

N° d'ordre :

REPIBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POLULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE

-----  
UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCE

DEPARTEMENT DE CHIMIE



*Domaine* : **SCIENCE DE LA MATIERE**

*Filière* : **CHIMIE**

*Spécialité* : **CHIMIE DE L'ENVIRONNEMENT**

## **Mémoire de Master**

*Thème*

**Adsorption d'un polluant émergent Ibuprofène par deux charbons, synthétisés à base de grignon d'olive et de noyau de datte.**

*Présenté par* : M<sup>elle</sup> **ATBATA Sabrina** et M<sup>elle</sup> **BOUASSEL Yasmine**

*Devant le Jury composé de* :

<b>Mme. CHIKH Assira</b>	<b>MCA</b>	<b>UMMTO</b>	<b>Présidente</b>
<b>Mme. ANNANE Kahina</b>	<b>MCB</b>	<b>UMMTO</b>	<b>Examinatrice</b>
<b>Mr. KADOUCHE Slimane</b>	<b>MCA</b>	<b>UMMTO</b>	<b>Promoteur</b>
<b>Mr. GRABI Hocine</b>	<b>Docteur</b>	<b>UMMTO</b>	<b>Co-promoteur</b>

**Session 2020/2021**



# Remerciements

*Ce travail a été réalisé dans le Laboratoire de Chimie Appliqué et Génie Chimique LCAGC de l'Université de Mouloud MAMMERRI de Tizi-Ouzou dirigé par Mr KADOUCHE.S, maître de conférences de classe A.*

- + Nous tenons à remercier Mr CHAOUCHI .A, directeur de LCAGC, de nous avoir accueillis au sein du laboratoire et de nous avoir mis en notre disposition tout le nécessaire*
- + Nous remercions vivement notre encadreur Mr KADOUCHE, et lui présenter l'expression de notre profonde reconnaissance pour son aide précieuse, ses conseils ainsi de nous avoir fait confiance.*
- + Nous remercions profondément M<sup>me</sup> CHIKH .A pour l'honneur qu'elle nous a fait d'accepter de présider le jury de notre soutenance.*
- + Nous tenons aussi à remercier M<sup>me</sup> ANNANE .K d'avoir accepté d'examiner notre mémoire.*
- + Nous tenons à exprimer notre reconnaissance et gratitude à notre co-promoteur Dr GRABI.H, pour l'aide et le soutiens qu'il nous a offert et de nous avoir fait profiter de ses connaissances scientifiques.*
- + Nous remercions profondément Mr TEZKRATT pour ses encouragements, son soutien et son humour.*
- + Nous remercions aussi l'ensemble des personnels du laboratoire pour leur aide et leur extrême gentillesse.*
- + Pour finir nous remercions infiniment Dr Allam, pour sa gentillesse, son humour et son accueil chaleureux, qu'elle veuille bien trouvé ici l'expression de notre respect le plus profond.*

## *Dédicaces*

*Avec l'expression de ma reconnaissance, Je dédie ce modeste travail accompagné d'un profond amour :*

*A l'être le plus cher de ma vie, la lumière de mes jours ma mère chérie **ZAHRA** aucun hommage ne pourrait être à la hauteur de ses sacrifices, son encouragement toutes au long de ces années d'études. Puisse Dieu, le très haut, vous accorder santé, bonheur et long vie.*

*A mon très cher père **BOUDJEMAA**, mon support dans la vie, tu as été toujours à mes coté pour me soutenir, m'encourager et me motiver. Que ce travail traduit ma gratitude et mon affection. Dieu vous préserve en bonne santé et vos accorde une longue vie.*

*A ma sœurs **SILIA**, mes frère **SAID** et **BILLAL** sachez que je suis très chanceuse de vous avoir dans ma vie. Que dieu vous protège et vous offre la chance et le bonheur.*

*A la mémoire de mes grands parents paternels, que Dieu garde leurs âmes dans son vaste paradis.*

*A mes grands parents maternels, mes tantes, mon oncle **SAID***

*A mes cousins **Softiane, Lyes***

*A mes cousines **Dyhia, Samira, Melissa, Leticia, Lamia***

*A toi aussi tu te reconnaîtras, merci beaucoup pour ton soutien*

*A mes meilleurs amies **Lamia et Kenza***

*A mes camarades de la promo 2021 de LCAGC*

*Et sans oublier mon amie, ma binôme **Jasmine**, sache que je ne regrette jamais d'avoir fais ta connaissance, je te souhaite que la réussite dans ta vie professionnelle.*

*Sabrina*

## *Dédicaces*

*Avec l'expression de ma reconnaissance, je dédie ce modeste travail à ceux qui, quelque soit les mots du monde je ne pourrais exprimer mon sincère amour et gratitude*

