentaux à l'aide d'équations mathématiques théoriques ou semi empiriques, mais vise aussi à dégager les paramètres permettant de comparer l'efficacité de différents matériaux. Parmi tous les modèles rapportés dans la littérature, nous citons les équations de Freundlich et Langmuir.

#### **I.4.1.1. Modèle de Langmuir**

Tout comme le modèle de Freundlich, il s'agit d'un modèle prédictif quantitatif. Il est basé sur l'équilibre thermodynamique qui est atteint lorsque les vitesses d'adsorption et de désorption sont équivalentes pour la fixation d'une couche monomoléculaire du soluté sur la surface de l'adsorbant.

Ce modèle repose sur certaines hypothèses qui sont les suivantes :

- ✓ Adsorption d'une seule molécule de soluté par site localisé,
- ✓ Adsorption de soluté en couche monomoléculaire,
- ✓ Energies d'adsorption équivalentes pour tous les sites,
- ✓ Absence d'interaction à la surface entre les molécules adsorbées.

A l'équilibre, le modèle se traduit par l'équation suivante :

$$Q_e = \frac{Q_m \cdot K_L C_e}{1 + K_L C_e} \quad (\text{Eq I.2})$$

Où :

$Q_e$  : Quantité adsorbée par unité de masse d'adsorbant.

$Q_m$  (mg/g) : représente la capacité maximale d'adsorption.

$C_e$  : La concentration à l'équilibre de la phase liquide.

$K_L$  : Constante d'équilibre pour le couple : soluté / adsorbant.

#### **I.4.1.2. Modèle de Freundlich**

Ce modèle initialement empirique peut se démontrer en faisant intervenir différentes énergies des sites d'adsorption à la surface du solide. Ces sites ainsi que leur densité obéissent à une distribution exponentielle en fonction de la chaleur d'adsorption. Les hypothèses du modèle sont les suivantes :

- ✓ Adsorption de nature physique en sites localisés,
- ✓ Interactions possibles entre les molécules adsorbées,
- ✓ Surface hétérogène.

La description mathématique de cette isotherme est décrite selon l'équation suivante:

$$Q_e = K_f C_e^{1/n} \quad (\text{Eq I.3})$$

Le coefficient  $K_f$  donne une information sur la capacité d'adsorption tandis que  $1/n$  est relié à l'hétérogénéité de la surface. Il est généralement admis que des faibles valeurs de  $1/n$  ( $0,1 < 1/n < 0,5$ ) sont caractéristiques d'une bonne adsorption, alors que des valeurs plus élevées révèlent une adsorption modérée ( $0,5 < 1/n < 1$ ) ou faible ( $1/n > 1$ ).

$n$  : exposante de Freundlich.

**I.4.2. Modélisation des cinétiques****I.4.2.1. Modèle de pseudo second ordre**

Développé par Y.S. Ho et G. MCKAY en 1998 pour traduire l'existence d'un équilibre entre espèce en solution et espèce adsorbée, le modèle pseudo-ordre 2 suit l'équation suivante :

$$Q_t = \frac{Q_e^2 K_2 t}{1 + (Q_e K_2 t)} \quad (\text{Eq I.4})$$

La forme linéaire :

$$\frac{t}{Q_t} = \frac{1}{Q_e} t + \frac{1}{k_2 Q_e^2} \quad (\text{Eq I.5})$$

$Q_e$  (mg /g) : représente la quantité de polluant adsorbée à l'équilibre.

$Q_t$  (mg /g) : représente la quantité de polluant adsorbée à l'instant t.

$K_2$  (L/mg.temps) : constante de vitesse.

**I.4.2.2. Modèle de diffusion intra-particulaire**

Lorsque l'adsorption n'est pas limitée par la réaction entre soluté et site actif mais par la diffusion du soluté à l'intérieur du matériau, WEBER et AL. [39] ont montré que la quantité adsorbée du soluté varie en fonction de la racine carrée de selon la relation suivante :

$$Q_t = K_d .t^{1/2} \quad (\text{Eq I.6})$$

Où :

$k_d$  est la constante de diffusion. Elle dépend du coefficient de diffusion de l'espèce considérée, Ainsi que de la largeur des pores empruntés à l'intérieur du matériau adsorbant.

### II.1. Préparation de l'hydroxyde double lamellaire (Mg-Al-HDL)

L'efficacité des adsorbants est liée aux conditions de leurs préparations, dont la température, la vitesse d'addition des réactifs, la concentration des solutions, la nature des anions intercalés, le pH des solutions et le rapport molaire  $M^{+2}/M^{+3}$ .

La technique de préparation des hydroxydes doubles lamellaires la plus utilisée est la méthode de Co-précipitation. Cette méthode consiste à précipiter simultanément au moins deux éléments au sein d'une solution généralement aqueuse. Le premier élément doit être bivalent ( $M^{+2}$ ) et le second un élément trivalent ( $M^{+3}$ ), il faut d'abord choisir le rapport molaire (X) entre les deux métaux.

Notre solide Mg-Al-HDL a été préparé par la méthode de Co-précipitation à pH =10 constant [40], qui consiste à mélanger deux solutions.

- **Une solution (A) :** contient un mélange de :
  - sels de nitrates d'un métal bivalent :  $M^{+2}(\text{NO}_3).6\text{H}_2\text{O}$  (M=Mg)
  - sels de nitrates d'un métal trivalent :  $M^{+3}(\text{Cl}_3).9\text{H}_2\text{O}$  (M=Al), définie par un rapport molaire  $M^{+2}/M^{+3}$  égale à 2, dissous dans l'eau bidistillée.
- **Une solution (B) :** contenant de carbonates de sodium ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ) et d'hydroxydes de sodium (NaOH) dissous dans l'eau bidistillée.

Le mélange ainsi obtenu est ajouté pendant une période du temps d'environ une heure à température ambiante sous une forte agitation mécanique. Lorsque la réaction de précipitation est achevée, le gel résultant est mis à reflux à 60-70°C pendant 15 heures afin de permettre la croissance des cristaux.

Une fois le chauffage à reflux est terminé, le produit est filtré puis lavé plusieurs fois avec l'eau bidistillée, puis séché à l'étuve à (70°C) durant une nuit, le produit obtenu est sous forme d'un solide frittible .

Le solide doit être broyé dans un mortier d'agate, ce qui donne une poudre très fine ressemblant au talc. Enfin la calcination de l'adsorbant a été effectuée à 600°C dans un four avec une entrée d'air et une montée de température de 5°C par minute, pendant quatre heures.

## **II.2. Caractérisation physico-chimique de Mg-Al-HDL**

### **II.2.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)**

La spectroscopie infrarouge est une technique d'analyse vibrationnelle. Il s'agit d'une technique d'analyse fonctionnelle, c'est-à-dire qu'elle permet de caractériser les fonctions chimiques du produit organique, inorganique, cristallisé ou amorphe, par comparaison avec les spectres d'absorption infrarouge de substances de référence.

Donc il est possible d'identifier une substance inconnue, parce que chaque molécule possède ses propres caractéristiques IR.

L'analyse spectroscopique a été réalisée à l'aide d'un spectromètre (SHIMADZU, série : FTIR-8900).sur une gamme de nombre d'onde allant de 400 à 4000  $\text{cm}^{-1}$  avec une résolution de 2  $\text{cm}^{-1}$ .

L'échantillon initialement séché à 105°C pendant 48 heures est finement broyé et conditionné sous forme de dispersion dans des pastilles transparentes.

### **II.2.2. Point de charge nulle (PZC)**

Le point de charge nulle (PZC) en chimie physique, est un concept relatif au phénomène d'adsorption, et il décrit l'état où la densité de charge électrique sur une surface est égale à zéro [41].

En d'autres termes, PZC est en général, la valeur de pH à laquelle un solide immergé dans un électrolyte présente une charge électrique nette nulle sur la surface.

Cette méthode consiste à ajouter une solution d'acide chlorhydrique (1N) ou de soude (1N), à une solution de NaCl (0,01M) de volume 50 ml.

