

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
REPUBLICUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
جامعة عمار تليجي بالأغواط
UNIVERSITE AMAR TELIDJI LAGHOUAT

كلية العلوم
FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT Sciences de la Matière



Mémoire de Master

Domaine : Sciences de la matière

Filière : Chimie

Option : Chimie organique

Par :

Bouras Hanane

THEME

Adsorption de l'Ibuprofène sur un matériau poreux

Soutenu publiquement devant le jury composé de :

Mr. ZERGUINI Hocine

M.A.A

Président

Mme. HAMDY Fatima Zohra

M.A.A

Examinatrice

Mlle. BATANA Fatima Zohra

M.A.A

Promotrice

Année Universitaire 2015/2016

SOMMAIRE

Dédicaces	i
Remerciements	ii
Liste des abréviations	iii
Liste des figures	iv
Liste des tableaux	v
Introduction générale	1

Chapitre I : Médicaments

I.1. Généralités	3
I.2. Définition	3
I.3. Dangers et toxicité des médicaments	3
I.4. Ibuprofène	5
I.4.1. Définition	5
I.4.2. Structure	5
I.4.3. Propriétés physico-chimiques	5
I.4.4. Indication et Toxicité	6

Chapitre II : Adsorbants

II.1. Généralités	7
II.2. Charbon actif	8
II.2.1. Historique	8
II.2.2. Définition	8
II.2.3. Structure	8
II.2.4. Différents types de charbon actif	9
II.2.4.1. Charbon actif en grain (CAG)	9
II.2.4.2. Charbon actif en poudre (CAP)	9
II.2.5. Voies de fabrication du charbon actif	9
II.2.5.1. Pyrolyse	10
II.2.5.2. Activation	10
II.2.6. Propriétés chimiques et structurales des charbons actifs	11

II.2.6.1. Structure poreuse d'un charbon actif.....	11
II.2.6.2. Surface spécifique.....	12
II.2.7 Applications du charbon actif	12

Chapitre III : Adsorption

III.1. Définition	13
III.2. Différents types d'adsorption.....	13
III.2.1. Adsorption physique (physisorption).....	13
III.2.2. Adsorption chimique (chimisorption).....	14
III.3. Description du mécanisme d'adsorption	14
III.4. Facteurs influençant l'adsorption.....	14
III.5. Applications de l'adsorption	15
III.6. Cinétique d'adsorption.....	15
III.6.1. Modèle cinétique du pseudo-premier ordre (Lagergen)	16
III.6.2. Modèle cinétique du pseudo-second ordre(Lagergen)	17
III.6.3. Modèle cinétique d'Elovich	17
III.6.4. Modèle de diffusion intra-particulaire.....	18
III.6.5. Modèle de la fonction puissance	19

Chapitre IV : Partie expérimentale

IV.1. Produits et matériels.....	20
IV.2. Protocole expérimental.....	20
IV.2.1. Préparation des solutions étalons.....	20
IV.2.2. Préparation du charbon actif	21
IV.2.3. Processus d'adsorption.....	21
IV.2.4. Cinétique d'adsorption.....	21
IV.3. Méthodes d'analyse.....	22
IV.4. Résultats et discussions	24
IV.4.1. Etablissement de la courbe d'étalonnage	24
IV.4.2. Cinétique d'adsorption.....	25

IV.4.3. Modèles cinétiques.....	29
IV.4.3.1. Pseudo-ordre 1.....	29
IV.4.3.2. Pseudo-second ordre.....	30
IV.4.3.3. Modèle cinétique d'Elovich.....	32
IV.4.3.4. Modèle de diffusion intra-particulaire.....	33
IV.4.3.5. Modèle de la fonction puissance.....	34
Conclusion générale.....	37
Références bibliographiques.....	38



Dédicaces

Je dédie ce travail à :

*Mes très chers parents pour les
efforts considérables fournis pour
mon éducation et ma réussite*

*A mon mari : **Lachen Gaffafe***

*Mes sœurs : **Fatima et Zhou***

*Mes frères : **Atalah et Aissa***

A toutes mes amies

*Toute la promotion de chimie et
physique 2016*

*Enfin à tous ceux que j'aime
et j'estime*

HANANE

Remerciements

*Mes remerciements s'adressent en premier lieu à **ALLAH** le tout puissant pour la volonté et la patience qu'il m'a donné durant toutes ces longues années.*

*Je remercie vivement **Mlle. BATANA Fatima Zohra** de m'avoir suivi et soutenu dans la réalisation de ce travail. Je lui exprime ma gratitude pour sa disponibilité, ses précieux conseils et pour le soutien qu'elle m'a apporté tout au long de la préparation de ce mémoire*

Je remercie également les membres de jury :
***Mr. ZERGUINI Hocine** d'avoir accepté de présider le jury et **Mme. HAMDI Fatima Zohra** pour avoir eu l'amabilité de lire et de juger ce travail.*

*Sans oublier les enseignants et personnels de Département de Sciences de la Matière, Faculté de Médecine et Génie des Procédés, spécialement **Dr. SAIDAT Boubaker** et **Mr. ZERGUINI Hocine***

Je remercie mes collègues et mes amies pour les sympathiques moments qu'on a passé ensemble.

Enfin, je ne saurai oublier toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

LISTE DES ABREVIATIONS

- α** : Taux d'adsorption initiale ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$),
- β** : Constante reliée à la surface externe et à l'énergie d'activation de la chimisorption ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),
- a** et **b** : Constantes de l'équation de cinétique d'Elovich,
- a** et **b** : Constantes de l'équation de cinétique de la fonction puissance,
- AINS** : Anti-Inflammatoires Non Stéroïdiens,
- b** : Affinité de l'adsorbant pour l'adsorbât,
- C** : Intersection de la droite avec l'axe des ordonnées (épaisseur de la couche limite),
- C_0** : Concentration initiale de l'adsorbât ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$),
- CA** : Charbon actif,
- CAG** : Charbon Actif en Grain,
- CAP** : Charbon Actif en Poudre,
- C_e** : Concentration du soluté dans la phase liquide à l'équilibre ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$),
- HPLC** : Chromatographie Liquide à Haute Performance,
- h** : Vitesse initiale d'adsorption,
- IBU**: Ibuprofène,
- IUPAC**: International Union of Pure and Applied Chemistry,
- K_1** : Constante de vitesse d'adsorption du premier ordre (min^{-1}),
- K_2** : Constante de vitesse d'adsorption de deuxième ordre ($\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$),
- K_{id}** : Constante de diffusion intra-particulaire ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{1/2}$),
- m** : Masse de l'adsorbant (g),
- PPO** : Pseudo-Premier-Ordre,
- PSO** : Pseudo-Second-Ordre,
- q_e** : Quantité d'adsorbât à l'équilibre, par gramme d'adsorbant ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),
- $q_{e \text{ calc}}$** : Capacité d'adsorption à l'équilibre calculée ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),
- $q_{e \text{ exp}}$** : Capacité d'adsorption à l'équilibre expérimentale ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),
- q_m** : Capacité maximale de l'adsorbant ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),
- q_t** : Quantité d'adsorbât à l'instant t, par gramme d'adsorbant ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),

R² : Coefficient de corrélation des régressions linéaires,

T : Température (°C),

t_{1/2} : Temps de demi-vie,

USB : Unité de structure de base,

V : Volume de la solution (L).

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Devenir des médicaments dans l'environnement.....	4
Figure I.2 : Formule chimique de la molécule de l'ibuprofène	5
Figure II.1 : Caractéristiques des principaux adsorbants industriels	7
Figure II.2 : A : Modèle de l'USB et B : Microstructure d'un charbon actif	9
Figure II.3 : Représentation schématisée d'un grain poreux.....	11
Figure III.1 : Phénomène d'adsorption.....	13
Figure VI.1 : Différentes étapes de la cinétique d'adsorption en réacteur discontinu....	21
Figure IV.2 : Installation de l'appareil de HPLC.....	22
Figure IV.3 : Installation de HPLC.....	23
Figure IV.4 : Spectre UV relatif au pic de l'ibuprofène.....	23
Figure IV.5 : Représentation graphique de la courbe d'étalonnage de l'ibuprofène ($\lambda=220$ nm) à $20 \pm 2^\circ\text{C}$	24
Figure IV.6 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et du rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 25°C ($C_0 = 10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1})...	26
Figure IV.7 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et du rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 30°C ($C_0 = 10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1}).	26
Figure IV.8 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et du rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 40°C ($C_0 = 10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1}).	27
Figure IV.9 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et du rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à différentes températures ($C_0=10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1}).....	28
Figure IV.10 : Représentation graphique de pseudo-premier ordre de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1} , $T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).....	29
Figure IV.11 : Représentation graphique de pseudo-second ordre de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10$ mg. L^{-1} , 200 tr. min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).....	30

Figure IV.12 : Représentation graphique d'Elovich de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).....	33
Figure IV.13 : Représentation graphique du modèle de la diffusion intra-particulaire de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1} , $T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).	34
Figures IV.14 : Représentation graphique de modèle de la fonction puissance du l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).....	35

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1 : Propriétés physico-chimiques et structurale de l'ibuprofène.....	6
Tableau IV.1 : Caractéristique de la régression linéaire de l'ibuprofène.....	24
Tableau IV.2 : Valeurs des constantes et des coefficients de corrélation des cinétiques d'adsorption	31
Tableau IV.3 : Paramètres de la modélisation des modèles d'adsorption.....	35



Introduction générale

Introduction générale

Les produits pharmaceutiques sont des éléments importants et indispensables dans la vie moderne, ils décrivent une grande classe des contaminants chimiques qui peuvent produire d'une utilisation humaine et vétérinaire pour traiter des symptômes, des maladies et des infections bactériennes ainsi que pour prévenir des grossesses et stimuler la croissance d'élevages agricoles et aquacoles.

Aujourd'hui, ces substances sont retrouvées dans les différents milieux de l'environnement et récemment détectées, grâce au développement des stratégies analytiques qui diminuent les limites de détection [1].

Les concentrations dans lesquelles les résidus du médicament se trouvent dans l'environnement dépendent des quantités consommées, des propriétés physico-chimiques des résidus, de l'efficacité d'élimination de ces derniers lors du traitement des eaux dans les stations d'épuration, des caractéristiques du milieu et de la dimension du milieu récepteur ; actuellement, ces concentrations sont très faibles.

Par contre, en raison de leur présence continue, elles peuvent avoir des conséquences indésirables sur les organismes, ces effets se traduisent notamment par une toxicité chronique, en raison de l'exposition à des très faibles doses pendant une longue période. En outre, la problématique des résidus des médicaments est possiblement amplifiée par deux questionnements : d'une part, la bioaccumulation, et d'autre part, l'effet de mélange résultant de la multitude des résidus des médicaments différents se trouvant dans l'environnement.

Afin de minimiser les risques et éliminer les traces de ces produits pour préserver l'environnement et la santé humaine, il existe plusieurs procédés physico-chimiques de traitement, les plus courants sont : la coagulation, la précipitation chimique, l'échange d'ions et l'adsorption.

Le traitement par la technique d'adsorption est la méthode la plus utilisée pour son efficacité ; l'adsorption sur le charbon actif est aisément réalisable car il est un excellent adsorbant : sa capacité d'adsorption est remarquable, d'où son utilisation dans des domaines très variables [2].

L'objectif de notre travail est l'étude de l'adsorption de l'ibuprofène sur le charbon actif en poudre. Ce travail est présenté sous forme de deux parties.

La première partie se subdivise en trois chapitres :

- Une synthèse bibliographique qui englobe des généralités sur les substances pharmaceutiques notamment l'ibuprofène.
- Rappels sur les adsorbants et plus précisément le charbon actif et ses caractéristiques.
- Rappels sur l'adsorption, la cinétique et ses différents modèles.

La deuxième partie comporte :

- L'exposition des produits, du matériel et du protocole expérimental.
- Les résultats expérimentaux et leur discussion.



CHAPITRE I
Médicaments

I.1. Généralités

Au début du **XX^e siècle**, une douzaine de molécules de synthèse et une centaine de produits naturels étaient considérés comme médicaments, ensuite, des médicaments à base d'autres molécules ont été synthétisés par des laboratoires pharmaceutiques. Depuis peu, les protéines sont de plus en plus utilisées comme médicaments.

Au **XXI^e siècle**, des centaines de molécules de synthèse sont utilisées, il ne reste que très peu de remèdes courants d'origine exclusivement naturelle [3].

I.2. Définition

D'après le code de la santé publique (1967), un médicament est toute substance ou composition possédant des propriétés curatives et/ou préventives à l'égard des maladies humaines ou animales, ainsi que tout produit pouvant être administré à l'homme ou à l'animal, en vue d'établir un diagnostic médical, de restaurer, de corriger ou de modifier leurs fonctions organiques [4].

Un médicament incorpore un principe actif qui est un élément d'origine chimique ou naturelle et porte sur la capacité de traitement ou de prévention recherchée. A ce dernier, sont associés des éléments appelés les excipients qui facilitent l'emploi du médicament. Ceux –ci sont également des substances d'origine chimique ou naturelle mais qui ne présentent aucun effet curatif ou préventif, ils sont inertes mais néanmoins essentiels, car ils rendent l'utilisation du médicament possible.

L'ensemble du principe actif et des excipients constitue la forme pharmaceutique c'est-à-dire le médicament dans sa forme destinée à l'administration [5].

I.3. Dangers et toxicité des médicaments

L'utilisation d'un médicament peut exposer le consommateur à des dangers éventuels plus ou moins prévisibles. Ces dangers encourus sont divers et varient d'un médicament à un autre.

Le risque porte sur des effets indésirables et/ou toxiques du médicament. Ces effets résultent de l'interaction moléculaire entre la substance chimique et l'organisme vivant qui développe des réactions biochimiques.

Quand une substance est introduite dans l'organisme, ce dernier essaie de l'éliminer par excrétion (rôle du foie, du rein, du poumon et du cœur), il s'agit de la biotransformation (métabolisme) qui rend les molécules hydrosolubles. Ces biotransformations aboutissent à la

formation de nouvelles substances (métabolites) qui peuvent de nouveau exposer l'utilisateur à des dangers parfois plus graves que ceux de la substance initiale [6].