*A l'être le plus chère au monde Ma Mère la lumière de ma vie, quoi que je dise et quoi que je fasse, je serai point te remercier pour ton soutien, ton affection et ton grand amour. Tu es ma source de force que Dieu te garde à mes coté.*

*A mon cher Père, pour le soutien et le confort que tu m'as donné durant tout mon parcours scolaire et les encouragements qui n'ont jamais cessé, que ce travail traduit ma gratitude et mon affection.*

*A mes charmantes sœurs **Djamila, Hayat, Dalida et Zahira**, et mes frères **Mourad et Hassen**, pour leur soutien et appui et surtout leur encouragement, je vous aime.*

*A ma belle sœur **Gabriella** et mes neveux **Noah et Radcek** mes amours.*

*A la mémoire de ma grand-mère maternelle qui prié toujours pour moi, que Dieu t'accueille dans son vaste paradis.*

*A ma petite **Mimi**, mon sucre brun.*

*A mes deux amies **TisTis et Dyhia**, je regrette jamais d'avoir fait votre connaissance et à tous mes autres amis qui m'encouragent tout le temps de près ou de loin.*

*A mes camarades de ma promo 2021 de LCAGC, vous êtes les meilleurs*

*Et pour finir à ma binôme, mon amie, ma douce **Sabrina** qui est juste un bout de sucre, on a partagé les bons et mauvais moments ensemble que ce projet soit le fruit de notre travail, salanghae.*

*Jasmine*

## Table des matières

Introduction générale.....	1
----------------------------	---

### Chapitre I : Les médicaments dans l'environnement

I.1 Introduction.....	3
I.2 Les résidus médicamenteux (RM) dans l'environnement.....	3
I.2.1 Définition.....	3
I.2.2 Origine de contamination.....	3
I.2.2.1 Sources diffuses.....	4
I.2.2.2 Sources ponctuelles.....	4
I.3. Consommation mondiale des médicaments.....	5
I.4. Consommation des médicaments en Algérie.....	6
I.5. Classes des produits pharmaceutiques retrouvés dans l'environnement.....	7
I.5.1. Les Anti-inflammatoires non stéroïdiens (AINS).....	8
I.5.2. Ibuprofène (IBU).....	8
I.6 Impact environnemental des médicaments.....	9
I.6.1 impact sur les organismes aquatiques.....	9
I.6.2 impact sur la santé humaine.....	9
I.7 Efficacité des stations d'épuration.....	10
I.8. Conclusion.....	11

### Chapitre II: Généralités sur l'adsorption

II.1 Introduction.....	12
II.2 Définition de l'adsorption.....	12
II.2.1 L'adsorption physique.....	13
II.2.1.1 Adsorption chimique.....	13
II.3 Description du mécanisme d'adsorption.....	13
II.4. Facteurs influençant sur l'adsorption.....	14
II.5 Les adsorbants.....	16
II.5.1 Le charbon d'origine végétale.....	16
II.5.2. Préparation des charbons végétaux.....	16
II.5.3. Régénération du charbon.....	16
II.5.3.1 Régénération à la vapeur.....	16
II.5.3.2 Régénération thermique.....	16
II.5.3.3 Régénération chimique.....	16

II.5.3.4 Régénération biologique .....	17
II.6. Isothermes d'adsorption.....	17
II.6.1.Classification des isothermes d'adsorption.....	17
II.6.2.Modèle d'isotherme d'adsorption .....	18
II.6.2.1.Isotherme de Langmuir .....	18
II.6.2.2. L'isotherme de Dubinin-Radushkevich .....	20
II.6.2.3 .L'isotherme de Freundlich .....	20
II.6.2.4.L'isotherme de Temkin.....	21
II.6.3.Cinétique d'adsorption.....	21
II.6.3.1.Modèle pseudo-premier ordre : (Lagergren, 1898).....	22
II.6.3.2. Modèle pseudo second-ordre :(Blanchard 1984).....	22

### **Chapitre III : Matériel et méthodes**

III.1.Introduction .....	24
III.2.Préparation de l'adsorbat-adsorbant .....	24
III.2.1 Matériel et produits utilisés .....	24
III.2.2 L'adsorbat Ibuprofène .....	25
III.2.2.1Caractéristiques physico-chimiques de l'ibuprofène.....	25
III.2.2.2Préparation de la solution d'IBU .....	25
III.2.2.3.Analyse par spectroscopie UV-visible .....	26
III.2.2.4.Courbe d'étalonnage.....	28
III.3.Préparation de l'adsorbant .....	28
III.4.Caractérisation des adsorbants utilisés .....	31
III.4.1 Analyses physico-chimiques .....	31
III.4.1.1.Taux d'humidité .....	31
III.4.1.2. Taux de cendre.....	31
III.4.1.3. La densité apparente .....	32
III.4.1.4. Le pH de point de charge nulle ( $\text{pH}_{\text{pzc}}$ ) .....	32
III.4.2. Analyse texturale par la méthode multipoint BET .....	32
III.5.Optimisation des conditions opératoires .....	33
III.5.1. Effet de pH.....	33
III.5.2. Effet de la masse d'adsorbant.....	33
III.5.3L'effet de la concentration initiale.....	34
III.6Calcul de la quantité adsorbée .....	34