Lorsque le pH de la solution de NaCl est fixe, on y additionne 0,05g du Mg-Al-HDL. L'ensemble est laissé sous agitation pendant 48 heures, et le pH final est alors noté [42].

### **II.2.3. Mesure de la masse volumique**

La masse volumique permet de comparer toutes les substances entre elles, cette mesure est souvent effectuée pour identifier une substance et pour déterminer si une substance flotte sur une autre.

La mesure de la masse volumique de Mg-Al-HDL en poudre a été réalisée par la méthode de déplacement volumétrique.

La méthode de déplacement volumétrique consiste à peser une masse de 1 g de Mg-Al-HDL et la placer dans une éprouvette graduée contenant un volume d'eau de 50 ml.

L'augmentation en volume après l'ajout de Mg-Al-HDL a été mesurée, et la masse volumique a été calculée à partir de la masse et du volume.

### II.2.4. Taux d'humidité

Cette technique permet de connaître le pourcentage d'eau contenant sur la surface externe ou bien dans la surface poreuse de Mg-Al-HDL

Un échantillon de Mg-Al-HDL de masse  $m_0$  égale à 0,5 g est pesé et mis dans l'étuve à 105°C jusqu'à l'obtention de masses constantes. La teneur en humidité est calculée par la formule suivante :

$$H(\%) = (m_0 - m_f) \times (100 / m_0) \quad (\text{Eq II.1})$$

Avec :

$m_0$  = masse initiale de Mg-Al-HDL en poudre (g).

$m_f$  = masse finale de Mg-Al-HDL en poudre (g).

### II.2.5. Analyse granulométrique

L'analyse granulométrique doit permettre de séparer les grains à l'aide d'une série des tamis d'un granulat et emboîtés les un sur les autres, dont les démentions des ouvertures sont décroissantes du haut vers le bas.

Le diamètre des mailles des tamis définit ces classes : (100 ; 90 ; 71 ; 63 ; 50 ; 45 et 32  $\mu\text{m}$  ; et le fond des tamis).

La vibration fait descendre les grains à travers les tamis jusqu'à ce qu'ils soient bloqués par le tamis de la maille correspondante au diamètre du grain.

Le matériau étudié (Mg-Al-HDL  $m=5\text{g}$ ) est versé en haut de la colonne de tamis et celle-ci entre en vibration à l'aide de la tamiseuse électrique pendant 20 minutes.

Le refus du tamis ayant la plus grande maille est pesé. Soit  $m_1$  la masse de ce refus. Le refus du tamis immédiatement inférieur est pesé avec le refus précédent. Soit  $m_2$  la masse du deuxième refus. Cette opération est poursuivie pour tous les tamis pris dans l'ordre des ouvertures décroissantes.

Le tamisât présent sur le fond de la colonne du tamis est également pesé. Sans oublier de brosser le tamis avec un pinceau pour amasser les grains bloqués dans les ouvertures des tamis.

**II.3. Application à l’adsorption des acides humiques en système discontinu**

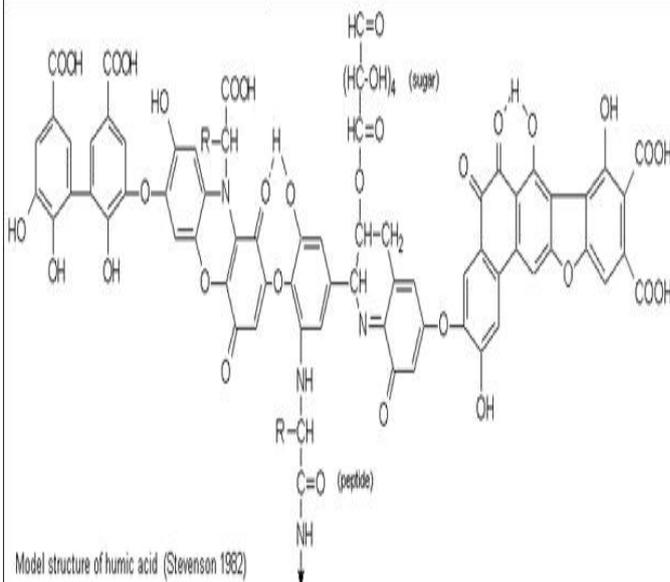
**II.3.1. Choix de l’adsorbat étudié**

Pour évaluer l’efficacité de l’hydroxyde double lamellaire (Mg- Al-HDL), dans le traitement des eaux, l’acide humique a été choisi comme adsorbat organique modèle.

Ces derniers sont très répandus dans les eaux de surface. Elles sont très peu biodégradables et leurs cinétiques de dégradation sont très lentes. On cite des chiffres de 100 à 1000 ans pour leur décomposition totale en élément simples [43]. Les études ont été réalisées en système discontinu.

Les principales caractéristiques de l’acide humique sont regroupées dans le tableau II.1.

Tableau II.1 : Caractéristiques des acides humiques.

Structure chimique	Masse molaire	Pka	solubilité	Longueur d’onde maximale
 <p>Model structure of humic acid (Stevenson 1982)</p>	10.000-100.000 g/mol	4,80	Faible degré de solubilité	254 nm

### **II.3.2. Préparation des solutions de l'acide humique**

Toutes les solutions de l'acide humique sont préparées à des concentrations inférieures à leurs solubilités obtenues. La méthode consiste à préparer d'abord une solution mère de concentration 1g/L, à partir de laquelle nous préparons par dilution successive une série de solutions de concentrations bien déterminées au même pH. Elles sont renouvelées toutes les semaines

L'acide humique est dosé par spectrophotomètre UV visible (SHIMADZU-1700) à la longueur d'onde appropriée (254 nm).

### **II.3.3. Les courbes d'étalonnage**

A partir d'une solution mère de l'acide humique 1g/L, nous avons préparé 7 étalons de concentration : 0,2 ; 0.5 ; 0.8 ; 1 ; 4 ; 5 et 10 mg/l.

Nous avons établi les courbes d'étalonnages en variant le pH de (3, 7 et 10) dans laquelle nous avons représenté l'absorbance en fonction de la concentration de la solution en acide humique. (Figures II.1, II.2 et II.3).

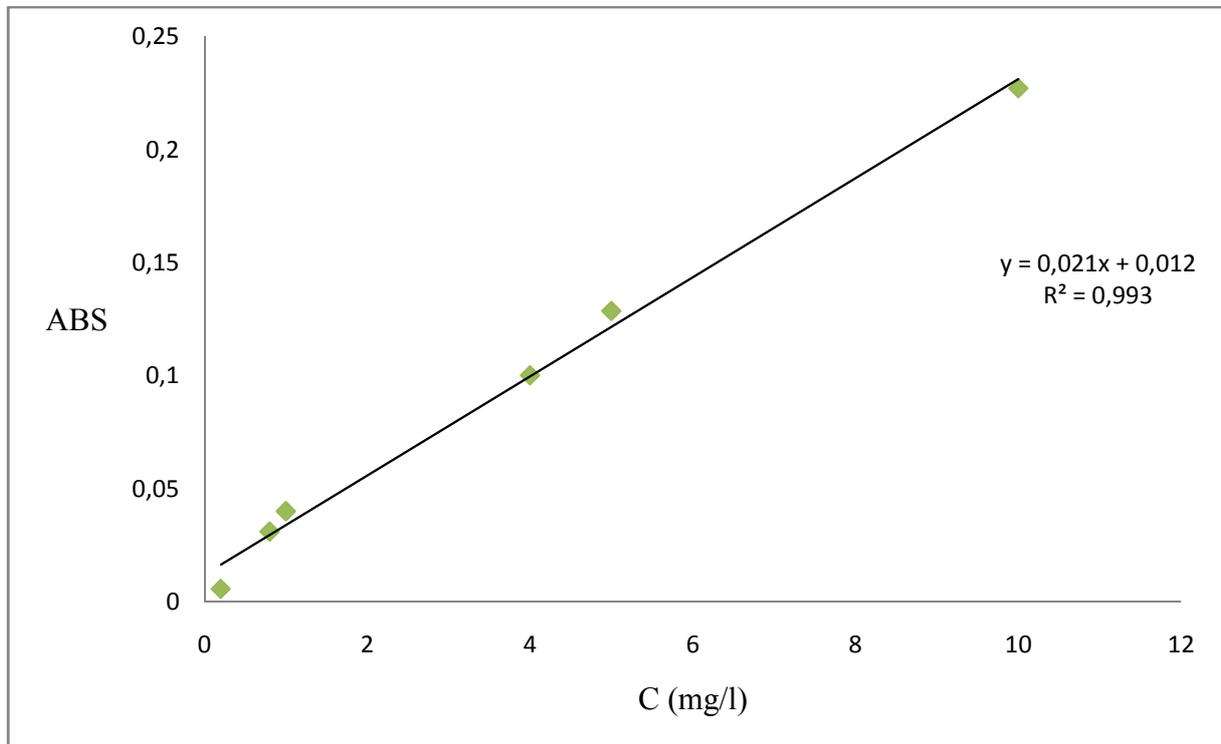


Figure II.1 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=10 et  $\lambda=254\text{nm}$ .

