

*République Algérienne Démocratique et Populaire*  
*Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique*

**Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene**  
Faculté de Génie Mécanique et Génie des Procédés



# THESE

Présentée pour l'obtention du grade de Docteur en Sciences

En : **Génie des Procédés**

Spécialité : **Génie de l'Environnement**

Par : **Mr KHITOUS Mohamed**

**Sujet**

**SYNTHESE ET APPLICATION DES HYDROXYDES DOUBLES  
LAMELLAIRES COMME ADSORBANTS DES IONS Cr(VI), Ni<sup>2+</sup>  
ET PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> DANS UNE SOLUTION AQUEUSE**

Soutenue publiquement, le 21/10/2017, devant le jury composé de :

Mme L. BOUMEHDI TOUMI	Professeur à l'USTHB, Alger.	Présidente
Mr K. LOUHAB	Professeur à l'UMBB, Boumerdès	Examineur
Mr H. LOUNICI	Professeur à l'université de Bouira	Examineur
Mr T. AHMED ZAID	Professeur à l'ENP, Alger	Examineur
Mme D. HALLICHE	Professeur à l'USTHB, Alger	Directrice de thèse
Mme Z. SALEM HAMMOUDI	Professeur à l'USTHB, Alger	Co- Directrice de thèse

## Résumé

Dans cette étude, nous avons examiné le pouvoir adsorbant des Hydroxydes Doubles Lamellaires (HDL) de type Mg-Al pour l'élimination de trois polluants inorganiques ( $\text{Cr(VI)}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  et  $\text{PO}_4^{3-}$ ) des solutions aqueuses. Les adsorbants sont préparés par la méthode de coprécipitation à pH constant, et caractérisés par DRX, MEB, ATG, FTIR et surface BET. Nous avons étudié l'influence des paramètres expérimentaux, incluant la concentration initiale, la masse de l'adsorbant, le pH de la solution et le temps de contact sur la capacité d'adsorption en mode batch. Les conditions opératoires optimales sont observées à une concentration initiale de 100 mg/L, un pH de la solution de 6, un temps de contact de 60 min et une dose d'adsorbant de 2 g/L.

Nous avons aussi étudié la sorption du  $\text{Cr(VI)}$  par l'HDL MgAl- $\text{NO}_3$  en colonne à lit fixe. Nous avons examiné l'effet des paramètres opératoires, tels que : la hauteur du lit d'adsorbant, le débit d'alimentation, la concentration initiale du  $\text{Cr(VI)}$  et le pH de la solution, sur les paramètres de conception de la colonne d'adsorption. Les meilleurs rendements d'élimination sont obtenus dans les conditions opératoires suivantes : 3,5 cm, 10 mL/min, 50 mg/L et un pH de 6.

Enfin, nous avons développé un modèle mathématique basé sur la théorie du tracé d'onde constant et l'isotherme de Freundlich pour prédire les courbes de percée expérimentales. Le modèle établi décrit correctement les résultats expérimentaux obtenus à différentes conditions opératoires. Il permet aussi d'estimer le temps de demi-adsorption ( $t_{1/2}$ ) et le coefficient de transfert de matière volumétrique ( $K_{La}$ ). Ces paramètres sont directement reliés aux conditions opératoires.

**Mots-clés :** Hydroxydes double lamellaires, Adsorption, phosphate,  $\text{Cr(VI)}$ , Modèle, Colonne à lit fixe.

## Abstract

In this study, the sorption ability of Mg-Al Layered Double Hydroxides (LDH) to remove three inorganic pollutants ( $\text{Cr(VI)}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  and  $\text{PO}_4^{3-}$ ) from aqueous solutions was investigated. The sorbents were prepared by a coprecipitation method at constant pH, and characterized by XRD, SEM, TGA, FTIR and BET surface area. The effects of operating parameters, including initial concentration, sorbent amount, solution pH and contact time, have been studied in batch mode. The optimum conditions were observed at an initial concentration of 100 mg/L, pH=6, agitation time of 60 min and a sorbent dose of 2 g/L. In addition, we have investigated the removal of  $\text{Cr(VI)}$  using MgAl- $\text{NO}_3$  LDH in a fixed-bed column. The effects of operating parameters, such as: bed height, flow rate, inlet  $\text{Cr(VI)}$  concentration and solution pH on the breakthrough characteristics of the column were determined. The good removal efficiencies were obtained at the following conditions : 3,5 cm, 10 mL/min, 50 mg/L and pH of 6. Finally, we have developed a mathematical model based on the constant pattern theory and the Freundlich isotherm in order to predict the experimental breakthrough curves. The established model describes well the experimental results obtained at various operating conditions. It also allows to estimate the time required for 50 % breakthrough ( $t_{1/2}$ ) and the volumetric mass transfer coefficient ( $K_{La}$ ). These parameters are directly related to the operating conditions.

**Keywords :** Layered double hydroxides, Adsorption, Phosphate,  $\text{Cr(VI)}$ , Model, Fixed-bed column.

## ملخص

في هذه الدراسة، قمنا بدراسة القدرة على الامتزاز لهيدروكسيدات مزدوجة الرقائقية (HDL) من نوع Mg-Al لإزالة ثلاثة ملوثات غير عضوية ( $\text{Cr(VI)}$ ،  $\text{Ni}^{2+}$  و  $\text{PO}_4^{3-}$ ) من المحاليل المائية. يتم إعداد الامتزازات بطريقة الترسيب في نسبة حموضة ثابتة، و قمنا بتمييزها بواسطة DRX، MEB، ATG، FTIR والمساحة BET. قمنا كذلك بدراسة تأثير العوامل التجريبية، مثل التركيز الأولي، كتلة الممتز، ودرجة الحموضة في المحلول ووقت الاتصال على قدرة الامتزاز في نظام مغلق. لوحظت العوامل التجريبية المثلى في تركيز أولي 100 مغ/لتر، درجة حموضة 6، وقت اتصال 60 دقيقة، وجرعة الممتز 2 غ/لتر. إضافة إلى ذلك، درسنا عملية الامتزاز لشوارد  $\text{Cr(VI)}$  بواسطة HDL MgAl- $\text{NO}_3$  في عمود السرير الثابت، درسنا تأثير العوامل التجريبية مثل: ارتفاع السرير الثابت، معدل التغذية، التركيز الأولي لشوارد  $\text{Cr(VI)}$  ونسبة حموضة المحلول، على عناصر تصميم عمود الامتزاز. وجدنا أنه يتم الحصول على أفضل إزالة في ظروف التجريب التالية: 3.5 سم، 10 مل/دقيقة، 50 مغ/لتر ودرجة الحموضة 6.

أخيراً، قمنا بتطوير نموذج رياضي اعتماداً على نظرية التخطيط المستمر للموجة ونموذج فروندليتش لأجل التنبؤ لمنحنيات الاختراق التجريبية. النموذج المنشأ يصف بشكل صحيح النتائج التجريبية التي تم الحصول عليها في ظروف التجريب المختلفة. وهو قادر أيضاً على تقدير مدة نصف الامتصاص ( $t_{1/2}$ ) والمعامل الحجمي للانتقال ( $K_{La}$ ). هذه المعايير ترتبط مباشرة بظروف التجريب.

**الكلمات السرية :** هيدروكسيدات مزدوجة الطبقات، امتزاز، فوسفات،  $\text{Cr(VI)}$ ، نموذج، عمود ثابت السرير.