Un schéma récapitulatif du devenir des médicaments dans l'environnement est représenté sur la figure ci-dessous :

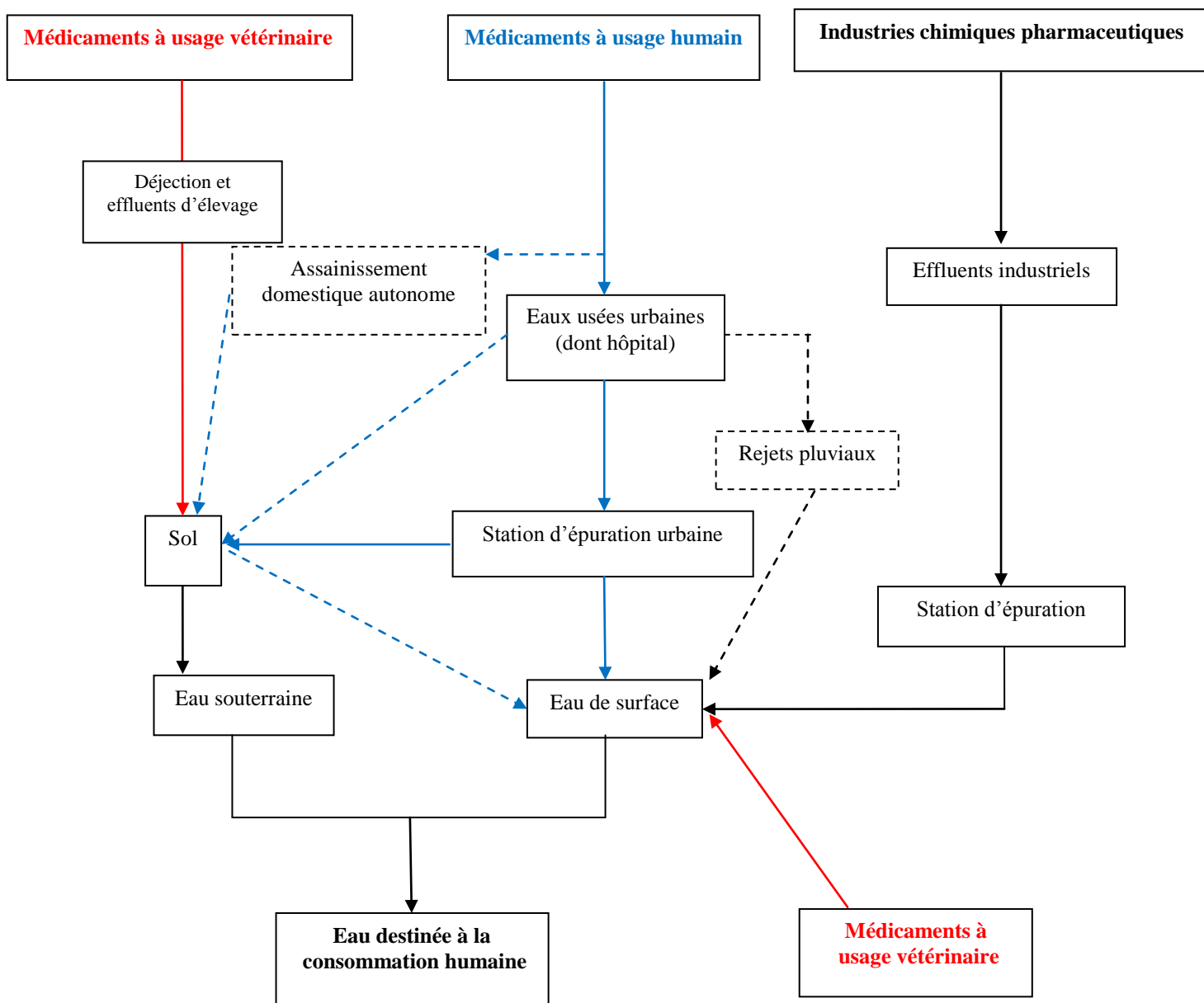


Figure I.1 : Devenir des médicaments dans l'environnement [7].

Parler des médicaments est vaste, aussi dans notre présente étude, nous avons ciblé un médicament d'usage courant s'agissant de l'ibuprofène.

I.4. Ibuprofène

I.4.1. Définition

La dénomination commune internationale de l'ibuprofène est l'acide alpha-méthyl- 4-(2-méthylpropyl) benzénéthanoïque [8]. Selon la classification de médicaments anti-inflammatoires non stéroïdiens (AINS) présenté au Royaume – Uni (1969) et aux Etats-Unis en (1974), l'ibuprofène est un médicament anti-inflammatoire, analgésique et antipyrétique largement utilisé

Ce produit pharmaceutique constitue le principe actif de nombreux médicaments commercialisés sous des noms variés, par exemple **Advil, Nurofen, Motrin**. [9].

I.4.2. Structure

L'ibuprofène a une formule brute $C_{13}H_{18}O_2$ [10], structure chimique est représentée sur la figure suivante

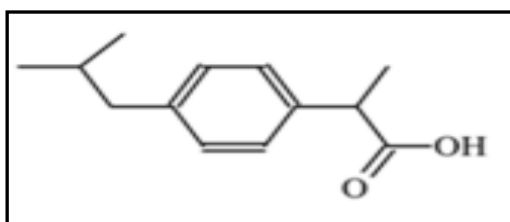


Figure I.2 : Formule chimique de la molécule de l'ibuprofène [11].

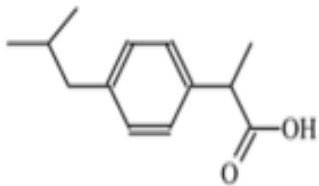
I.4.3. Propriétés physico-chimiques

L'ibuprofène se présente sous forme d'une poudre cristalline blanche. Il est soluble dans la plupart des solvants organiques tels que le méthanol (relativement insoluble dans l'eau), avec un maximum d'absorption de 220 nm en UV [9]. C'est un acide faible généralement utilisé sous forme de sel [12].

La biodisponibilité de ce médicament est relativement faible après l'administration par voie orale, car il est peu soluble dans l'eau, et considéré comme un médicament hydrophobe [9].

Les principales propriétés physico-chimiques de la molécule de l'ibuprofène sont récapitulées dans le schéma ci-dessous.

Tableau I.1 : Propriétés physico-chimiques et structurale de l'ibuprofène [13].

Nom chimique acide alpha-méthyl- 4-(2-méthylpropyl) benzénoïque	
Formule brute $C_{13}H_{18}O_2$	Formule développée 
Masse molaire 206,28 g. mol ⁻¹	Solubilité dans l'eau à 25°C 21 mg. L ⁻¹
Température de fusion 75°C à 77,5 °C	pK_a 4,91

I.4.4. Indication et Toxicité

La toxicité peut être de trois types selon la durée d'exposition :

- **Aiguë** : exposition unique au toxique et observation dans les heures suivant l'administration,
- **Sub-chronique** : exposition au toxique répétée pendant quelques semaines,
- **Chronique** : exposition au toxique pendant une longue période allant de plusieurs mois à plusieurs années [14].

L'ibuprofène est utilisé en médecine humaine pour fluidifier le sang et pour traiter les maux de tête, les douleurs musculaires, la fièvre et l'arthrite avec des effets indésirables gastro-intestinaux et hématologiques nettement moins que les autres médicaments de la même famille [9].

Il est utilisé comme traitement symptomatique des douleurs aiguës d'intensité légère ou modérée chez l'adulte et l'enfant [15].

La toxicité de l'ibuprofène est liée à l'inhibition de la synthèse des prostaglandines de manière non-spécifique, la plupart des effets indésirables résultant d'un long traitement et incluent des affections du rein, du foie et des affections gastro-intestinales.

Finalement, l'inhibition de prostaglandines associée aux AINS est liée à la réduction de la fertilité de la femme, aux fausses couches et aux malformations fœtales [14, 16].



CHAPITRE II
Adsorbants

II.1. Généralités

Un solide est dit adsorbant, s'il possède une surface spécifique suffisante pour avoir des intérêts industriels

Les adsorbants sont caractérisés par un certain nombre de propriétés physico-chimiques :

- Porosité interne,
- Surface spécifique des pores,
- Taille des particules [9],
- Haute capacité d'adsorption,
- Grande efficacité pour adsorber des substances de faibles concentrations,
- Sélectivité élevée,

Aptitude à être facilement régénérés et utilisés de nouveau [17].

Il existe quatre types d'adsorbants dans le domaine industriel : les charbons actifs, les zéolithes, les gels de silices et les alumines activées dont les caractéristiques sont récapitulées dans la figure suivante :

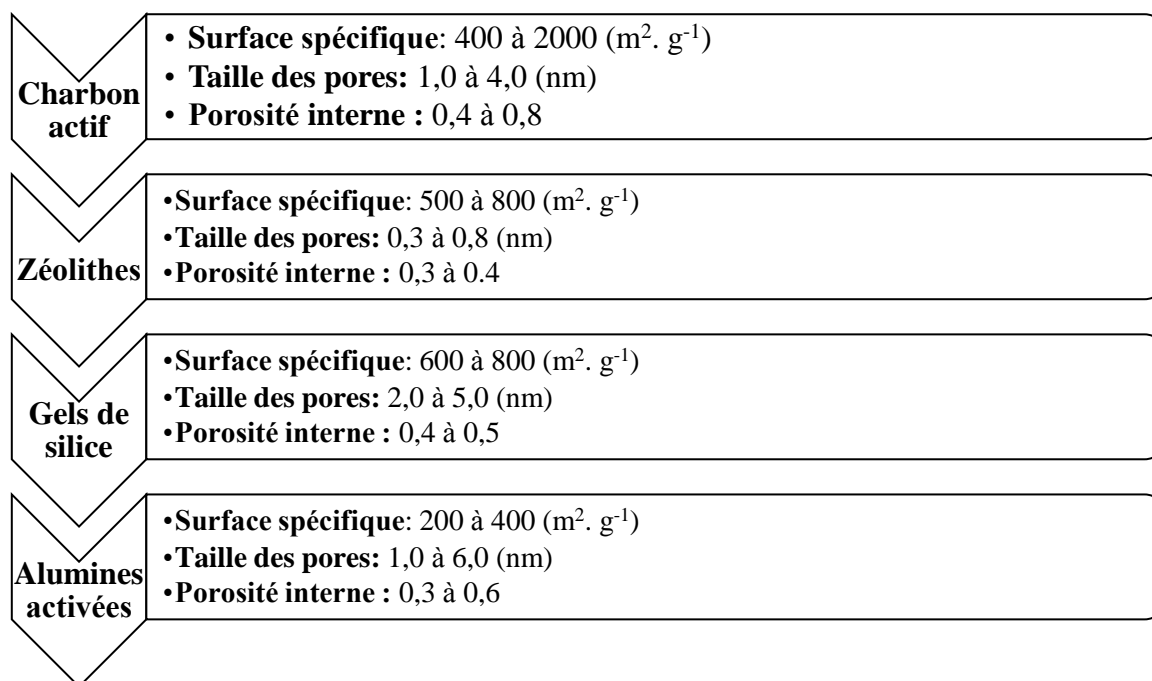


Figure II.1 : Caractéristiques des principaux adsorbants industriels [10].

Parmi les adsorbants cités précédemment, le charbon actif est un excellent adsorbant grâce à sa capacité d'adsorption des molécules organiques et des gaz ainsi que sa grande surface spécifique, d'où son utilisation dans des domaines très variables [18].

II.2. Charbon actif

II.2.1. Historique

L'industrialisation du charbon actif proprement dite commence au début du XX^{ème} siècle pour répondre aux besoins des raffineries de sucre (décolorant).

Aujourd'hui, la production mondiale en charbon actif atteint 420 000 tonnes par an.

Le faible coût des charbons actifs et leur caractère non sélectif leur assurent leur place sur le marché des adsorbants, en dépit de l'apparition récente des nombreux concurrents décrits précédemment et en particulier des zéolithes [19].

II.2.2. Définition

Le charbon actif (CA) est un matériau adsorbant constitué essentiellement de matières carbonées, modifié pour présenter une surface interne étendue [20]. Il est doté d'une porosité très développée qui lui donne la propriété d'adsorber c'est à dire de fixer sur sa surface de nombreuses molécules [21].

Les charbons actifs se caractérisent en général par une grande surface spécifique pouvant aller de 100 à 2000 m² .g⁻¹ d'où leurs grandes capacités d'adsorption avec des volumes poreux très importants [22, 23, 24].

C'est un matériau obtenu par pyrolyse du bois, noix de coco, charbon, lignite ...etc. suivie d'une oxydation à haute température par le dioxyde de carbone (CO₂) ou par la vapeur d'eau (H₂O) [25].

II.2.3. Structure

La structure du charbon actif est proche de celle du graphite, ordonnée sous la forme d'un empilement de couches successives planes d'atomes de carbone disposés en hexagones réguliers [24] , cette forme présente une structure amorphe faite d'unité de structure de base (USB) plus ou moins reliées entre elles [26].

Les charbons actifs se caractérisent par une grande diversité de taille des pores, avec une microstructure poreuse qui est un réservoir potentiel pour adsorber de nombreuses molécules simples ou complexes dans une phase gazeuse ou liquide [27].

La figure suivante présente la structure du charbon actif sous deux formes différentes
a) Modèle de l'USB et b) Microstructure d'un charbon actif.

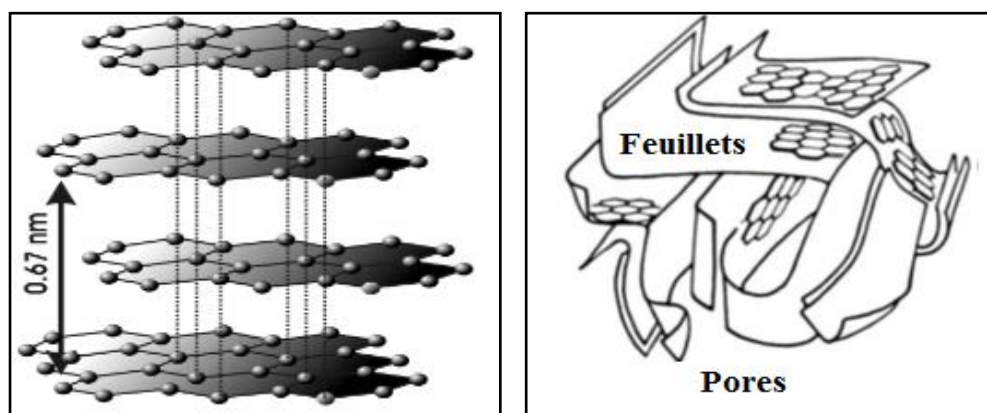


Figure II.2 : a) Modèle de l'USB

b) Microstructure d'un charbon actif [27].

II.2.4. Différents types de charbon actif

II.2.4.1. Charbon actif en grain (CAG)

La forme granulaire du charbon est caractérisée par une taille des particules supérieure à 1 millimètre ($> 1 \text{ mm}$), un faible diamètre des pores, une grande surface interne et une externe relativement faible, il en résulte que les phénomènes de diffusion à l'intérieur des pores prennent une grande importance dans le processus d'adsorption [17].

II.2.4.2. Charbon actif en poudre (CAP)

Le CAP présente une granulométrie inférieure à 100 micromètres ($< 100 \text{ }\mu\text{m}$) avec un diamètre moyen situé entre 15 et 25 μm . Il a une large surface externe et une faible profondeur de diffusion, ce qui engendre une vitesse d'adsorption très rapide [17].

Le charbon actif en poudre (CAP) est généralement préféré car sa capacité et sa vitesse d'adsorption sont généralement plus élevées que pour le charbon actif en granulé [28].

II.2.5. Voies de fabrication du charbon actif

Les déchets solides sont utilisés comme matière première pour la fabrication du CA, tels que : le bois, les noyaux et grignons d'olive, les coques de noix de coco, les noyaux de dattes, la sciure de bois, la paille...etc. [29].

II.2.5.1. Pyrolyse

La pyrolyse est la décomposition thermique d'un matériau organique sous vide et à des températures comprises entre 400°C et 1000°C. Les hétéroatomes (oxygène O, hydrogène H, Azote N et Soufre S) sont éliminés sous l'effet de la chaleur (par volatilisation) et le matériau devient plus riche en atomes de carbone qui se regroupent en feuillets aromatiques possédant une certaine structure planaire [25].

Le but de la pyrolyse est d'obtenir un produit fortement carboné, avec une microporosité rudimentaire qui pourra ensuite être développée dans le processus d'activation [30, 31, 32].