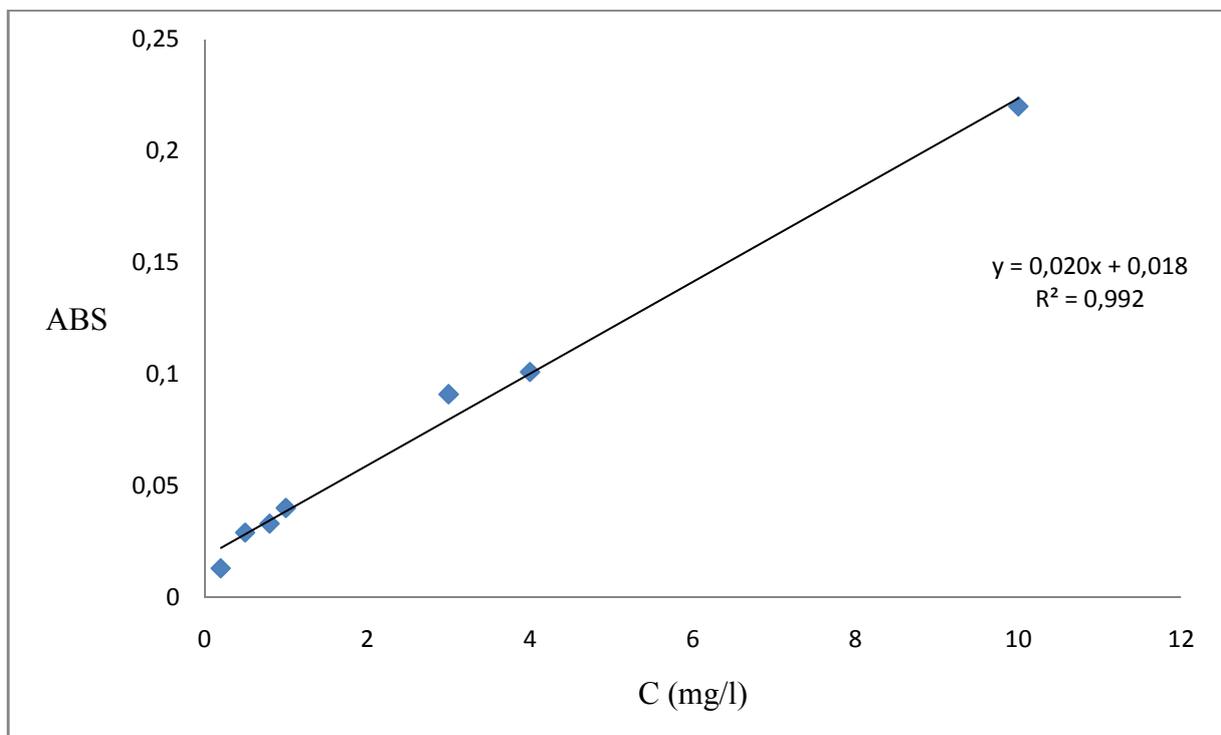


Figure II.2 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=7 et  $\lambda=254\text{nm}$

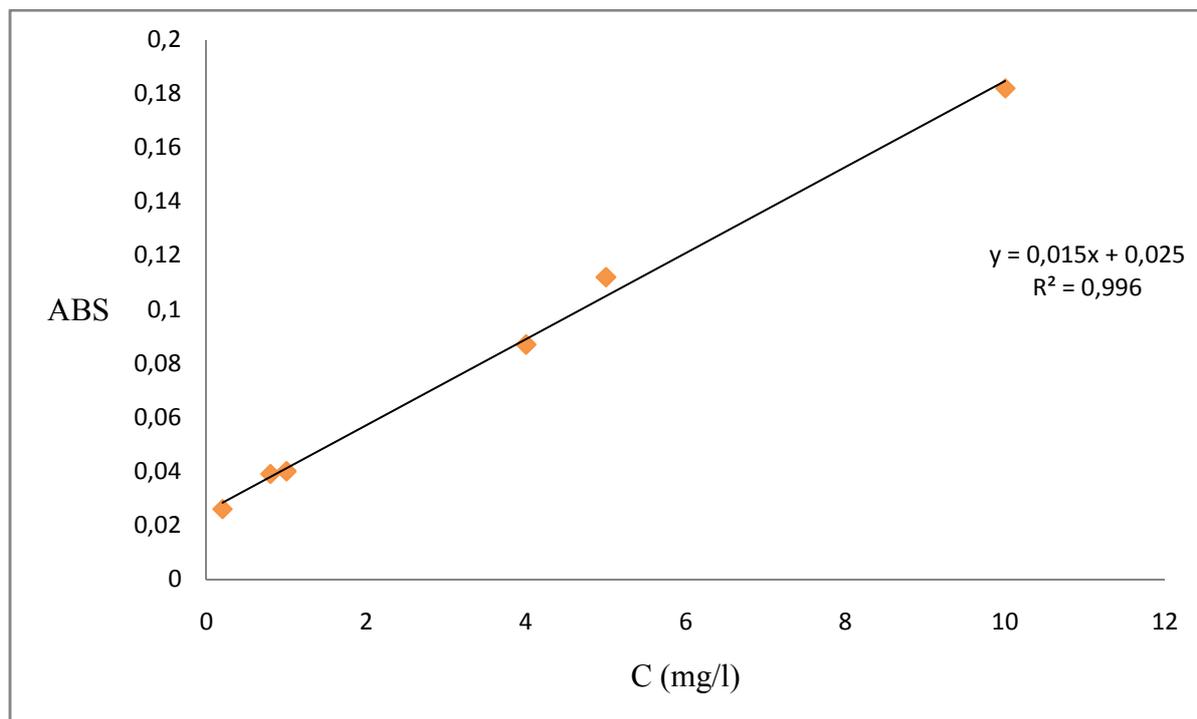


Figure II.3 : Courbe d'étalonnage de l'acide humique à pH=3 et  $\lambda=254\text{nm}$ .

#### II.4. Effet de masse de Mg-Al-HDL sur le rendement d'élimination de l'acide humique

Des masses variantes (0,008 ; 0,01 ; 0,02 ; 0,04 ; 0,06 ; 0,08 ; 0,1 et 0,14g) d'hydroxyde double lamellaire aux quelles sont mélangés les mêmes volumes ( $V=100\text{ml}$ ) de la solution de l'acide humique de concentration fixes (10mg/l) pour différent pH (10, 7 et 3) dans des flacons de 250 ml fermés à bouchant et couverts de papiers aluminium. L'ensemble est placé sous agitation de 200 cpm, sur une table oscillante (agitateur mécanique) pendant un temps de contact de 24 heures. Les filtrats des différentes solutions sont analysés par spectrophotométrie UV-visible à la longueur d'onde (254 nm).

Les différents résultats obtenus ont été exprimés sous forme de courbes, rendement d'élimination en fonction de la masse selon la relation suivante :

$$R(\%) = f(m)$$

## **II.5. Etude cinétique**

### **II.5.1 Effet du temps de contact**

Le principe consiste à préparer plusieurs flacons en verre de 250 ml fermés à bouchant, contenant tous les mêmes masses (m) de Mg-Al-HDL aux quelles sont ajoutés séparément les mêmes volumes (V=100ml) de la solution acide humique de concentration initiale fixe (10mg/l) pour différents pH. L'ensemble est placé sous agitation (200 cpm, sur une table oscillante) et à température ambiante.

Des prélèvements sont ainsi effectués à différents intervalle du temps variant de 0 à 24 heures de contact. Après filtration, les solutions de l'acide humique sont analysées directement par spectrophotomètre UV-visible à la longueur d'onde appropriée (254 nm).

La cinétique d'adsorption de l'acide humique considérée est obtenue en traçant la courbe :

$$Q_t = f(t, \text{pH})$$

### **II.5.2. Effet du pH**

Dans un premier temps, les expériences d'adsorption de l'acide humique sont munies au pH initial des équilibres de Mg-Al-HDL. Dans un second temps, l'influence de pH de la solution sur l'adsorption de l'acide humique est réalisée en faisant varier le pH de (3 à 10).

L'ajustement du pH est effectué goutte à goutte en ajoutant soit quelles que gouttes de solution d'acide chlorhydrique (0,1 N) ou d'hydroxyde de sodium (0,1 N).

Les différents résultats obtenus ont été exprimés sous forme de courbes, capacité d'adsorption en fonction du pH et du temps selon la relation suivante :

$$Q_e = f(\text{pH}, t)$$

**II.6. Etablissement des isothermes**

Des masses de Mg-Al-HDL variant (0,008 ; 0,01 ; 0,02 ; 0,04 ; 0,06 ; 0,08 ; 0,1 et 0,14g) sont mélangées avec des mêmes volumes de la solution de l'acide humique (V=100 ml, C<sub>0</sub> = 10 mg/l) dans des flacons fermés à bouchant et couverts de papier aluminium.

Ceux ci sont placés sur un agitateur à oscillation horizontale fonctionne avec une vitesse d'agitation de 200 cpm pendant un temps de contact moyen de 24 heures. Ce dernier est jugé suffisant pour que l'équilibre adsorbant-adsorbat soit supposé déjà atteint. Les filtrats des différentes solutions sont analysés dans les mêmes conditions par spectrophotométrie UV-visible à la même longueur d'onde (254 nm).

Les isothermes d'adsorption de l'acide humique utilisé ont été établies à différents pH en traçant les courbes :

$$Q_e = f(C_e, \text{pH})$$

### III.1. Caractérisation physico-chimique du Mg-Al-HDL

De nombreuses techniques de caractérisation permettant la connaissance de la Morphologie, des propriétés de surface et du cœur de solides ont été développées pour tenter d'expliquer les changements d'activités et des sélectivités des adsorbants.

Pour notre travail, nous avons eu recours à un certains nombre de techniques physico-chimiques de caractérisation pour (Mg-Al-HDL) telles que : la spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (IRTF), détermination de PZC, taux d'humidité, masse volumique et l'analyse granulométrique.

#### III.1.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (IRTF)

Le spectre infrarouge de l'échantillon représenté sur la Figure III.1 montre les différentes bandes caractéristiques d'absorption enregistrées entre 4000 et 400  $\text{cm}^{-1}$  du Mg - Al-HDL préparé.

L'examen du spectre fait apparaître les bandes d'absorption suivantes:

- Une large bande aux environs de 3452,92  $\text{cm}^{-1}$  qui correspond à la vibration d'élongation des groupements hydroxydes lamellaires liés aux différents métaux et ou et / ou d'une molécule d'eau adsorbée physiquement [44].
- Une bande de vibration observée au voisinage de 1640,16  $\text{cm}^{-1}$  peut être attribuée à la déformation des molécules  $\text{OH}^-$  [6, 44].
- Une bande de vibration observée au voisinage de 1386,57  $\text{cm}^{-1}$  qui correspond à l'élongation antisymétrique des carbonates inter-lamellaires ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) [6, 44].
- Aux bas nombre d'onde ( $<800 \text{ cm}^{-1}$ ) se manifestent les vibrations propres au feuillet ou vibrations de réseau, nous distinguons les vibrations de valence entre le métal et les atomes d'oxygène, 612  $\text{cm}^{-1}$ , 477,29 et 377  $\text{cm}^{-1}$ , ainsi que les vibrations de déformation des liaisons oxygène-métal-oxygène à 360  $\text{cm}^{-1}$ .

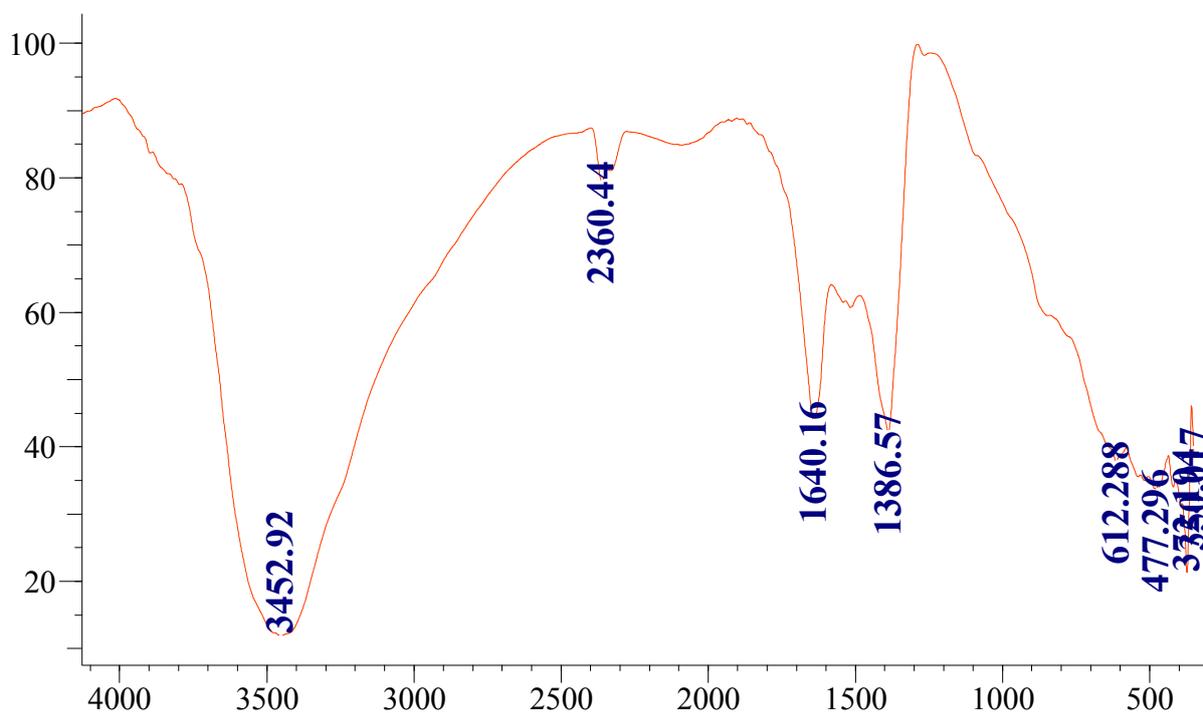


Figure III.1. Spectre infrarouge (IRTF) de Mg-Al-HDL préparé.

### III.1.2. Point de charge nulle (PZC)

Le point de charge nulle (PZC) est la valeur de pH à laquelle un solide immergé dans un électrolyte présente une charge électrique nulle sur la surface.

Sur la Figure III.2, nous avons tracé l'évolution du pH final en fonction du pH initial ajusté. Le  $\text{pH}_{\text{pzc}}$  est le point où la courbe pH final en fonction du pH initial intercepte la ligne pH final égal pH initial.