II.2.5.2. Activation

Le but du processus d'activation est d'augmenter le volume poreux et élargir le diamètre des pores créés lors de la carbonisation. L'activation sert aussi à accroître le nombre de sites actifs nécessaires à l'adsorption [31] et supprime les structures carbonées désorganisées [33].

En général, la réaction d'activation est un procédé qui fait intervenir un agent oxydant à une température élevée, de manière à produire un produit poreux de masse inférieure [34].

Il existe deux modes d'activation, l'activation physique et l'activation chimique.

➤ Activation physique

Elle consiste à une oxydation à haute température de 750 à 1000°C du carbonisât par un agent oxydant gazeux [30]. Les gaz principalement utilisés (seuls ou en mélange), dans ce procédé sont l'air, la vapeur d'eau ainsi que le dioxyde de carbone. Le niveau de température joue un rôle important dans le processus d'activation. En effet, à basse température, la distribution de taille de pore est homogène dans tout le volume du matériau, quand la température augmente, ce dernier, perd l'homogénéité de la Porosité [25,35].

➤ Activation chimique

L'activation chimique s'effectue en même temps que la carbonisation sous atmosphère inerte entre 400 et 600°C, après imprégnation du précurseur par un agent activant. Ces agents activant sont en général des acides de Lewis (chlorures de zinc, aluminium, fer, ...), des sels d'acides (acides sulfurique, phosphorique, borique,...) ou des carbonates des métaux alcalins [36, 35, 37].

La taille des pores dans le charbon actif final est déterminée par le degré d'imprégnation. Plus celui-ci est élevé, plus le diamètre des pores est grand [38]. En effet, avec l'acide phosphorique, la microporosité de la fibre du charbon actif sera prédominante, surtout pour de fortes concentrations en agent activant [39].

II.2.6. Propriétés chimiques et structurales des charbons actifs

La structure et la nature chimique d'un charbon actif évoluent au long des processus de carbonisation (calcination) et d'activation.

II.2.6.1. Structure poreuse d'un charbon actif

La structure d'un solide est définie par deux principaux paramètres : la porosité et la surface spécifique qui dépend directement du volume poreux [40].

Selon la définition de l'IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry), les tailles des pores sont divisées en trois groupes [41].

- Macropores (Diamètre $> 500 \text{ \AA}$) permettent au fluide d'accéder à la surface interne du charbon actif,
- Mésopores (Diamètre compris entre 20 \AA et 500 \AA) favorisent le transport de ce fluide,
- Micropores (Diamètre $< 20 \text{ \AA}$), sont les sites de l'adsorption [42, 43].

La figure II.3 donne la représentation schématisée d'un grain poreux

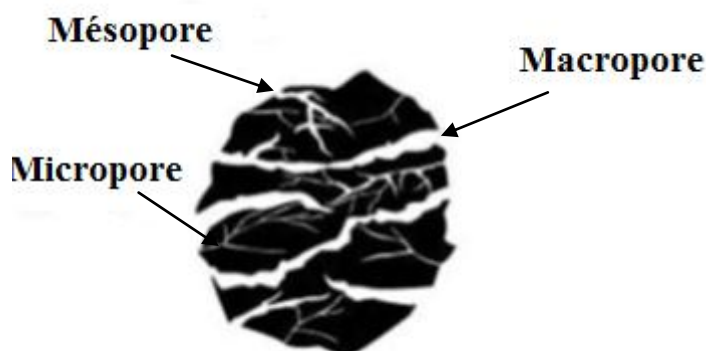


Figure II.3 : Représentation schématisée d'un grain poreux [43].

II.2.6.2 Surface spécifique

La surface spécifique représente la surface totale par unité de masse exprimée en $\text{m}^2.\text{g}^{-1}$, elle est calculée en mesurant la quantité d'un gaz adsorbé à basse température (généralement l'azote à 77 K) et en supposant que la surface est recouverte par une monocouche de molécules.

La surface spécifique dépend directement de la porosité ; plus la microporosité est grande plus la surface spécifique est importante [44].

II.2.7. Applications du charbon actif

Le charbon actif est utilisé dans différents domaines industriels : (industrie chimique, pharmaceutique, agro-alimentaires ...etc.), pour purifier les produits [45].

- ❖ Traitement des eaux potables et résiduaires,
- ❖ Purification de produits industriels : le charbon actif élimine les couleurs et les impuretés de produits bruts (décoloration du sucre de canne ou de betterave),
- ❖ Conditionnement d'air : le charbon actif est employé dans l'équipement d'air conditionné ainsi que pour l'élimination des odeurs d'égouts,
- ❖ Récupération des vapeurs d'essence : les filtres à charbon actif contenus dans certaines voitures, fixent les émissions d'hydrocarbures imbrûlés qui s'échappent des véhicules à l'arrêt,
- ❖ Support bactérien : ces dernières années, l'utilisation du charbon actif s'est élargie au traitement des eaux usées en raison non seulement de ses qualités d'adsorbant mais aussi du rôle épurateur joué par les bactéries qui y sont fixées.

Les études réalisées sur l'utilisation du charbon actif comme support bactéries montrent que :

Les charbons actifs possèdent une texture idéale pour le développement bactérien

Le charbon actif n'a pas un rôle bactérien sélectif, en effet, plusieurs sortes de bactéries peuvent être retenues [46].



CHAPITRE III
Adsorption

III. 1. Définition

Le phénomène d'adsorption est un phénomène de dépôt de molécules en phase fluide (adsorbât) sur une surface solide (adsorbant) [47].

L'adsorption est un phénomène qui consiste en l'accumulation d'une substance à l'interface d'un solide. Une molécule attirée par d'autres molécules de deux phases différentes trouvera une position favorable à la surface de celle qui l'attire le plus qui sera appelée l'adsorbant, les molécules ainsi attirées constituent l'adsorbât.

La fixation des molécules sur les surfaces se fait selon divers processus qui peuvent être physique (physisorption) et/ou chimique (chimisorption) [48].

Les interactions responsables de l'adsorption sont des forces de Van Der Waals et des forces électrostatiques dues à la polarité des surfaces et à la polarisabilité des molécules [49].

Le phénomène d'adsorption des molécules à l'interface d'un solide est représenté sur la figure suivante :

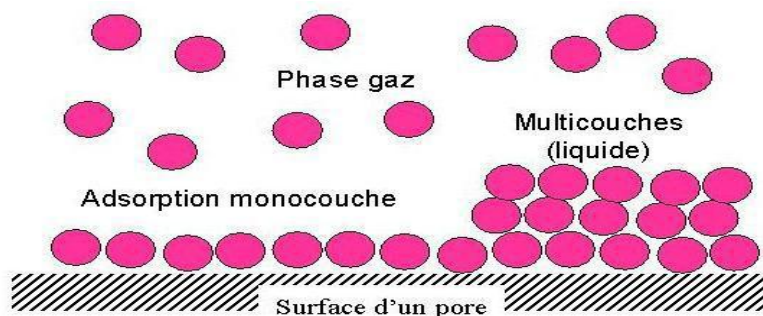


Figure III.1 : Phénomène d'adsorption [49].

III.2. Différents types d'adsorption

III.2.1. Adsorption physique (physisorption)

La physisorption se fait par la fixation des molécules d'adsorbât sur la surface d'adsorbant et qui se fait essentiellement par des liaisons de Van der Waals et des forces dues aux interactions électrostatiques. L'adsorption physique se produit sans modification de la structure moléculaire et elle est parfaitement réversible [50]. La chaleur d'adsorption est souvent inférieure à 20 Kcal.mol^{-1} [51, 52].

III.2.2. Adsorption chimique (chimisorption)

La chimisorption résulte des forces de liaison de nature chimique, nettement supérieures aux forces de Van der Waals avec mise en commun ou transfert d'électrons ; il y a donc des ruptures et des créations de liaisons chimiques à la surface entre le réactif et les sites actifs de l'adsorbant. Le processus est moins réversible et même parfois irréversible [50].

Donc la chimisorption produit une modification des molécules adsorbées [53]. La chaleur d'adsorption (relativement élevée), est comprise entre 20 Kcal.mol⁻¹ et 200 Kcal.mol⁻¹ [51, 52]. La distance entre la surface et la molécule adsorbée est plus courte que dans le cas la physisorption.

III.3. Description du mécanisme d'adsorption

L'adsorption d'un soluté à la surface d'un adsorbant se déroule essentiellement en trois étapes :

1. Diffusion externe de soluté : les molécules de soluté traversent les couches limites d'adsorbant avant d'atteindre leur surface,
2. Diffusion interne dans la structure poreuse du solide : cette étape implique la diffusion de l'adsorbât dans le système poreux de l'adsorbant sous l'effet du gradient de concentration. C'est l'étape la plus lente et qui constitue l'étape limitant de la cinétique d'adsorption,
3. Adsorption proprement dite : elle est très rapide pour le système d'adsorption physique et elle constitue une étape non limitant de la cinétique d'adsorption [54, 55].

III.4. Facteurs influençant l'adsorption

Les principaux paramètres régissant les phénomènes d'adsorption sont :

- **Surface spécifique de l'adsorbant** : elle est définie comme étant la surface par unité de masse exprimée en m². g⁻¹ [56],
- **Nature de l'adsorbant (Polarité)** : En règle générale, les solides de nature polaire, telle que l'alumine et gel de silice, adsorbent préférentiellement des corps polaires, tant que, les solides de nature non polaire, tel que le charbon actif, adsorbent de préférence des substances non polaires [50],

➤ **Masse de l'adsorbant**

La capacité d'adsorption est d'autant plus grande que la masse de l'adsorbant dans la solution est importante ; du fait du coût élevé des adsorbants, le choix d'un rapport liquide –solide optimal est recommandé [57],

➤ **pH** : l'adsorption est maximale au point isoélectrique [56],

➤ **Température** : l'adsorption étant exothermique, les résultats sont meilleurs à des faibles températures [50],

En pratique, il n'y a pas de modification significative dans l'intervalle de 5°C à 20°C [54].

➤ **Caractéristiques hydrodynamiques de l'échange**

La vitesse relative dans le cas de l'adsorption entre les deux phases, le temps de contact et le débit du fluide influent d'une manière considérable sur le phénomène d'adsorption quand elle se fait en continue [50],

➤ **Solubilité** : les composés les moins solubles sont adsorbés plus facilement sur charbon actif [58].

III.5. Applications de l'adsorption

Elle est appliquée dans plusieurs domaines :

- Méthode de séparation et élimination,
- Déshumidification de l'air ou d'autre gaz,
- Élimination des odeurs ou d'impuretés sur des gaz,
- Décoloration des produits pétroliers et des solutions aqueuses de sucre, Fractionnement des mélanges d'hydrocarbures d'adsorption [17].

III.6. Cinétique d'adsorption

Il est nécessaire de bien connaître les cinétiques d'adsorption quand on cherche à avoir des prévisions quantitativement correctes des performances des procédés.

La maîtrise des cinétiques d'adsorption devient de plus en plus importante avec l'utilisation des cycles de plus en plus rapides des procédés industriels d'adsorption [59].

On peut calculer la quantité adsorbée à l'aide de l'équation suivante :

$$q = \frac{(C_0 - C_e) \cdot V}{m} \dots \dots \dots (1)$$

Sachant que :

C_0 : Concentration initiale de l'adsorbât en (mg. L⁻¹),

C_e : Concentration résiduelle d l'adsorbât (mg. L⁻¹),

V : Volume de la solution (L),

m : Masse de l'adsorbant (g) [1, 60].

Plusieurs modèles ont été largement utilisés pour décrire la cinétique d'adsorption :

III.6.1. Modèle cinétique du pseudo-premier ordre (Lagergen)

Selon ce modèle, la cinétique d'adsorption peut être exprimée par l'équation suivante :

$$\frac{dq}{dt} = K_1(q_e - q_t)^\alpha \dots \dots \dots (2)$$

Avec :

α : Ordre de la réaction,

q_e : Quantité d'adsorbât adsorbée à l'équilibre par gramme d'adsorbant (mg. g⁻¹),

q_t : Quantité d'adsorbât adsorbée par gramme d'adsorbant (mg. g⁻¹) au cours du temps,

K_1 : Constante de la vitesse d'adsorption du premier ordre (min⁻¹).

La forme linéarisée de cette équation est donnée comme suit :

$$\ln(q_e - q_t) = -K_1 t + \ln q_e \dots \dots (3)$$

On peut définir le temps de demi-réaction comme le temps nécessaire au bout duquel la moitié de la concentration du soluté est adsorbée.

Donc :

$$t_{1/2} = \frac{0.693}{K_1} \dots \dots \dots (4)$$

$t_{1/2}$: Temps de demi-réaction,

k_1 : Constante de vitesse de la réaction d'adsorption de pseudo-ordre 1. [1,60]

III.6.2. Modèle cinétique du pseudo-second ordre (Lagergen)

Ce modèle est décrit par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dq}{dt} = K_2(q_e - q_t)^2 \dots \dots \dots (5)$$

Après intégration, la forme linéarisée de cette équation est donnée ci-dessous :

$$\frac{t}{q} = \frac{1}{q_e^2 \cdot K_2} + \frac{1}{q_e} t \dots \dots \dots (6)$$

La vitesse initiale d'adsorption h est donné par l'équation :

$$h = K_2 q_e^2 \dots \dots \dots (7)$$

K_2 : Constante de la vitesse de réaction d'ordre 2 ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$) [1, 60].

III.6.3. Modèle cinétique d'Elovich

Le modèle d'Elovich est l'un des modèles les plus utilisés pour vérifier puis décrire la chimisorption lors d'une adsorption et pour simplifier l'équation d'Elovich il a été supposé que $(\alpha\beta t) \gg 1$.

Il est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{dq_t}{dt} = \alpha \exp(-\beta q_t) \dots \dots \dots (8)$$

Où :

q_t : Quantité adsorbée à l'instant t ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$),

α : Taux d'adsorption initiale ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$),

β : Constante reliée à la surface externe et à l'énergie d'activation de la chimisorption ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$).

Après intégration, on obtient :

$$q_t = \frac{1}{a} \ln (\alpha\beta) + \frac{1}{a} \ln t \dots \dots \dots (9)$$

Qui est de la forme :

$$q_t = a + b \ln t \dots \dots \dots (10)$$

Où :

a et **b** : Constantes de l'équation de cinétique d'Elovich [1, 60].

On trace alors : $q_t = f(\ln t)$.

III.6.4. Modèle de la diffusion intra-particulaire

Généralement la diffusion intra-particulaire se fait en trois étapes à cause de la porosité des charbons :

1. Transfert de la molécule adsorbée du sein de la solution à la surface externe de l'adsorbant (diffusion externe),
2. Pénétration de la molécule adsorbée à l'intérieur des pores de l'adsorbant (diffusion intra-particulaire, dans les pores),
3. Adsorption de la molécule sur la surface interne des pores [61].

Pour comprendre le mécanisme d'adsorption de l'ibuprofène, on utilise l'équation de Weber et Morris [62].

$$q_t = K_{id} t^{1/2} + C \dots \dots \dots (11)$$

Où :

q_t : Quantité adsorbée au temps t (mg. g^{-1}),

C : Intersection de la droite avec l'axe des ordonnées, la valeur de **C** donne une idée sur l'épaisseur de la couche limite, car plus la valeur de l'ordonnée à l'origine est grande et plus l'effet de la couche limite est important [63, 64].