Il est de 11,8, ainsi pour des pH supérieurs, la surface est chargée négativement. Alors que, pour des pH inférieurs à 11,8 la surface est chargée positivement.

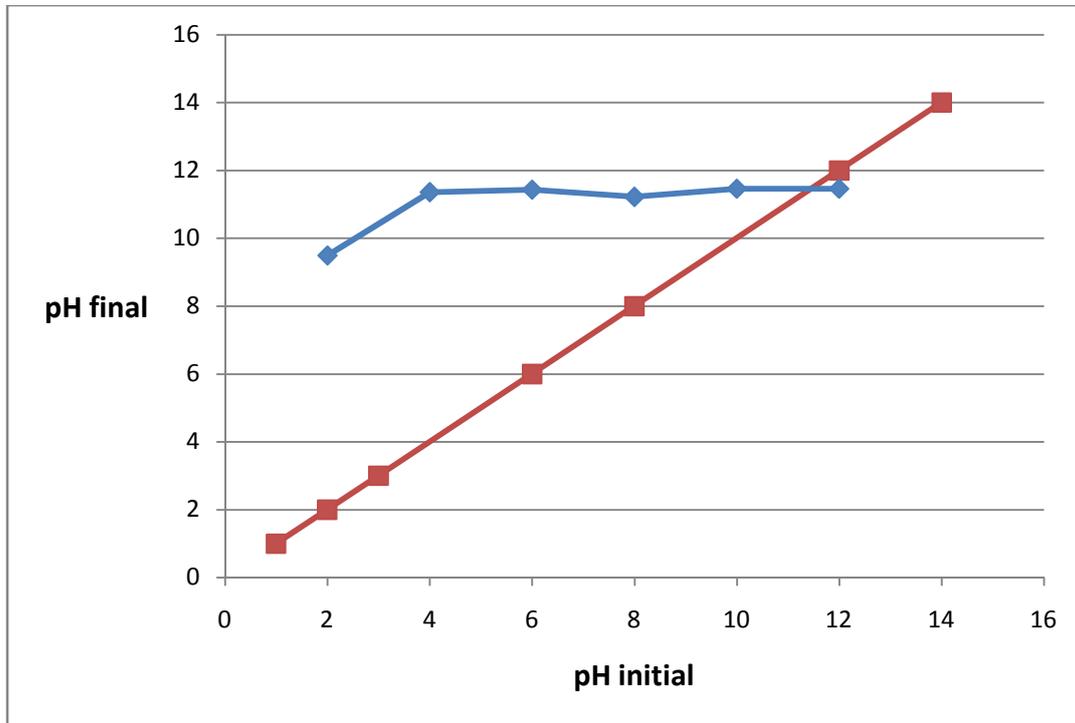


Figure III.2. Détermination du point de charge nulle du Mg-Al-HDL.

### III.1.3. Mesure de la masse volumique

Dans notre cas la masse volumique de Mg-Al-HDL a été calculée à partir de la masse et le volume :

$$\rho = m/\Delta v \quad (\text{Eq III.1})$$

$m : 1 \text{ g}$

$\Delta v : 0,7 \text{ cm}^3$

$$\rho = 1,66 \text{ g/cm}^3$$

### III.1.4. Taux d'humidité

La quantité d'eau présente dans notre solide Mg-Al-HDL à été déterminée :

$m_0 = 0,5 \text{ g}$

$m_f = 0,44 \text{ g}$

$$H = 12 \%$$

### III.1.5. Analyse granulométrique

Les différentes classes granulométriques de Mg-Al-HDL ont été déterminées par l'utilisation d'un certain nombre de tamis de dimensions de mailles différentes. Les résultats obtenus indiqués sur la Figure III.3 ci-dessous montrent bien qu'il s'agit d'une poudre fine ayant une distribution de taille des particules comprise entre 32 et 100  $\mu\text{m}$ . Le diamètre moyen des particules de Mg-Al-HDL est 85 $\mu\text{m}$ .

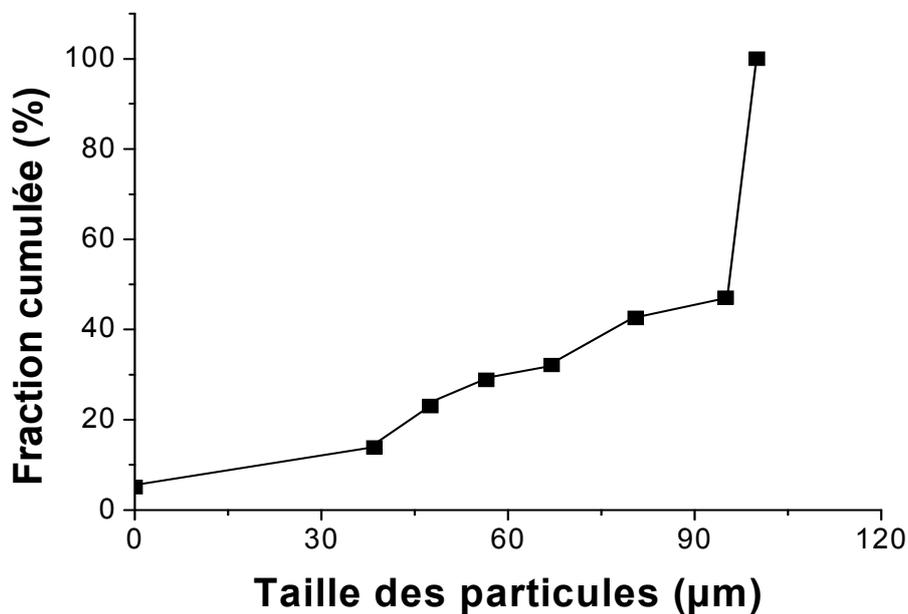


Figure III.3: Distribution de taille des particules du Mg-Al-HDL.

### III.2. Effet de masse de Mg-Al-HDL sur le rendement d'élimination de l'acide humique

La figure III.4 illustre la variation du pourcentage d'élimination de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction de la masse à différents pH de la solution.

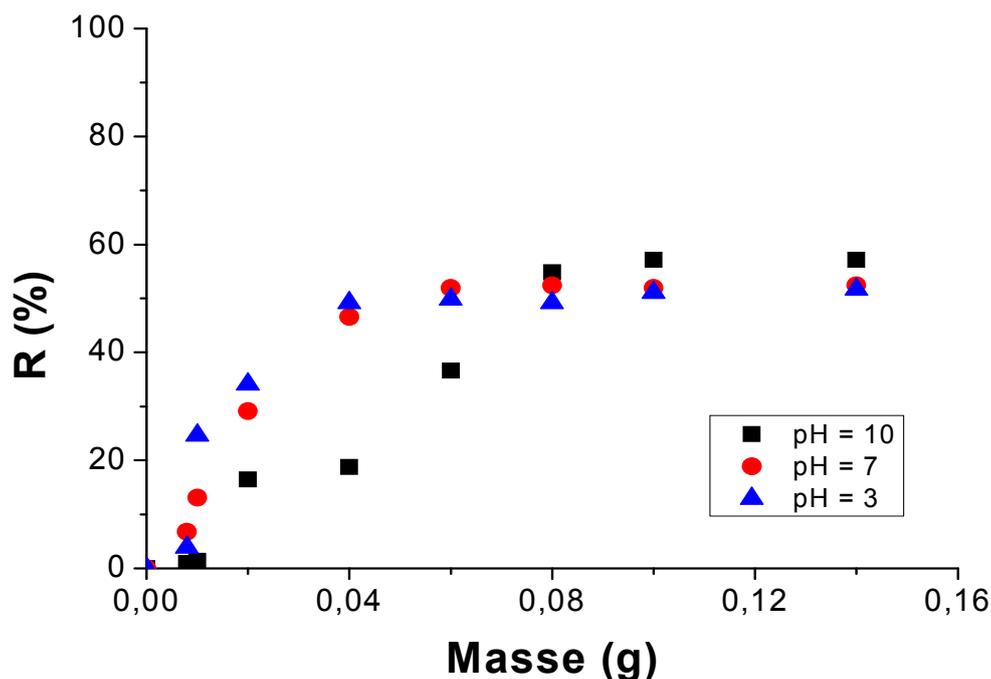


Figure III.4 : Variation du rendement d'élimination de l'acide humique en fonction de la masse à différents pH.

Les résultats montrent que les rendements d'élimination de l'acide humique augmentent avec l'augmentation de la masse pour différents pH.

En effet le rendement d'élimination augmente jusqu'à 51,94 % lorsque la masse varie de 0 à 0,04 g pour pH 7 et 3, suivé par une stabilisation du rendement d'élimination 57 % n'est obtenue lorsque la masse de Mg-Al-HDL atteint 0,04 g pour pH 3 et 7.

Le rendement d'élimination pour pH égal 10, le maximum d'élimination est de 57 % est obtenu pour une masse de 0,08 g de Mg-Al-HDL.

Ce comportement résulte du fait que le nombre de sites actifs disponibles est d'autant plus important quand la masse est grande, ce qui favorise l'adsorption d'importante quantité de l'acide humique.

### III.3. Etude cinétique d'adsorption

#### III.3.1. Effet du temps de contact

La figure III.5 représente l'évolution des quantités adsorbées de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction du temps à différents pH.

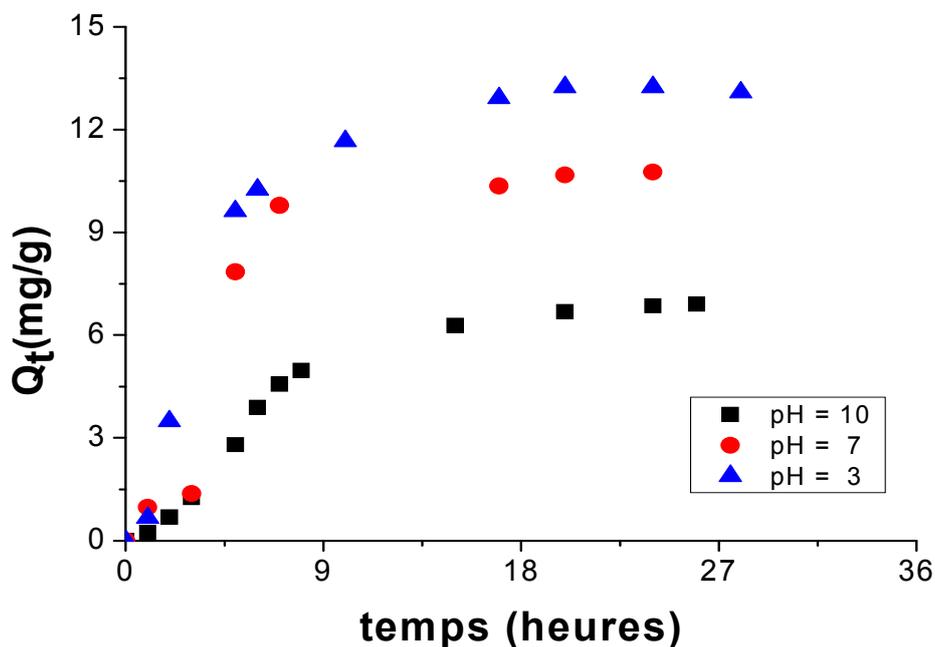


Figure III.5 : Cinétique d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction du temps à différents pH,  $C_0 = 10$  mg/L,  $T = 22$  °C

L'examen de ces courbes montre que la quantité adsorbée augmente rapidement au début de processus pour se stabiliser par la suite à partir de 10 heures indépendamment de pH de la solution.

Dans cette étude, un temps de 10 heures a été jugé suffisant pour que l'adsorption des acides humiques sur Mg-Al-HDL atteigne un état de pseudo équilibre avec un rendement d'élimination de 54 % à l'équilibre.

### III.3.2. Effet de pH

L'analyse des résultats montre que la quantité adsorbée de l'acide humique sur Mg-Al-HDL augmente dans le sens contraire de pH comme le montre la figure III.6

En milieu acide, cette adsorption est importante et la quantité adsorbée est d'environ 13,23 mg/g. Cette adsorption diminue par la suite en milieu basique jusqu'à 6,68 mg/g.

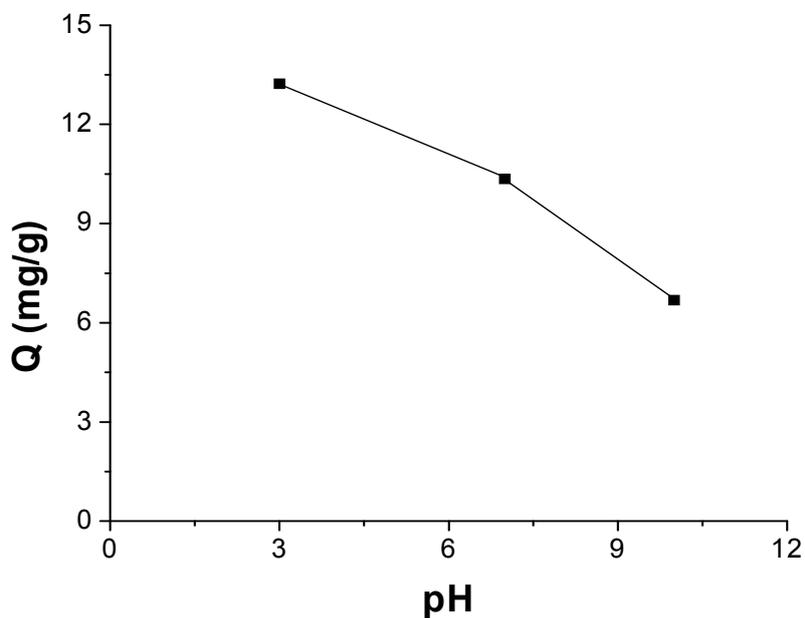


Figure III.6 : Quantité adsorbée de l'acide humique sur Mg-Al-HDL en fonction de pH de la solution

Nous expliquons ceci de la manière suivante :

Le point de charge nulle de Mg-Al-HDL est de  $\text{pH}_{\text{PZC}} = 11,8$ . Ainsi donc pour des valeurs de pH supérieures à 11,8, surface des particules de Mg-Al-HDL se charge négativement. Pour les valeurs de pH inférieure à 11,8, la surface se charge positivement.

D'autre part, les groupements carboxyliques des acides humiques sont protonés au pH inférieur au  $\text{PK}_a$  ( $\text{PK}_a = 4,8$ ). pour des valeurs de pH supérieurs au  $\text{PK}_a$ , les groupements carboxyliques deviennent chargés négativement.

On peut expliquer l'augmentation de la quantité adsorbée de l'acide humique en milieu acide comme suit :

L'ajout des ions  $\text{H}^+$  pour baisser le pH entraine la neutralisation des ions  $\text{OH}^-$  libérés par la structure de Mg-Al-HDL [45, 46], ceci favorise l'adsorption de l'adsorbat étudié en milieu acide.

Par ailleurs, lorsque le pH augmente, il ya une diminution de  $\text{H}^+$  et apparition des ions  $\text{OH}^-$  libérés par la structure ce qui défavorise l'adsorption de l'acide humique en milieu basique.

### **III.3.3. Modélisation de la cinétique**

#### **III.3.3.1. Modèle de pseudo second ordre**

Les données expérimentales des cinétiques d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL utilisé à différents pH ont été modélisées par l'emploi de l'équation de pseudo ordre deux comme l'illustre la figure III.7 suivante.