K_{id} : Constante de la diffusion intra-particulaire (mg. $g^{-1} \cdot \text{min}^{1/2}$).

Si on trace q_t en fonction de $t^{1/2}$, on peut déterminer la constante k_{id} et l'épaisseur de la couche limite **C**.

III.6.5. Modèle de la fonction puissance

Le modèle de la fonction puissance peut aussi décrire l'influence du temps sur l'adsorption de l'ibuprofène sur le CAP. L'équation qui définit ce modèle est la suivante :

$$q_t = a t^b \dots\dots\dots(12)$$

Où :

q_t : Quantité adsorbée à l'instant t (mg. g⁻¹),

a et **b** : Constantes de la fonction puissance [65].

Soit :

$$\ln q_t = \ln a + b \ln t \dots\dots\dots(13)$$

On trace alors : $\ln q_t = f(\ln t)$



CHAPITRE IV
Partie expérimentale

L'objectif principal de notre travail est d'étudier la cinétique de l'adsorption de la molécule (l'ibuprofène) sur charbon actif en poudre (F400) et d'effectuer des analyses par chromatographique liquide à haute performance (HPLC).

Dans ce chapitre, nous avons décrit le matériel utilisé ainsi que les méthodes suivies lors des procédés expérimentaux.

IV.1. Produits et matériels

- Ibuprofène standard pur (Sigma Aldrich),
- Charbon actif en poudre F 400 (Chemviron),
- Méthanol, grade HPLC, à 99,9 % de pureté (Sigma Aldrich),
- Eau distillée,
- Verrerie courante de laboratoire,
- Barreaux magnétiques,
- Agitateurs magnétiques (OVAN),
- Balance (OHAUS),
- Micro-seringue en verre (Hamilton),
- Micro filtres en acétate de cellulose (0.45 μ m),
- HPLC (Shimadzu Model: LC20A System, détecteur: SPD-20A, Colonne Shim-pack VP-ODS, L=150 mm, di= 4.6 mm).

IV.2. Protocole expérimental

IV.2.1. Préparation des solutions étalons

Nous avons préparé une solution mère de concentration 1 g. L⁻¹ de l'ibuprofène obtenues par dilution directe d'une masse de 100 mg du standard pur du médicament dans 100 ml de méthanol grade HPLC ; nous avons préparé aussi, des solutions filles a des concentrations allant de 0,5 mg. L⁻¹ jusqu'à 50 mg. L⁻¹.

Celles-ci sont, par la suite, analysées par la méthode d'analyse utilisée (HPLC). Nous établissons ainsi une courbe d'étalonnage de l'ibuprofène représentant l'absorbance en fonction de la concentration initiale.

IV.2.2. Préparation du charbon actif

Le charbon actif utilisé (CAP) se présente sous forme d'une poudre de granulométrie inférieure ou égale à 50 μm . Avant chaque utilisation, le charbon subit une déshydratation dans l'étuve à 110°C pendant 24 heures.

IV.2.3. Processus d'adsorption

L'étude de l'adsorption de la molécule de l'ibuprofène sur le charbon actif en poudre a été réalisée en réacteur discontinu (batch), on mélange environ de 0.4 g de charbon actif en poudre avec 100 ml des solutions diluées dans des flacons de 250 ml fermés avec du parafilm. Ces derniers sont placés sous agitation de 200 tours par minute à différentes températures choisies.

IV.2.4. Cinétique d'adsorption

Pour déterminer le temps d'équilibre (t_{eq}) qui correspond à une adsorption maximale de solution d'une concentration initiale égale à 10 mg. l^{-1} en ibuprofène, 100 ml des solutions préparées ont été transvasées dans des flacons de 250 ml fermés avec du parafilm et contenant 4 mg de CAP. Ces derniers sont soumis à une agitation continue par un agitateur magnétique à une vitesse constante de 200 tr. min^{-1} pendant un temps largement suffisant afin d'atteindre l'équilibre, après une durée d'agitation variable, les solutions sont filtrées sur des micro-filtres en acétate de cellulose (0.45 μm), les filtrats sont récupérés dans des tubes pour être ensuite analysés par HPLC.

Cette figure représente la cinétique d'adsorption de l'IBU sur CAP.

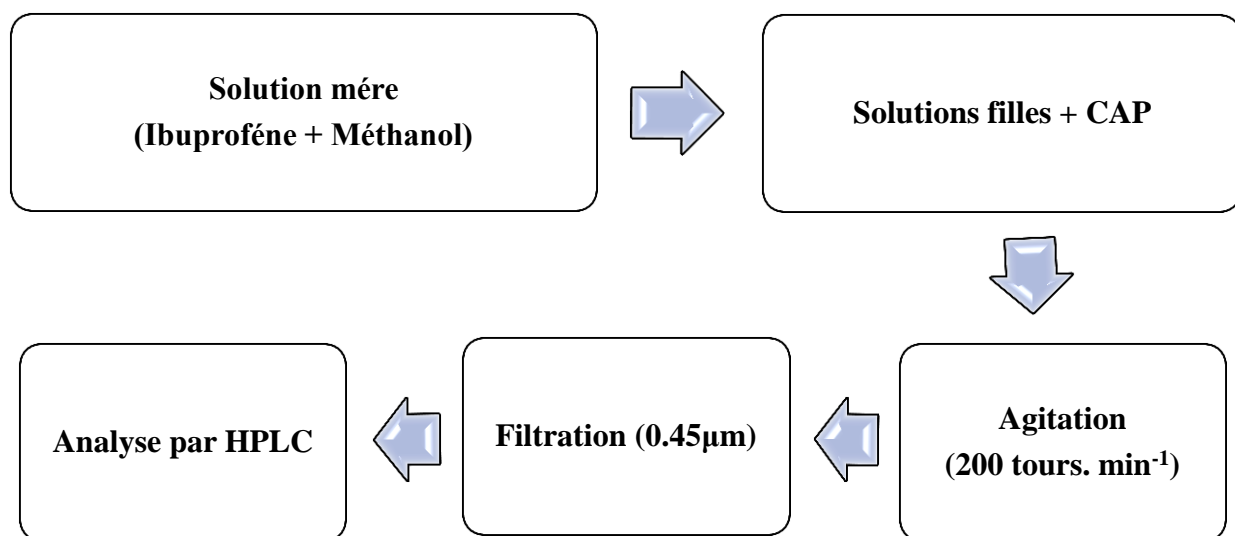


Figure VI.1 : Différentes étapes de la cinétique d'adsorption en réacteur discontinu.

IV.3. Méthodes d'analyse

La méthode analytique la plus utilisée est la Chromatographie Liquide à Haute Performance (HPLC).

La HPLC est une technique d'analyse physico-chimique qui sépare les constituants d'un mélange par entraînement au moyen d'une phase mobile liquide le long d'une phase stationnaire solide ou liquide fixé, grâce à la répartition sélective des solutés entre ces deux phases. Chaque soluté est donc soumis à une force de rétention exercée par la phase stationnaire et une force de mobilité due à la phase mobile [66].

Pour évaluer la concentration résiduelle du l'ibuprofène, nous avons mis au point les conditions opératoire pour le dosage de ce médicament par (HPLC).

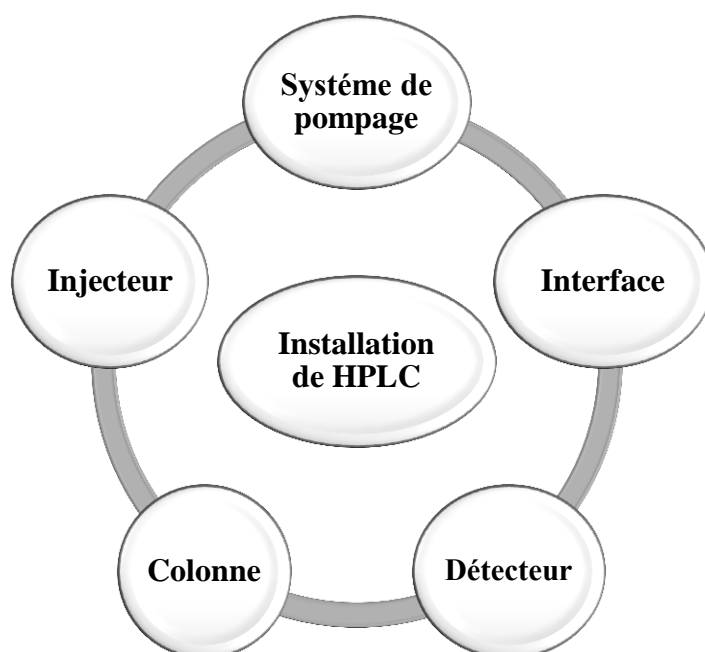


Figure IV.2 : Installation de l'appareil de HPLC.

Une installation de HPLC comporte divers compartiments spécialisés, qui se présentent soit dans des différents boîtiers, soit intégrés dans un même châssis.

Cette installation comprend les éléments suivants :

- Un système de pompage (simple ou multiple) pour déplacer la phase mobile à haute pression (plusieurs dizaines de bars),
- Un injecteur (manuel ou automatique) pour introduire les échantillons solubilisés dans un solvant adéquat et exempt de particules en suspension, dans le système à haute pression,

- Une colonne contenant la phase stationnaire polaire (phase normale) ou apolaire (phase inverse),
- Un détecteur (universel ou sélectif),
- Une interface permettant de visualiser les signaux enregistrés par détecteur.

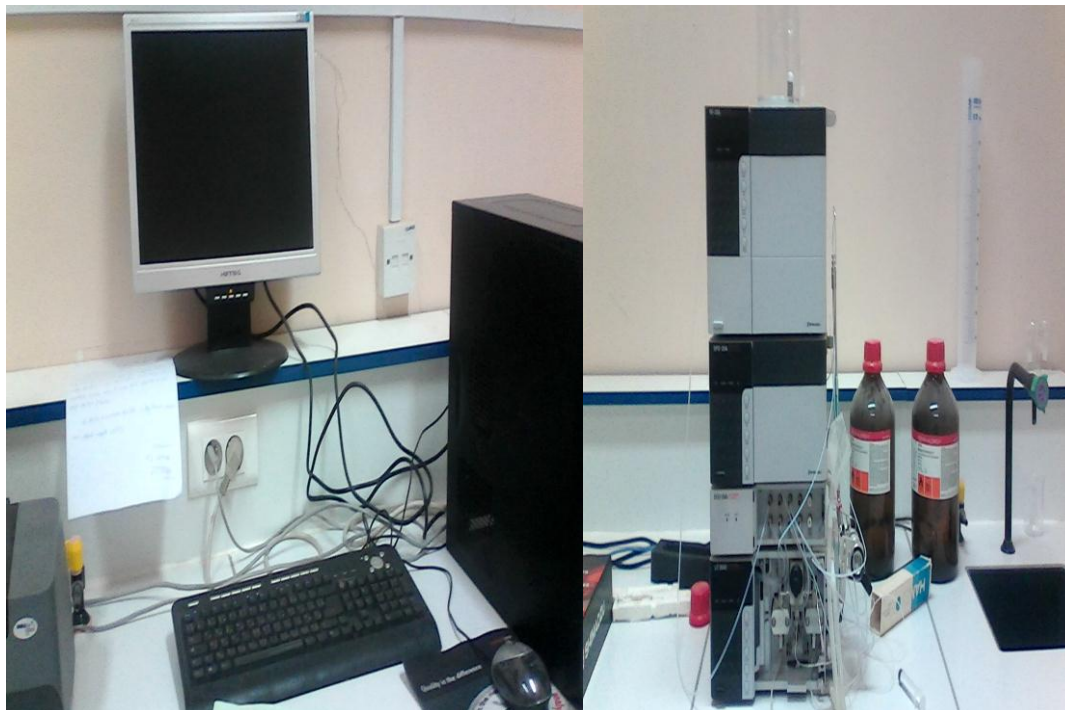


Figure IV.3 : Installation de HPLC.

La détection s'opère dans le domaine de l'UV, la quantification et la qualification de la molécule ont été réalisées à une longueur d'onde correspondant au maximum d'absorption dans ce domaine qui est égale à 220 nm.

Le spectre UV relatif de molécule (ibuprofène) est représenté par la figure ci-dessous :

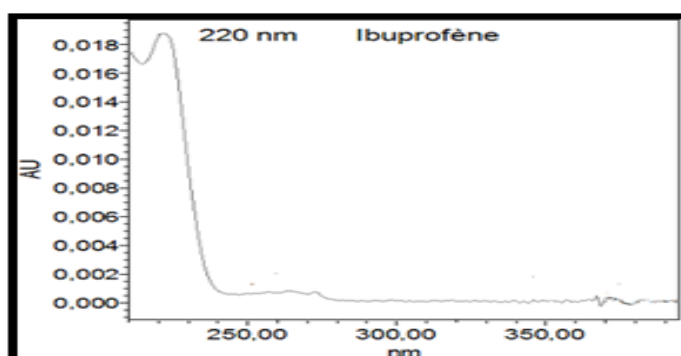


Figure IV.4 : Spectre UV relatif au pic ibuprofène [11].

IV.4. Résultats et discussions

IV.4.1. Etablissement de la courbe d'étalonnage

Dans le but de déterminer le domaine de linéarité et tracer des courbes d'étalonnage qui obéissent à la loi de Beer –Lambert, nous avons préparé plusieurs solutions étalons de concentrations différentes variant de 0.5 mg. L⁻¹ à 50 mg. L⁻¹.

La courbe d'étalonnage représentant la surface du pic en fonction de la concentration initiale en l'ibuprofène $S = f(C_0)$, les résultats obtenus sont représentés sur la figure IV.5

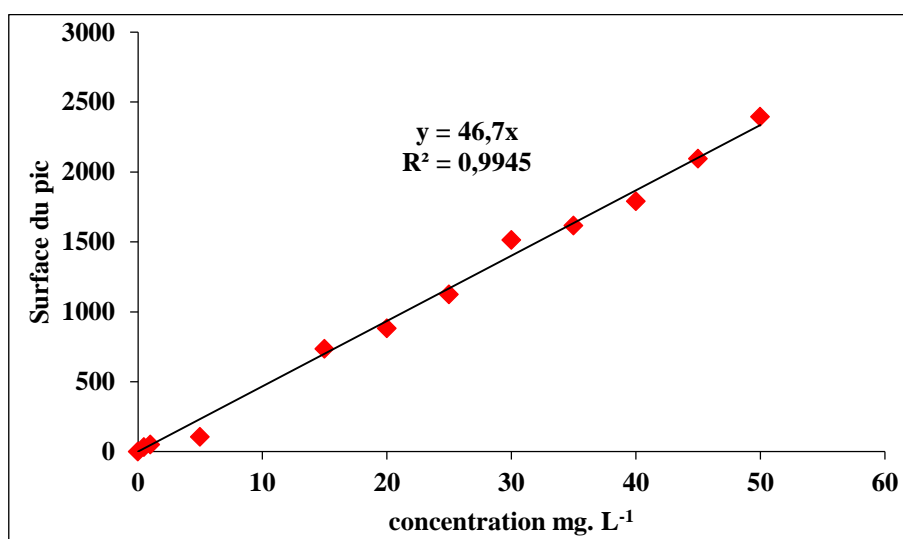


Figure IV.5 : Représentation graphique de la courbe d'étalonnage de l'ibuprofène ($\lambda=220$ nm) à $20 \pm 2^\circ\text{C}$.

D'après la figure IV.5, la courbe d'étalonnage de cette molécule présente une bonne corrélation à la longueur d'onde caractéristique avec un coefficient de corrélation égale à $R^2 = 0,9945$ donc on peut conclure que le domaine de travail choisi satisfait les limites relatives à la loi de Beer-Lambert.

Le tableau suivant représente les caractéristiques de régression linéaire.

Tableau IV.1 : Caractéristique de régression linéaire de ce médicament.

Composé	Equation de la droite	Coefficient de corrélation (R^2)
Ibuprofène	$y = 46,7x$	0,9945

IV.4.2. Cinétique d'adsorption

Les cinétiques décrivent les vitesses de réactions qui permettent de déterminer le temps de contact mis pour atteindre l'équilibre d'adsorption, cet équilibre est aussi étroitement lié à la concentration initiale de l'adsorbât et le temps de contact.

Pour avoir les cinétiques d'adsorption, nous avons tracé la quantité adsorbée (q) en fonction du temps d'agitation (t) :

$$q = (C_0 - C_e) * \frac{V}{m} \dots \dots \dots (1)$$

Tel que :

C_0 : Concentration initiale de l'adsorbât en (mg. L^{-1}),

C_e : Concentration résiduelle de l'adsorbât en (mg. L^{-1}).

Nous avons suivi la cinétique d'adsorption de l'ibuprofène dans les conditions opératoires suivantes :

- ✓ Masse de CAP F400 = 4 mg,
- ✓ Vitesse d'agitation = 200 tr. min^{-1} ,
- ✓ Volume de l'adsorbat = 100 ml,
- ✓ Température variant de 25°C° à 40°C°.

Les doses optimales d'adsorbant correspondent alors au rendement d'élimination le plus élevé, ce dernier définit comme suit :

$$R(\%) = \frac{C_0 - C_e}{C_0} * 100 \dots \dots \dots (2)$$

Où :

C_0 : Concentration initiale de la solution de l'ibuprofène (mg. L^{-1}),

C_e : Concentration résiduelle de l'ibuprofène (mg. L^{-1}).

➤ Pour une température de 25°C

La cinétique d'adsorption ainsi que le rendement d'élimination de l'ibuprofène sur le charbon actif à une température de 25°C° sont représentés sur la figure IV.6 :

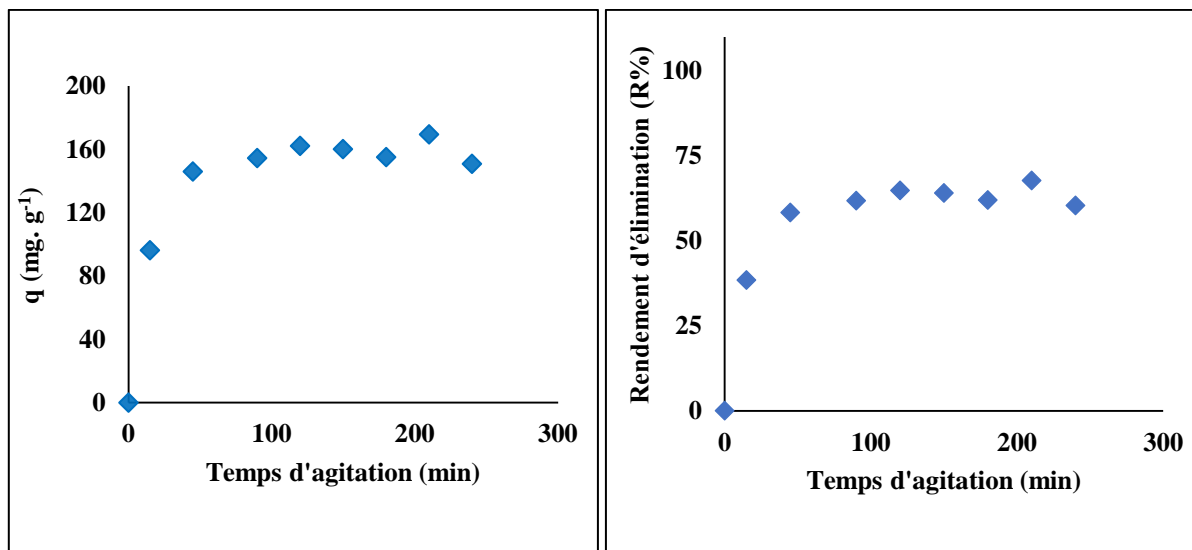


Figure IV.6 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 25°C ($C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min⁻¹).

La figure IV.6 montre qu'il y a une forte augmentation de l'adsorption pour les premières minutes de contact environ 96 mg. g⁻¹ au bout de 15 minutes correspondant à un rendement d'élimination égal à 38%, cette quantité augmente jusqu'à atteindre une valeur de 162 mg. g⁻¹ après 120 minutes de contact et reste constante indiquant un état d'équilibre avec un taux d'élimination de l'ordre de 64%.

➤ *Pour une température de 30°C*

La figure ci-dessous représente la cinétique d'adsorption et le pourcentage d'élimination de l'ibuprofène sur le charbon actif à $T = 30^\circ\text{C}$.

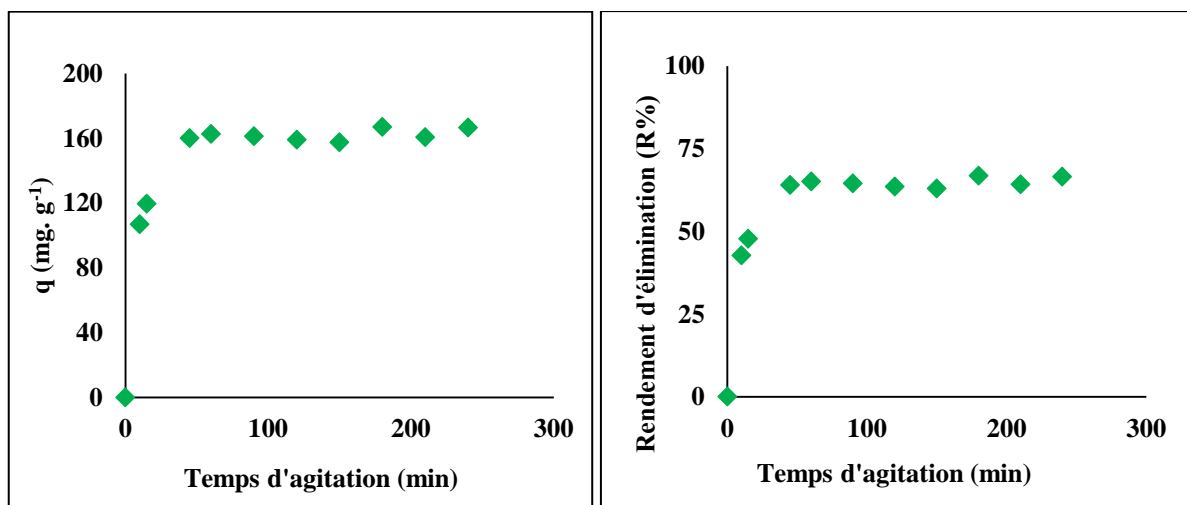


Figure IV.7 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 30 °C ($C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min⁻¹).

Pour une température de 30°C, la quantité d'ibuprofène adsorbée sur le CAP pour les 10 premières minutes est environ 106 mg. g⁻¹ avec un rendement de 42%, après 60 minutes de contact, ce qui représente le temps d'équilibre, le rendement est égal à 65% et la quantité adsorbée est de l'ordre de 162 mg. g⁻¹.

➤ *Pour une température de 40°C*

Les résultats obtenus à T = 40°C sont représentés sur la figure suivante :

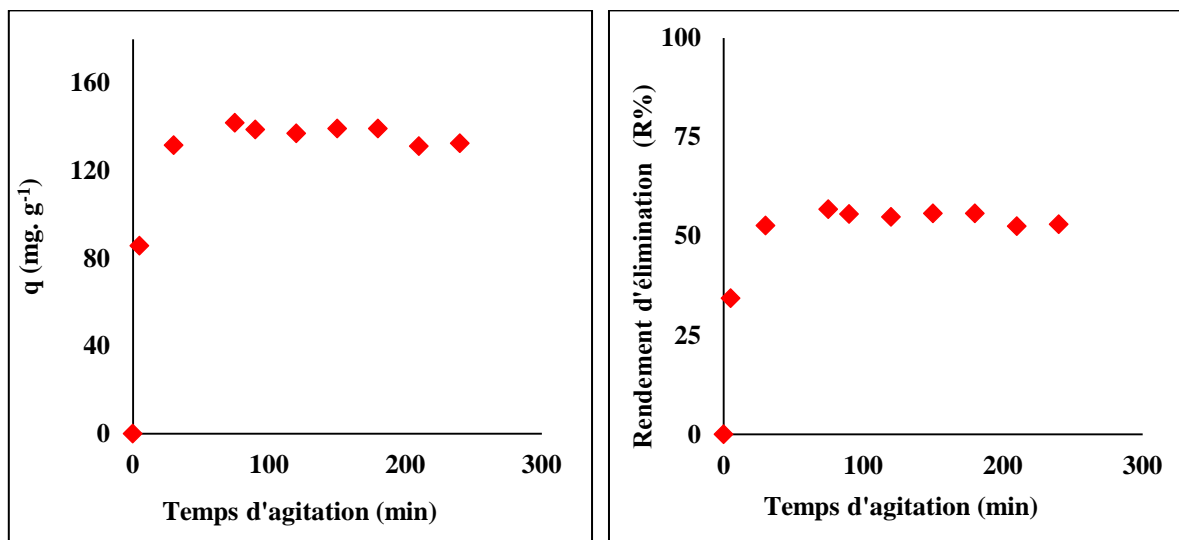


Figure IV.8 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à 40 °C ($C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min⁻¹).

La cinétique d'adsorption de l'ibuprofène sur le CAP à 40°C, montre que la quantité adsorbée augmente de 85 mg. g⁻¹ (R = 34%) au début de l'expérience à 138 mg. g⁻¹ (R = 55%) au temps d'équilibre estimé par 90 minutes.

Les résultats obtenus précédemment pour la cinétique d'adsorption et le rendement d'élimination de l'ibuprofène sur CAP à différentes températures sont récapitulés sur la figure suivante :

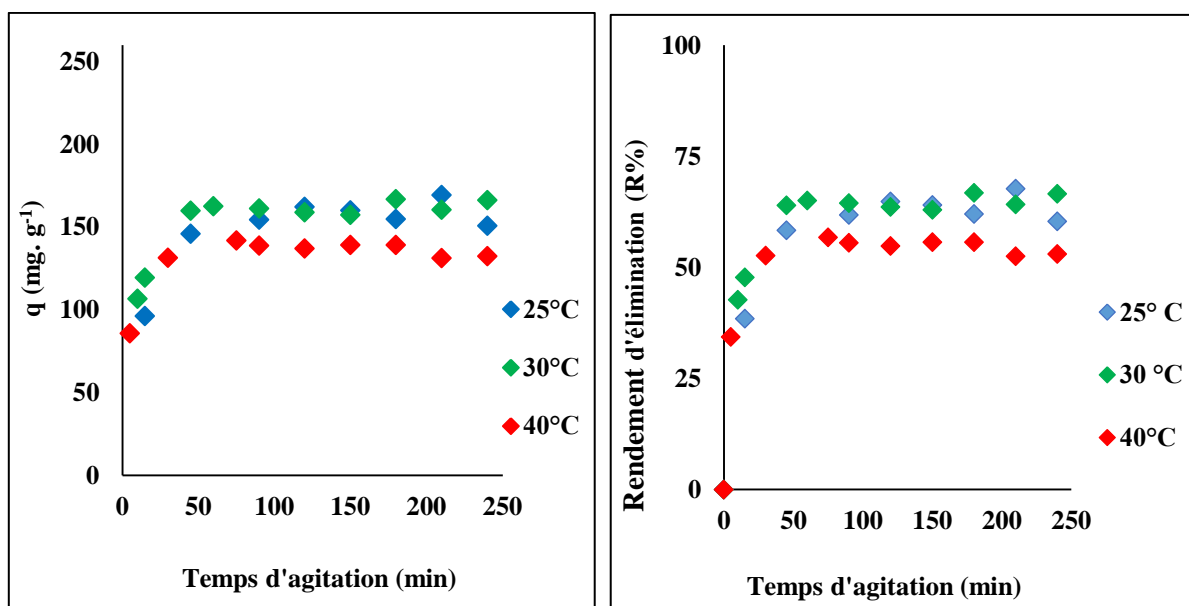


Figure IV.9 : Représentation graphique de la cinétique d'adsorption et rendement d'élimination de l'IBU sur CAP à différentes températures ($C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1}).

D'après les résultats représentés sur les figures, on peut constater que la courbe de cinétique peut se diviser en deux étapes distinctes :

La première étape est rapide et correspond au transfert de masse externe tandis que la seconde est lente et est liée au phénomène de diffusion (transfert de masse interne).

L'adsorption rapide pendant les premières minutes de la réaction, peut être interprétée par le fait qu'en début d'adsorption, le nombre des sites actifs disponibles à la surface de l'adsorbant, sont beaucoup plus importants que celui des sites restant après un certain temps.

La fixation rapide de l'ibuprofène sur le CAP s'explique par la grande affinité de ce dernier à l'adsorption de ce médicament, ainsi qu'au nombre de site d'adsorption disponible sur le CAP.

La quantité adsorbée de ce médicament sur CAP augmente avec le temps de contact jusqu'à l'obtention d'un palier.

D'après la figure IV.10, on remarque que la capacité d'adsorption de l'ibuprofène sur le CAP est d'environ 64% à 25°C et 63% à 30°C, donc, on peut dire que l'influence de la température est négligeable pour cet intervalle de température.

Par contre, pour une température de 40°C, on remarque l'influence de cette dernière sur la capacité d'adsorption de l'ibuprofène sur CAP qui est de l'ordre de 54%. Ces résultats

suggèrent que l'adsorption par le CAP représente un processus exothermique, c'est-à-dire, plus la température augmente, plus la capacité d'adsorption diminue [67].

IV.4.3. Modèles cinétiques

Plusieurs modèles de cinétique ont été utilisés afin d'interpréter les données expérimentales et donner des informations essentielles pour l'utilisation du charbon actif dans le domaine d'adsorption.

Nous avons adopté cinq modèles de cinétique : pseudo premier ordre (PPO), pseudo second ordre (PSO), Elovich, la diffusion intra-particulaire et la fonction puissance.

IV.4.3.1. Pseudo ordre 1

On trace $\ln(q_e - q_t) = f(t)$, on obtient une droite d'une pente k_1 et q_e comme ordonné à l'origine.