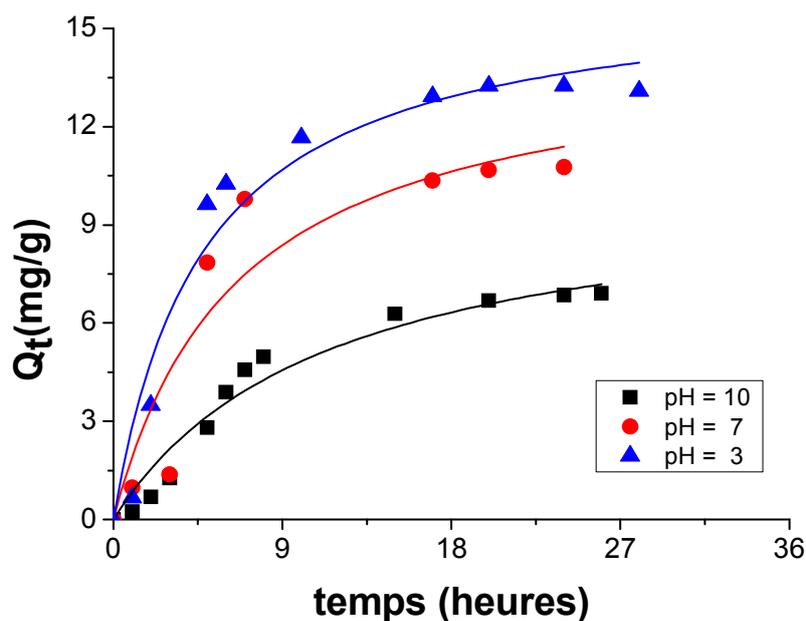


Figure III.7 : Modélisation de la cinétique d'adsorption de l'acide humique par Mg-Al-HDL à différents pH par l'emploi du modèle pseudo second ordre.

Tableau III.1 : Paramètres du modèle pseudo ordre deux pour différents pH

pH	Q <sub>e</sub>	K <sub>2</sub>	R <sup>2</sup>
3	16,31	0,0129	0,95
7	14,51	0,0105	0,88
10	10,33	0,0084	0,96

L'analyse de cinétique modèle a été effectuée par une régression non linéaire en utilisant un logiciel OriginPro 7,5

Graphiquement et d'après des valeurs de différents facteurs de corrélation (Tableau III.1), il apparaît que les données expérimentales relatives au Mg-Al-HDL se rapprochent des données empiriques du modèle de pseudo second ordre.

De plus, nous signalons que les cinétiques d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL sont plus rapides en milieu acide que celles obtenues en milieu basique.

### III.3.3.2. Modèle de diffusion intra-particulaire

Afin d'étudier la diffusivité de l'acide humique entre les particules de Mg-Al-HDL, nous avons appliqué le modèle de WEBER et MORRIS [39] représenté par l'équation suivante :

$$Q_t = k_d \cdot t^{0,5} \quad (\text{Eq III.2})$$

On traçant  $Q_t$  en fonction de  $t^{0,5}$ , l'alignement des points représentatifs de la fonction permettra de conclure sur l'application du modèle aux résultats expérimentaux. Les courbes (Figures III.8) ci-dessous, présentent l'apparition de deux étapes d'adsorption de l'acide humique sur le Mg-Al-HDL : la première linéaire et le deuxième plateau, on remarque aussi l'absence de la partie concave du modèle appliqué, ceci est peut être dû à la rapidité de l'adsorption à la surface externe du solide.

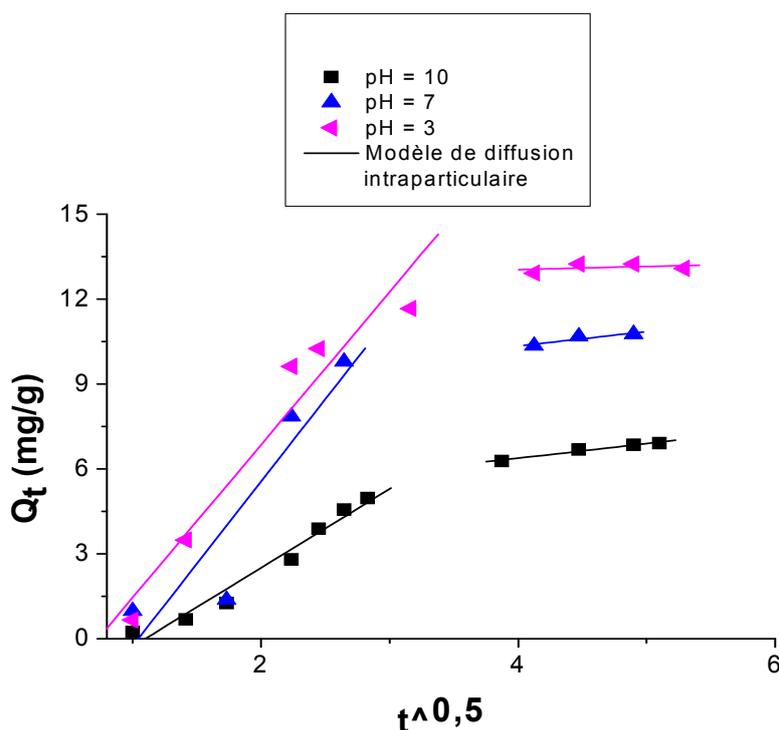


Figure III.8 : Modélisation des cinétiques d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l'emploi du modèle de diffusion intra-particulaire.

La partie linéaire est attribuée à une diffusion intra-particulaire. Cette étape commence à prendre place jusqu'à 10 heures. Le plateau indique un équilibre, qui commence après 10 heures. De plus, le coefficient de diffusion intra-particulaire augmente dans le sens contraire de pH pour des temps  $t \leq 10$  heures, et diminue avec la diminution du pH pour des temps  $t \geq 10$  heures.

Le modèle de diffusion ne permet pas une bonne approche de la totalité de la courbe, seuls des domaines situés au début des courbes de cinétique montrent une variation linéaire avec  $t^{0,5}$ . En conclusion, l'étape de diffusion intra-particulaire ne peut pas être supposée l'étape de contrôle de vitesse dans le processus d'une adsorption globale.

Tableau III.2 : Coefficient de diffusion intra-particulaire de l'acide humique en fonction de pH.

pH	Pour les valeurs $\geq Q_t/Q_e$		Pour les valeurs $\leq Q_t/Q_e$	
	$K_d$	$R^2$	$K_d$	$R^2$
3 7 10	0,196	0,90	5,39	0,96
	0,509	0,92	5,81	0,91
	0,516	0,98	2,78	0,98

### III.4. Etude des équilibres d'adsorption

#### III.4.1. Etablissement des isothermes

Les isothermes d'adsorption de l'acide humique Mg-Al-HDL obtenues à différents pH sont représentées sur la Figure III.9.

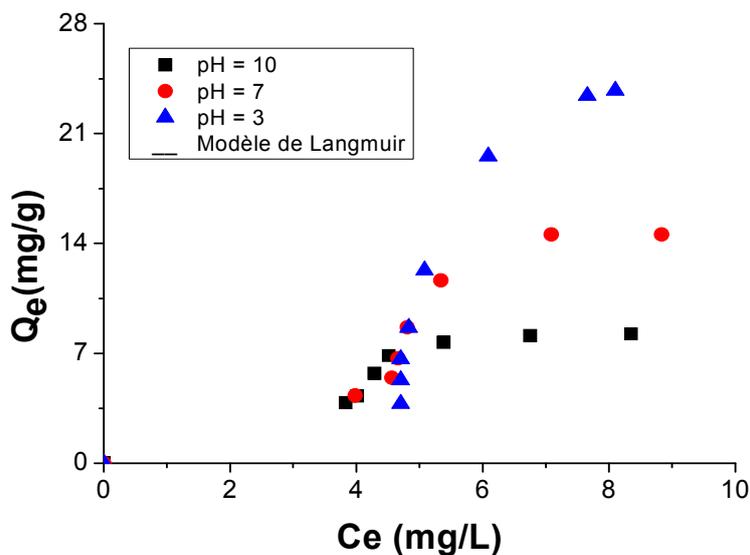


Figure III.9 : Isothermes expérimentales d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL à différents pH,  $C_0 = 10$  mg/g,  $T = 22$  °C.