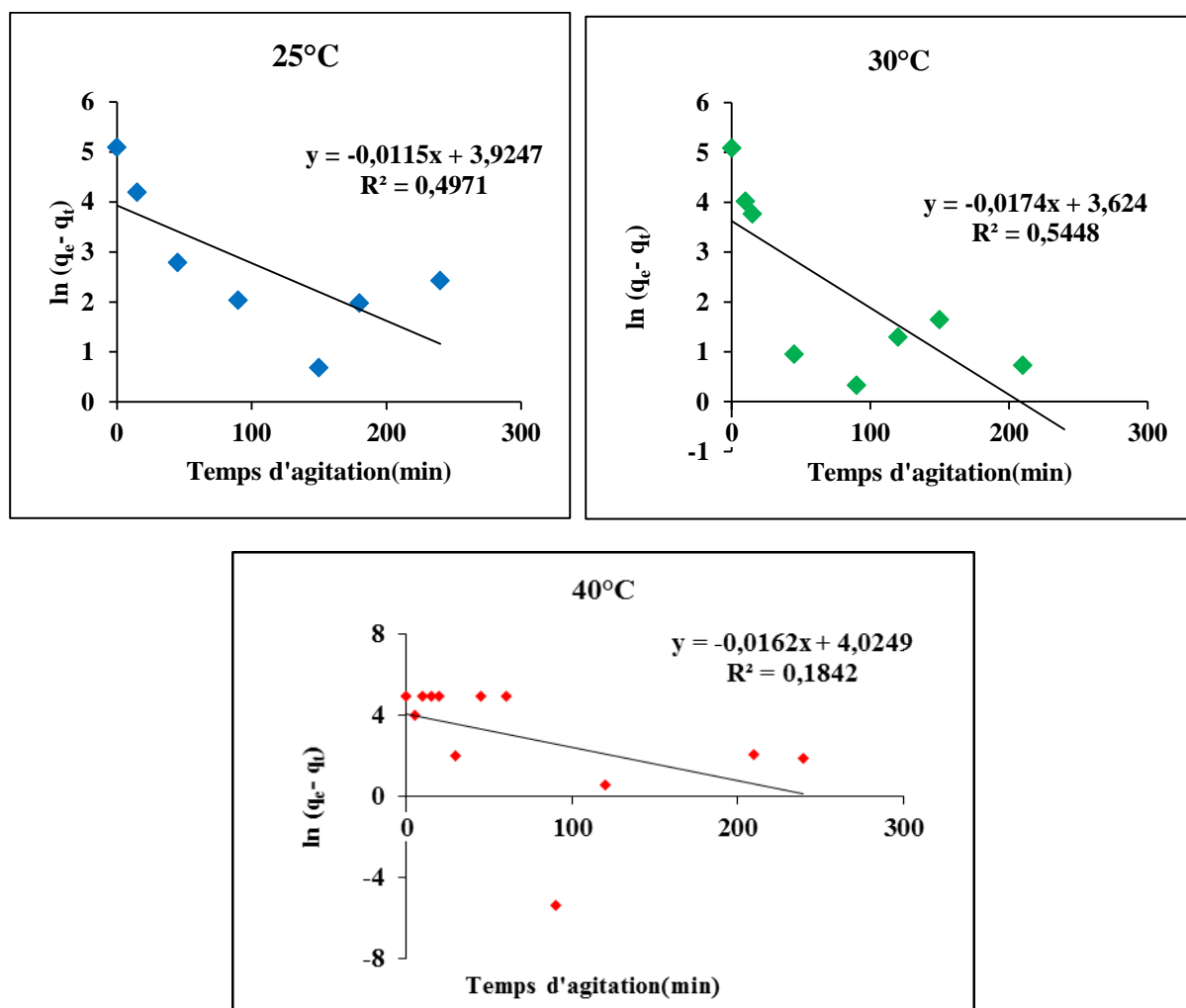


Figure IV.10 : Représentation graphique de pseudo-premier ordre de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, $200 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$, ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).

A partir des courbes de pseudo-premier ordre obtenues, nous pouvons calculer les paramètres cinétiques de ce modèle ; ce dernier permet de décrire les phénomènes ayant lieu lors des premières minutes du processus d'adsorption.

Les résultats trouvés montrent que la régression dans tous les cas est faible ($R^2 < 0,55$) et par conséquent, ce modèle n'est pas vérifié [68].

IV.4.3.2. Second ordre

Les droites données par (t / q_t) en fonction du temps sont représentées ci-dessous :

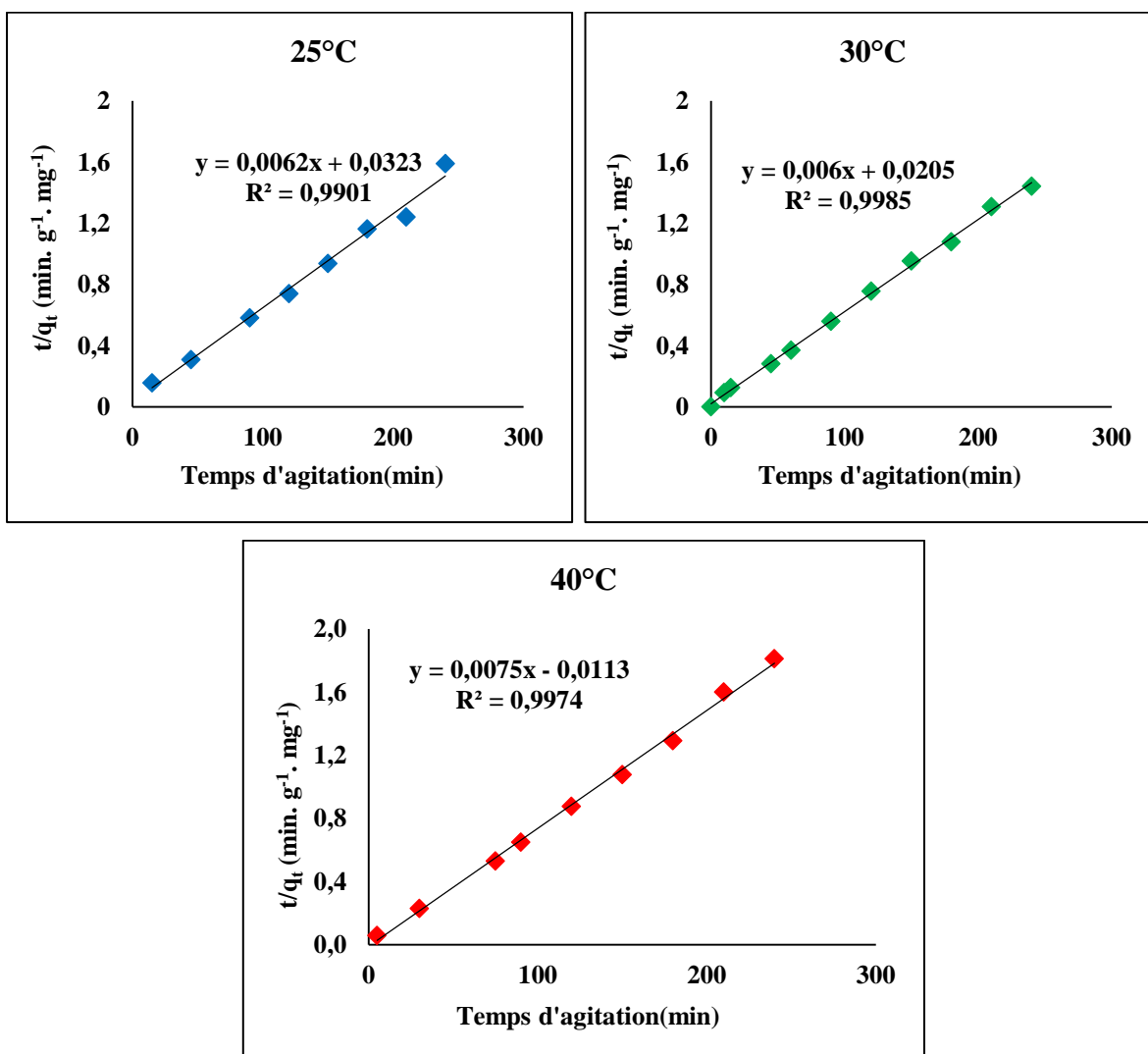


Figure IV.11 : Représentation graphique de pseudo-second ordre de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).

Contrairement au modèle de pseudo premier ordre, ce modèle est applicable à un intervalle de temps plus large (généralement l'ensemble du processus d'adsorption) [68].

D'après les résultats obtenus, il apparaît clairement que les facteurs de corrélations sont proches de l'unité ($R^2 > 0,99$) pour les différentes températures étudiées, donc on peut conclure l'adsorption de l'ibuprofène sur CAP suit une cinétique du pseudo-second ordre [69]

Les paramètres de la modélisation de pseudo-premier ordre et pseudo-second ordre, sont récapitulés dans le tableau IV.2. Nous avons donné les différentes constantes des deux modèles d'adsorption à savoir les constantes de vitesse, les quantités adsorbées théoriques, expérimentales et les coefficients de corrélation R^2 .

Tableau IV.2: Valeurs des constantes et des coefficients de corrélation des cinétiques d'adsorption.

Modèle	Température (°C)	25	30	40
		T_{eq} (min)	120	60
Pseudo premier ordre	K_1 (min^{-1})	0,0115	0,0174	0,0162
	$q_{e \text{ exp}}$ ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)	162,15	162,57	138,79
	$q_{e \text{ calc}}$ ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)	50,63	37,33	55,79
	$t_{1/2}$ (min)	60	39	42
	R^2	0,497	0,544	0,184
Pseudo second ordre	K_2 ($\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$)	0,0010	0,0017	0,0049
	$q_{e \text{ exp}}$ ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)	162,15	162,57	138,79
	$q_{e \text{ calc}}$ ($\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$)	161,29	166,66	133,33
	R^2	0,99	0,998	0,997
	h	26,01	47,21	87,10

L'adsorption de l'ibuprofène a été estimée rapide pour la période initiale de contact, ensuite, elle a tendance à se dérouler à un rythme plus lent avant d'atteindre l'équilibre après une durée entre 60 et 90 minutes à température comprise entre 30°C et 40°C contact.

A 25°C, le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre était plus long (~ 120 min). Ceci peut être expliqué par le fait que l'augmentation de la température augmente la vitesse de diffusion de l'adsorbant à travers la couche limite externe, vers les pores internes des particules de l'adsorbant [70].

Comme il est montré sur le tableau au-dessus, nous remarquons que le modèle pseudo-second ordre décrit mieux les résultats de l'adsorption de l'ibuprofène sur CAP,

Les valeurs du coefficient de corrélation R^2 pour le modèle du second ordre étaient plus proches à l'unité ($0,990 \leq R^2 \leq 0,998$) que celles du modèle du premier-ordre pour toutes les températures [71].

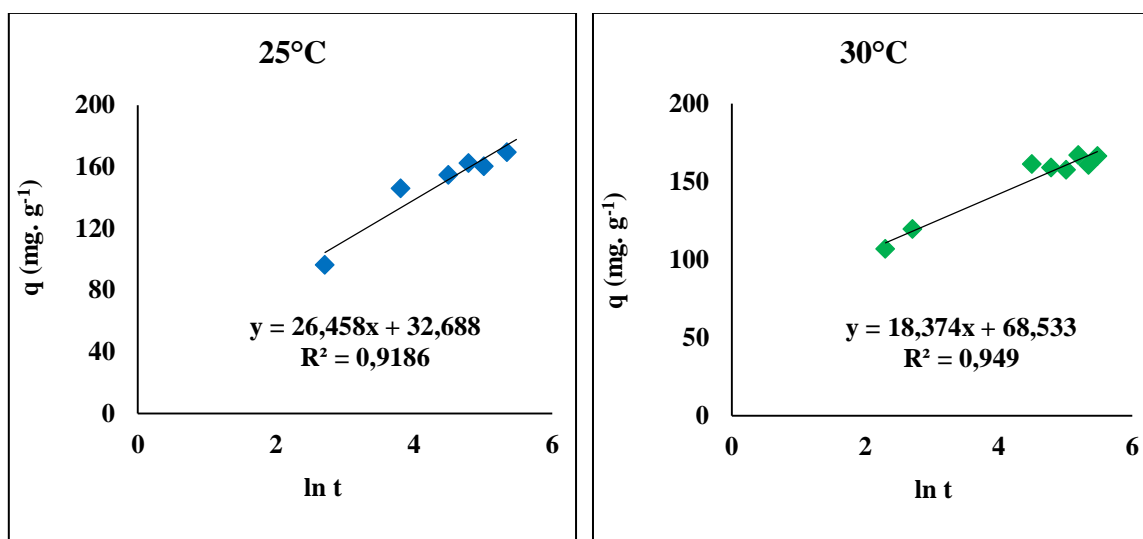
On remarque aussi que les valeurs des capacités maximales d'adsorption à l'équilibre déterminées théoriquement sont proches à celles mesurées expérimentalement dans le cas du pseudo-second ordre et ceci est pour les trois températures étudiées [72].

Donc on peut conclure que les cinétiques d'adsorption sont bien ajustées par le pseudo-second ordre ceci est confirmé par les résultats obtenus précédemment [73].

L'augmentation de la température peut entraîner l'augmentation de la vitesse de la diffusion des molécules d'adsorbât à travers la couche limite externe et à l'intérieur des particules d'adsorbant, à cause de la diminution de la viscosité de la solution [74].

IV.4.3.3. Modèle d'Elovich

Pour appliquer ce modèle, nous avons tracé $q_t = f(\ln t)$, les figures suivantes résument les résultats obtenus :



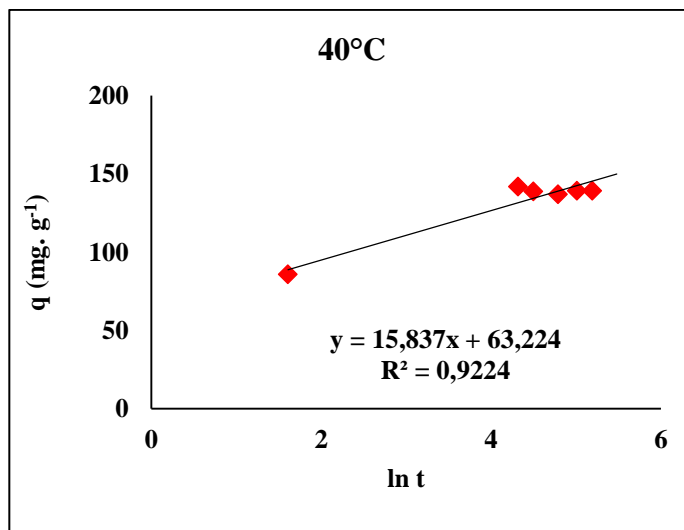


Figure IV.12 : Représentation graphique d'Elovich de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr. min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).

D'après la figure IV.12, on remarque que les valeurs des coefficients de la régression linéaire R^2 pour le modèle cinétique d'Elovich sont élevées ($0,91 < R^2 < 0,94$), ceci confirme que ce modèle est adéquat pour linéariser la cinétique d'adsorption de l'ibuprofène sur le CAP.

IV.4.3.4. Modèle de diffusion intra-particulaire

Si la diffusion intra-particulaire est impliquée dans le processus d'adsorption, en portant la quantité adsorbée en fonction de la racine carrée du temps, nous devons obtenir une droite.

Pour déterminer la constante k_{id} et l'épaisseur de la couche limite C , nous avons tracé q_t en fonction de $t^{1/2}$.

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure ci-dessous :

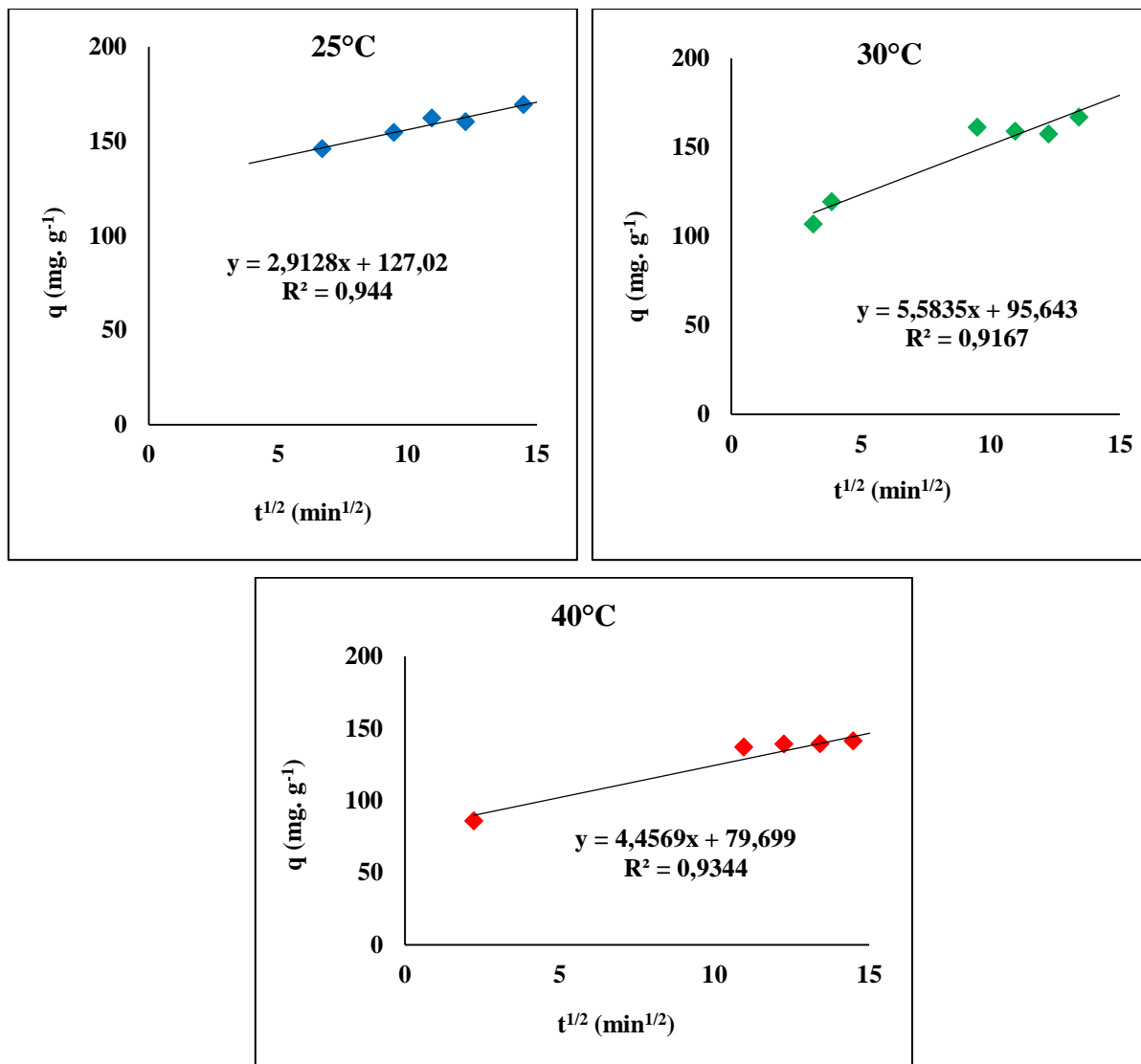
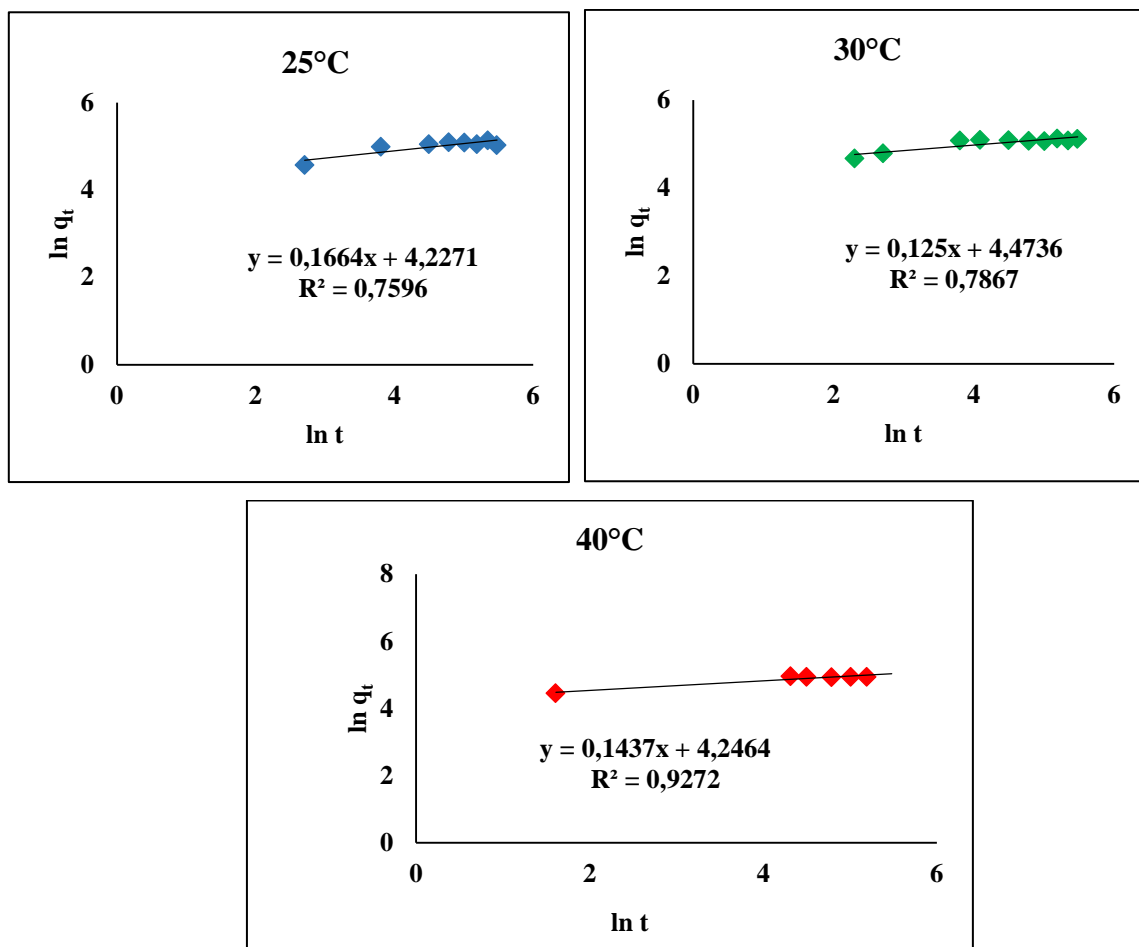


Figure IV.13 : Représentation graphique du modèle de la diffusion intra-particulaire de l'adsorption de l'IBU sur CAP F400, $C_0 = 10 \text{ mg. L}^{-1}$, 200 tr.min^{-1} , ($T = 25^\circ\text{C}$, 30°C et 40°C).

Les tracés obtenus montrent que les droites de la régression linéaire ont de bons coefficients de corrélation R^2 supérieurs à 0,91 ; ces droites ne passent pas par l'origine pour toutes les températures étudiées ($C_d \neq 0$), ce qui signifie que la diffusion intra-particulaire est impliquée dans le mécanisme d'élimination, mais n'est pas le seul mécanisme limitant de la cinétique d'adsorption [75].

IV.4.3.5. Modèle de la fonction puissance

Nous avons tracés $\ln q_t = f(\ln t)$, les figures suivantes représentent les droites obtenues :



Figures IV.14 : Représentation graphique de modèle fonction puissance du l'IBU sur le CAP, T=25°C, 30°C et 40°C, C₀=10 mg. L⁻¹ ,200 tr. min⁻¹

Les paramètres de la modélisation des trois modèles sont récapitulés dans ce tableau.

Tableau IV.3: Paramètres de la modélisation des modèles d'adsorption.

Elovich	R²	0,918	0,949	0,922
	b	26,45	18,37	15,83
	a	32,68	68,53	63,22
Diffusion intra-particulaire	R²	0,944	0,916	0,934
	K_{id} (mg.g⁻¹.min^{-1/2})	2,91	5,58	4,45
	C (mg.g⁻¹)	127,02	95,64	79,69
Fonction puissance	R²	0,759	0,786	0,927
	b	0,16	0,12	0,14
	a	68,03	87,35	69,40

La bonne linéarité entre la quantité de l'ibuprofène adsorbée sur le CAP et $\ln t$, indique que le modèle d'Elovich est bien vérifié et peut être applicable dans ce cas, ceci confirme qu'il s'agit d'un processus de chimisorption avec des coefficients de régression linéaire élevés pour les trois températures étudiées [76].

Dans le cas de la diffusion intra-particulaire, si les droites ne passent pas par l'origine, ceci indique que la diffusion dans les pores, n'est pas le seul mécanisme limitant de la cinétique d'adsorption. Il apparaît que d'autres mécanismes sont impliqués [77,78].

D'une part, la pente k_{id} est définie comme un paramètre de vitesse qui caractérise la cinétique d'adsorption dans la région où la diffusion dans les pores est l'étape limitante. D'autre part, l'ordonnée à l'origine renseigne sur l'effet de la couche limite, plus elle est grande, plus la contribution de la diffusion externe dans la limitation de vitesse d'adsorption est indépendante [79,80].

L'absence d'une phase d'initiation pour les trois températures, insinue la formation très rapide d'une couche à la surface des particules du fait des liaisons ioniques, ce qui confirme l'hypothèse de la chimisorption d'après le modèle d'Elovich.

Les valeurs du coefficient de diffusion intra-particulaire $C_d \neq 0$, indiquant que le processus de rétention est gouverné par la diffusion dans les pores, mais elle n'est pas la seule étape limitante du phénomène [81].

La cinétique de fixation de l'ibuprofène sur le CAP F400 à différentes températures n'est pas représentée par le modèle de la fonction puissance car les valeurs des coefficients de corrélation sont faibles [82].



Conclusion générale

Conclusion générale

Ce travail avait pour objectif, l'étude de l'adsorption d'un médicament (l'ibuprofène) sur le charbon actif en poudre.

Dans notre travail, nous avons réalisé des cinétiques d'adsorption et les résultats obtenus montrent que :

- Le processus de la cinétique d'adsorption de cette molécule est rapide,
- Un état d'équilibre varie entre 60 et 120 minutes pour des températures comprises entre 25°C et 40°C ; avec des taux d'adsorption allant de 54% à 64%,
- Le modèle de pseudo-premier ordre n'ajuste pas la cinétique d'adsorption de l'IBU sur le CAP, car les coefficients de régression linéaire R^2 sont inférieurs à 0,55.
- Le modèle de pseudo-second ordre paraît modéliser convenablement les résultats obtenus et ceci pour toutes les températures mentionnées avec des coefficients de linéarisation $R^2 > 0,99$, ainsi, les capacités maximales d'adsorption à l'équilibre déterminées théoriquement sont proches à celles mesurées expérimentalement.
- Le modèle d'Elovich semble adéquat pour modéliser nos résultats expérimentaux, ce qui explique qu'il s'agit d'un phénomène de chimisorption.
- Le modèle de la diffusion intra-particulaire ajuste bien les cinétiques d'adsorption avec un coefficient de diffusion $C_d \neq 0$, indiquant que le processus de rétention est gouverné par la diffusion dans les pores, mais elle n'est pas la seule étape limitante du phénomène,
- Finalement, la cinétique de fixation de l'ibuprofène n'est pas représentée par le modèle de la fonction puissance

En perspective et pour finaliser l'étude de l'adsorption, il faut :

- Caractériser le charbon actif notamment sa surface spécifique,
- Utiliser d'autres adsorbants,
- Etudier l'influence des autres paramètres, tels que : pH, force ionique, vitesse d'agitation...etc.

Références bibliographiques

- [1]: A.S. Mastre, et al, 2007, **Activated carbons for the adsorption of ibuprofen**, 45:1979-1988.
- [2] : A.Rivera, 2003, **Evaluation de l'impact environnemental de l'ibuprofène et du diclofénac dans le milieu aquatique**, Mémoire de Master, Université de Bruxelles, pp3.
- [3] : J. Ankri, 1999 ; **Médicament et santé publique** ; Université de paris, France.
- [4] : J.P. Besse, 2010, **Impact environnemental des médicaments à usage humain sur le milieu récepteur : évaluation de l'exposition et des effets biologiques pour les écosystèmes d'eau douce**, Thèse de doctorat, Université de Metz. France.
- [5] : P.Clive page, et al ,1997 ; **Pharmacologie intégrée**, 1^{ère} Edition.
- [6]: H.Saouadogo, 2003, **Etude des risques de santé liés à l'utilisation des médicaments vendus sur le marché informel à Ouagadougou (Burkina Faso)**, Thèse de Doctorat, Université de Ouagadougou.
- [7] : **Compagne nationale d'occurrence des résidus de médicaments dans l'eau destinées à la consommation humaine (ressources en eau brutes et eau traitées)** ; 2011, laboratoire d'hydrologie de Nancy.
- [8] : A .Mellah, 2012, **Adsorption de produits pharmaceutiques sur le charbon actif en poudre en vue de leur élimination**, Mémoire de Magister, Ecole Nationale Polytechnique, Alger.
- [9]: H .Guedidi, et al , 2012 ; **The effets of the surface oxidation of activated carbon, the solution pH and the temperature on adsorption**, Carbon, vol .4.
- [10]: Clarke's, 2005; **Analysis of drugs and poisons**, Pharmaceutical Press, Electronic Version, London.
- [11] : A .Mellah, et al , 2014, **Etude de l'effet de la concentration sur l'adsorption de deux produits pharmaceutiques (le phénobarbital et l'ibuprofène et du diclofénac dans le milieu aquatique**, Ecole Nationale Polytechnique, Alger.
- [12] : S .Guercia, 2003, **Les intoxication des animaux de compagnie par les médicaments à usage humain**, Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Vétérinaire d'Alfort, France.
- [13]: J.M.Pépin, 2006 ; **Impacts écotoxicologique de certains médicaments dans l'environnement**, centre universitaire de formation en environnement ; Université de Sherbrooke, Canada.
- [14] : O.Bazar, 2011 ; **les médicaments dans les eaux : présence et impact écotoxicologique. Exemple de trois molécules : ibuprofène, carbamazépine et éthinylestradiol**, Thèse de Doctorat, Université Henri Poincaré, NANCY 1, France.

[15]: WT, Beaver, 2003; **Review of the analgesic efficacy of ibuprofen**, Int J Clin Pract suppl, pp.13-7.

[16] : A. Rivera, Esther, 2012, **Evaluation de l'impact en environnemental de l'ibuprofène et du diclofénac dans le milieu aquatique**, Master Académique, Université Libre de Bruxelles.

[17] : N.Yahiaoui, 2012 ; **Etude de l'adsorption des composés phénolique des margines d'olive sur carbonate de calcium, hydroxyapatite et charbon actif**, Mémoire de magister, Université de Tizi Ouzou.

[18] :W.J .Masschelin, 1996 ; **Processus unitaires du traitement de l'eau potable**, CEBEDOC.