L'étude de ces isothermes montre clairement qu'elle s'approche de l'isotherme de la classe S selon la classification de GILLES.

Dans ces cas étudiés, ces courbes montrent que les quantités adsorbées augmentent avec l'augmentation de concentration à l'équilibre.

### III.4.2. Modélisation des isothermes

La distribution des isothermes d'adsorption a été réalisée en appliquant le modèle de Langmuir et Freundlich.

L'analyse des isothermes modélisées a été effectuée en utilisant les ajustements basés sur des régressions non linéaires par l'emploi de logiciel OriginPro 7.5

Les figures III.10 et III.11 montrent les ajustements non linéaires des données expérimentales des équilibres par le modèle de Langmuir et Freundlich obtenus lors de l'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL.

Les constantes caractérisant les deux modèles ont été déterminées et sont regroupées dans le tableau III.3

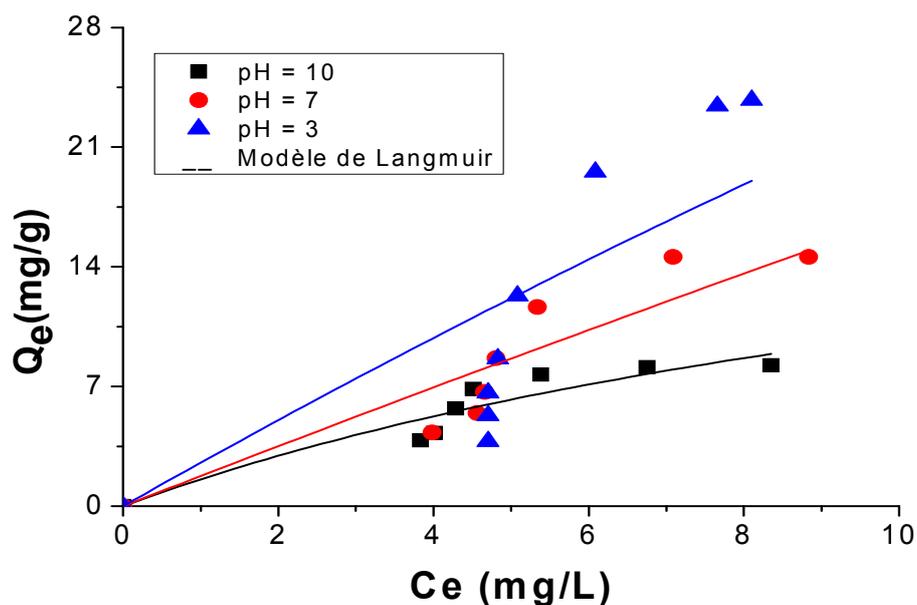


Figure III.10 : Modélisation des isothermes d'adsorption de l'acide humique sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l'emploi du modèle de Langmuir.

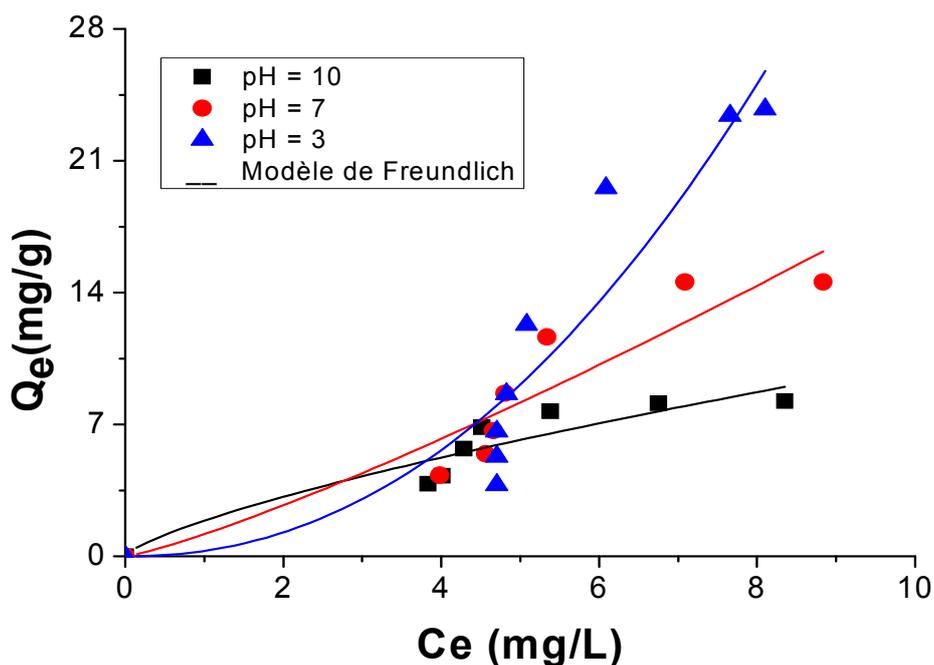


Figure III.11 : Modélisation des isothermes d’adsorption de l’acide humique sur Mg-Al-HDL pour différents pH par l’emploi du modèle de Freundlich.

Tableau III.3 : Paramètres des modèles Langmuir et Freundlich

pH	Langmuir			Freundlich		
	$Q_m$ (mg/g)	$K_L$	$R^2$	$K_f$	$1/n$	$R^2$
3	216,42	0,0119	0,66	0,28	2,15	0,84
7	329,24	0,00538	0,854	1,17	1,20	0,78
10	24,58	0,068	0,90	1,90	0,73	0,70

Les résultats affichés sur le Tableau III.3 indiquent que l’équilibre adsorptionnel ne peut pas être représenté par le modèle de Langmuir et Freundlich car les valeurs de coefficient de corrélation  $R^2$  sont faibles.

---

# Introduction générale

---

Les eaux de surface contiennent des matières organiques et minérales provenant de la vie végétale et animale. Dans le domaine des matières organiques naturelles, les substances humiques, composées principalement d'acides humiques et fulviques, occupent une très grande part. Elles sont responsables de la coloration de l'eau, possèdent des propriétés d'échangeurs d'ions et des propriétés de complexation. Elles peuvent être un véhicule pour la plupart des substances toxiques (métaux lourds, pesticides...), participent également à la corrosion du système de distribution.

En Algérie, le matériel humique peut représenter une part importante de la charge organique des eaux superficielles. Il constitue généralement la catégorie la plus importante dans ces eaux avec des concentrations supérieures à 1 mg/l et une proportion de l'ordre de 40 à 90% de COT (carbone organique total) [1].

Un des procédés classiques d'élimination de l'acide humique au niveau de la station de traitement d'eau potable est la coagulation/floculation. Mais cette méthode entraîne un coût opérationnel élevé et génère des volumes élevés des boues supplémentaires, et parfois supprime insuffisamment les substances humiques dans l'eau. Il existe d'autres techniques comme la filtration sur membrane ou adsorption sur charbon actif.

L'adsorption est une méthode importante dans le traitement de l'eau à haute efficacité de l'élimination et aucun sous-produit nocif. Le développement des adsorbants relativement bon marché autres que le carbone activé, avec une grande capacité d'adsorption et une affinité pour l'acide humique, pourrait ainsi réduire considérablement le coût total de l'élimination de l'acide humique d'eau. C'est dans ce contexte que nous nous sommes proposé de tester des adsorbants à base d'hydroxyde double lamellaire Mg et Al.

Notre travail consiste à préparer des adsorbants de type hydroxydes doubles lamellaires à base de Magnésium et Aluminium (Mg-Al-HDL) par la méthode de co-précipitation.

---

# Introduction générale

---

La structure de notre mémoire est organisée comme suit :

Chapitre I : consacré à l'étude bibliographique sur :

- Les hydroxydes doubles lamellaires.
- Les acides humiques.
- La modélisation de l'adsorption.

Chapitre II : Partie expérimentale (matériels et méthodes)

- Synthèse et caractérisation de (Mg-Al-HDL).
- Application dans l'adsorption des acides humiques.

Chapitre III : Interprétation et discussion sur les résultats obtenus.

Enfin nous achevons notre étude par une conclusion générale.