[19] : L.Meljac, 2004 ; **Etude d'un procédé d'imprégnation de fibre de carbones activés-modélisation des interactions entre ces fibres et le sulfure d'hydrogène**, Thèse de Doctorat, Université de Jean Monnet, St-Etienne.

[20]: **charbon actif**; 2009, Edition Norit Nederland BV.

[21]: S. A .Kahani, M. Hamadani, and V. O, 2009; **Deposition of magnetite nanoparticles in activated carbons and preparation of magnetic activated carbon. Nanotechnology and Its Applications**, 929: p. 183-188.

[22]: A. Ahmad, et al. 2009,**Removal of Cu (II) and Pb (II) ions from aqueous solutions by adsorption on sawdust of Meranti wood. Desalination. 247 (1-3): p. 636-646.**

[23]: C.Zhang, et al. 2011; **Assessment of heavy metal pollution from a Fe-smelting plant in urban river sediments using environmental magnetic and geochemical methods. Environmental Pollution**, 159(10): p. 3057-3070.

[24] : J.Omlin, L.Chesaux, 2010 ; **Evaluation de charbons actifs en poudre (CAP) pour l'élimination des micropolluants dans les eaux résiduaires urbaines**, Ecole polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse.

[25] : M.A. SLASLI, 2002 ; **Modélisation de l'adsorption par les charbons microporeux, Approches théorique et expérimentale**, Thèse de doctorat, Université Neuchâtel.

[26]: A. Jusoh, et al. 2011; **Study on the removal of pesticide in agricultural run off by granular activated carbon. Bioresource Technology**, 102(9): p. 5312-5318.

[27] : Stoeckli, F, **Carbon, 1990. 28(1).**

[28] : J.Margot, 2011 ; **elimination des micropolluants dans les eaux usées** ; laboratoire de technologie Ecologique, Lausanne, Suisse.

[29] : A. Elabed ,2007 ; **Réactivité thermique et cinétique de dégradation du bois d'arganier application à l'élaboration de charbon actif par activation chimique à l'acide phosphorique** ; Thèse de Doctorat, Université Mohammed VI, Maroc.

[30]: N.M.Osmond, 2000; **Activated carbon fiber adsorbent materials**, Adsorption Science & Technology 18(6), 529-539.

[31]: K. Willeke et al , 1995; **Microbial stress, bounce and re-aerosolization in bioaerosol samplers**, Journal of Aerosol Sciences 26(1), S883-S884.

[32]: F. Rodriguez-Reinoso, 1998; **the role of carbon materials in heterogeneous catalysis**, Carbon 36(3), 159-175.

[33]: H.F. Stoeckli, 1990; **Microporous carbons and their characterization: the present state of the art**, Carbon 28(1), 1-6.

[34]: C.E. Byrne; D.C. Nagle, 1997; **Carbonized wood monoliths-Characterization**, Carbon 35(2), 267-273.

[35]: T. Wigmans, 1989; **Industrial aspects of production and use activated carbons**, Carbon 27(1), 13-22.

[36]: S.-J. Park; K.-D. Kim, 2001; **Influence of activated temperature on adsorption characteristics of activated carbon fiber composites**, Carbon (39), 1741-1746.

[37]: Y.-K. Ryu; K.-L. Kim; C.-Ha, Lee 2000; **Adsorption and desorption of hexane**

[38]: M.L.SEKIRIFA, 2013, **Étude des propriétés adsorbants des charbons activés issus des noyaux de dattes, Application au traitement d'effluent aqueux**, Thèse de Doctorat, Université Badji Moktar, ANNABA.

[39]: R.Fu; & al, 2003; **Studies on structure of activated carbon fibers activated by phosphoric acid**, Applied Polymer Science (87), 2253-2261.

[40]: F. Rodriguez-Reinoso, 1998; **the role of carbon materials in heterogeneous catalysis**, Carbon 36(3), 159-175.

[41]: K.S.W. Sing & al, 1985, **Reporting physisorption data for gas/solid systems, with special reference to the determination of surface area and porosity**; Pure & Applied Chemistry 57(4), 603-619.

[42]: E.F.Ibañez, 2002 ; **Étude de la carbonisation et l'activation de procureur végétaux durs et mous**, Thèse de Doctorat, Université de Granada, Espagne.

[43]: H. Le Pape, 2003 ; **Étude des propriétés germicides de fibres de carbone activé « Application à la décontamination de l'air en cabine d'avion »**, Thèse de Doctorat, Université de Limoges, France.

[44]: R.C.Bansal; J.B. Donnet; H.F. Stoeckli 1988, **Active carbon**, New York: Dekker

[45] : L.NAIDJ, **Elimination du colorant orange en solution aqueuse, par voie photochimique et par adsorption**, Mémoire de Magister, Université Mentouri, Constantine.

[46] : S.Hazourli, 1991 : **adsorption et électrosorption de composés organiques sur charbon actif grain**. Thèse de Doctorat, USTHB, Alger

[47] : D. Le-Coq, 2004 ; **Contribution à la modélisation dynamique simplifiée d'un procédé d'adsorption modulée en pression (P.S.A.)** ; Thèse de Doctorat, Université de Claude Bernard – Lyon 1, France

[48] : Mbaye GUEYE, 2005, **Développement de charbon actif à partir de biomasses lignocellulosiques pour des applications dans le traitement de l'eau**, Thèse de Doctorat,

[49]: A.D. Crowell, 1967; **the solid-Gas Interface**, Edward Arnold Ltd, London, Volume I.

[50] : I.MARZOUK, 2012 ; **Etude de l'élimination du chrome (VI) par adsorption l'alumine activée et par dialyse ionique croisée**, Thèse de Doctorat, Université El-Manar, Tunis.

[51] : J.C.D'oliveira, g.Al-Sayyed, P.Pichat, 1990, **Environ.Sci.Technol**, Vol : 24, n°7, pp990-996.

[52]: Bahnemann, 2004, **solar Energy**, Vol .77, pp.445-459.3

[53]: J.I.Ajona, A.Vidal, 2000, **Solar Energy**, Vol: 68, n°1, pp.109-120

[54] : C.Cardot ,1999 ; **Les traitements de l'eau-Procédé physico-chimique et biologiques**, édition Ellipses, Technosup, Paris.

[55] : F.Hammache, 2006, **Modélisation et optimisation du procédé d'adsorption du phénol sur charbon actif dans un réacteur tubulaire a lit fixe**, Mémoire de Magister, Université Abderrahmane Mira, Bejaia.

[56] : F.Edeline, 1996 ; **l'épuration physico-chimique des eaux, théorie et technologie** ,3^{ème} Edition CEBEDOC, liège

[57]: Q .Riaz et R.Abdul Hameed, 2002, **A study of adsorption of phénol by activated carbon from aqueous solution**, Truk JChem, Vol .26, pp357-361.

[58] : S .Gendrault Derveaux, 2004 ; **Etude d'un traitement combine bio-physico –chimique pour la décontamination des eaux polluées en atrazine**, Thèse de Doctorat ; Université de Lyon, France.

[59] : J.DeLaat, 1988, **Contribution à l'étude du mode de l'élimination de molécules organique modèle sur le charbon actif en grain. Interaction entre les processus d'adsorption et de biodégradation**, Thèse de doctorat, Université de Poitiers, France.

[60]: S.Lagergren, 1988, **about the theory of so-called adsorption of soluble substances**, Vol .24, pp.1-39.

[61] : J .Ma, et al , **Enhanced adsorption removal of methyl orange and methylene blue from aqueous solution by alkali-activated multiwalled carbon nanotubes**. Appl. Mater. Interfaces 4 (2012) 5749-5760.

[62]: W.J. Weber,et al . 1963, Kinetic of adsorption on carbon from solution. J. Sanit. Div.ASCE 89 31-59.

[63] : S. Sahnoun, 2011, **Synthèses, caractérisation et application des argiles organophiles**, Mémoire de Magister, Université du Sétif.

[64]: I.D. Mall,et al . 2005, Removal of congo red from aqueous solution by bagasse fly ash and activated carbon: kinetic study and equilibrium isotherm analyses, Chemosphere, 61492-501

[65] : F.Z. Batana, 2011, **Etude de la mobilité du cadmium à travers un sol**, Mémoire de Magister, Ecole Nationale Polytechnique d'Alger.

[66] : M. Safi, 2008, **Chromatographie liquide à haute performance (HPLC)**, Université Hassan II- Maroc.

[67]: A.R. Dincer,et al . 2006 , **Coal-based bottom ash (CBBA) waste material as adsorbent for removal of textile dyestuffs from aqueous solution**, Colloid and interface science 293/ 303-311.

[68] : O. Joseph. 2009,**Etude du potentiel d'utilisation de résidus agricoles haïtiens pour le traitement par biosorption d'effluents pollués**. École doctorale Chimie de Lyon

[69] : A. Hamouche, 2012 ; **Etude cinétique et thermodynamique de l'adsorption des métaux lourds par l'utilisation des adsorbants naturels**, thèse de doctorat, Université M'HMED BOUGARA, BOUMERDES.

[70] : Doğan, M., et al ., **Adsorption of methylene blue onto hazelnut shell: Kinetics, mechanism and activation parameters**, *J. Hazard. Mater.*, 164, 172–181 (2009).

[71] : G. DERAFA, 2014 ; **Synthèse et caractérisation de montmorillonite modifiée : Application à l'adsorption des colorants cationiques**, Mémoire de magister, Université Ferhat Abbas, SETIF.

[72]: M. Hachi, A.et al , 2015, **Valorization of the Spent Biomass of *Pleurotus mutilus* Immobilized as Calcium Alginate Biobeads for Methylene Blue Biosorption**, , Université de Djelfa

[73]: K.Porkodi, K.vasanth Kumar, 2006, **Equilibrium, Kinetics and mechanism modeling and simulation of basic and acid dyes sorption onto jute fiber carbon : eosin yellow ;malachite green and crystal violet single component systems ; journal of hazardous materials 143 :311-327.**

[74]: M. Dogan, et al ,2006 , **Adsorption kinetics of maxilon blue GRL onto sepiolite from aqueous solution**, **Chemical Engineering Journal**, 124 89-101.

[75] : D .Chawki, 2014, **Expérimentation, modélisation et optimisation de l'adsorption des effluents textiles**, Thèse de doctorat, Université Mohamed Khider, BISKRA.

[76] : I.M.TRIFI, 2012, **Etude de l'élimination du chrome (VI) par adsorption sur l'alumine activée et par dialyse ionique croisée**, Thèse de doctorat, France.

[77]: J.R. Weber and J.C. Morris, 1963. '**Kinetics of Adsorption on Carbon from Solution**', **Journal of Sanitary Engineering Division, American Society Civil Engineering**, Vol. 89 (SA2), p. 31,

[78]:V.C. Srivastava, et al , 2006, '**Adsorptive Removal of Phenol by Bagasse Fly Ash and Activated Carbon: Equilibrium, Kinetics and Thermodynamics**', **Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects**, Vol. 272, N°1-2, pp 89 – 104

[79]: D. Karadag, 2007, '**Modeling the Mechanism, Equilibrium and Kinetics for The adsorption of Acid Orange 8 onto Surfactant-Modified Clinoptilolite: The application of Non Linear Regression Analysis**', **Dyes and Pigments**, Vol. 74, N°3, pp. 659 – 664,

[80]:B.H. Hameed, 2009 , '**Spent Tea Leaves: A New Non-Conventional and Low-Cost Adsorbent for Removal of Basic Dye from Aqueous Solutions**' **Journal of Hazardous Materials**, Vol. 161, N°2-3, pp. 753 – 759.

[81] : N. GHERBI, 2008, **Etude expérimentale et identification du processus de rétention des cations métalliques par des matériaux naturels**, Thèse de doctorat, Université de Constantine.

[82] : N, YEDDOU, et al , *Novembre 2012*, **Etude de l'adsorption d'une mixture de composés biorecalcitrants en milieu aqueux**, *Larhyss Journal*, ISSN 1112-3680, n°11, , pp. 7-16

المخلص

العمل المقدم في هذه المذكرة يختص بدراسة امتزاز للمادة الصيدلانية الإيبيروفان على المسحوق التجاري الفحم النشط عند تركيز ابتدائي 10مغ. ل⁻¹. النتائج المتحصل تمت دراستها بجهاز كروماتوغرافي (HPLC) المرحلة الأولى تدرس الامتزاز حيث بينت ان حالة التوازن تكون من 60 إلى 120 دقيقة وهذا عند درجة حرارة تتراوح بين 25م° و40م°.

المرحلة الثانية تهتم بنماذج الحركة الامتزازية: (شبه درجة 1, شبه درجة 2, ايلوفيتش, داخل الجزئية و الدالة الاسية), أظهرت النتائج ان نموذج حركية الامتزاز يتناسب بشكل أفضل مع نموذج شبه الدرجة الثانية و يبين ايلوفيتش ان الامتزاز كيميائي و كذلك داخل الجزئية يقدمان استخطاطا مقبولا مبينا ان الإمتزاز يحدث بعدة اليات. النموذج شبه الأول الدالة الأسية غير قادرين على وصف البيانات التجريبية لامتزاز إيبيروفان على فحم نشط.

الكلمات المفتاحية: إيبيروفان، فحم نشط، امتزاز، الحركية، نماذج الحركية.

Résumé

Dans le but d'étudier l'adsorption de l'ibuprofène sur le CAP F400, des essais d'adsorption en batch ont été réalisés. L'analyse de l'ibuprofène adsorbé a été faite par chromatographie liquide à haute performance (HPLC). Les expérimentations ont été effectuées avec une concentration initiale égale à 10 mg. L⁻¹.

La première partie de cette étude, a porté sur les cinétiques d'adsorption. Elle a montré que l'équilibre est atteint entre 60 et 120 minutes pour des températures comprises entre 25°C et 40°C.

Le seconde partie est consacrée aux modèles cinétiques d'adsorption : (pseudo-ordre 1, pseudo-ordre 2, Elovich, diffusion intra-particulaire et fonction puissance), elle montre que, la cinétique est d'ordre 2, et qu'il s'agit d'une chimisorption selon Elovich ; ainsi, le modèle de la diffusion intra-particulaire ajuste bien les résultats obtenus indiquant que l'adsorption se fait par différents mécanismes ($C_d \neq 0$).

Les modèles de pseudo-ordre 1 et de la fonction puissance ne semblent pas adéquats pour modéliser la cinétique étudiée.

Mots clés : Ibuprofène, CAP F400, adsorption, cinétique, modèles cinétiques.

Abstract

In order to study the adsorption of ibuprofen on the CAP F400, batch adsorption tests were performed. The analysis of the adsorbed ibuprofen was made by liquid high performance chromatography (HPLC). The experiments were carried out with an initial concentration equal to 10 mg. L⁻¹.

The first part of this study, focused on the adsorption kinetics. It showed that equilibrium is reached between 60 and 120 minutes to temperatures between 25 ° C and 40 ° C.

The second part is consecrated to kinetic adsorption models: (pseudo-order 1, pseudo-order 2, Elovich, intra-particle diffusion and power function), it shows that, the kinetics of order 2, and it is a chemisorption according Elovich; thus, the model of diffusion intra-particle snugly results indicating that the adsorption is carried out by different mechanisms ($C_d \neq 0$).

Pseudo-order models 1 and the power function does not seem adequate to model the kinetics study.

Keywords: Ibuprofen, CAP F400, adsorption, kinetics, kinetic models.