## **Chapitre IV : Résultats et discussion**

IV.1.Caractérisation des adsorbants utilisés .....	36
IV.1.1. Les résultats des analyses physico-chimiques et spectrales .....	36
IV.1.2.Point de charge nulle .....	36
IV.2 Résultats de l'étude paramétrique .....	38
IV.2.1.Effet de pH initial de la solution .....	38
IV.2.2.Effet de la masse d'adsorbant.....	39
IV.2.3.Effet de la concentration initiale d'IBU .....	40
IV.2.4 Effet du temps de contact .....	41
IV.3 Modélisation de la cinétique d'adsorption de l'IBU .....	43
IV.3.1 Pseudo premier ordre .....	43
IV.3.2. Pseudo second ordre .....	43
IV.4. Isotherme d'adsorption.....	45
IV.4.1. Modélisation des isothermes d'adsorption .....	45
IV.4.1.1. Modèle linéaire de Langmuir .....	46
IV.4.1.2 Le modèle linéaire de Dubinin-Radushkevich .....	48
IV.4.1.3 Le modèle linéaire de Freundlich .....	48
IV.4.1.4 Le modèle linéaire de Temkin.....	49
Conclusion Générale .....	51
Références bibliographiques .....	53

## Liste des figures

Figure I.1 : Sources et voies de contamination de l'environnement aquatique par les substances pharmaceutiques. ....	5
Figure I.2 : Le marché pharmaceutique mondial par zone géographique en 2019. ....	6
Figure I.3: Evolution de la consommation des médicaments en Algérie entre 1990 et 2020. ....	6
Figure I.4: Evolution de la consommation des médicaments par habitant en Algérie en dollar USD.....	7
Figure II.1: Phénomène d'adsorption .....	12
Figure II.2: Les étapes d'adsorption sur un matériau poreux .....	14
Figure II.3 : Classification d'isothermes d'adsorption selon Giles 1974 .....	18
Figure III.I : Solution d'Ibuprofène (1g/L).....	26
Figure III.2 : Spectrophotomètre UV-Visible.....	26
Figure III.1 :Absorbance d'Ibuprofène en fonction de la longueur d'onde.....	27
Figure III.2 : Courbe d'étalonnage d'Ibuprofène ( $\lambda_{max}=224.7nm$ ) .....	28
Figure III.3. : Schéma résumant les étapes de préparation de CGO et CND .....	30
Figure III.4 : Analyseur de surface BET .....	33
Figure IV.1 : point de charge nulle de CGO .....	36
Figure IV.2: point de charge nulle CND .....	37
Figure IV.3 : Effet de pH sur l'adsorption de l'IBU Par CGO ( $C_0=80$ ppm, $m=0.1g$ , $v=50ml$ ) .....	38
Figure IV.4 : Effet de pH sur l'adsorption de l'IBU par CND ( $C_0= 40$ ppm, $m=0.1g$ , $v=50ml$ ) .....	39
Figure IV.5 : Effet de masse de CGO sur le taux d'élimination et la quantité d'adsorption d'IBU ( $pH=2$ , $C_0=80$ ppm, $v=50$ ml).....	40
Figure IV.6 : Effet de masse de CND sur le taux d'élimination et la quantité d'adsorption d'IBU ( $pH=3$ , $C_0=40ppm$ , $v=50ml$ ) .....	40
Figure IV.7 : Effet de concentration initial sur l'adsorption De.....	41
Figure IV.8 : Effet de concentration initial sur l'adsorption De.....	41
Figure IV.9: Effet du temps de contact sur l'adsorption d'IBU par le CGO ( $C_0= 80ppm$ , $pH=2$ , $m=4g$ , $v=1L$ ).....	42
Figure IV.10 : Effet du temps de contact sur l'adsorption de l'IBU par le CND ( $C_0=40$ ppm, $pH=3$ , $m=3g$ , $v=1L$ ).....	42
Figure IV.11 : Linéarisation du pseudo premier ordre .....	43
Figure IV.12 : Linéarisation pseudo second ordre .....	43
Figure IV.13: Isotherme d'adsorption d'IBU sur CGO et CND .....	45
Figure IV.14 : Linéarisation de l'isotherme du modèle de Langmuir de type (I) .....	46
Figure IV.15 : Linéarisation de l'isotherme du modèle de Langmuir de type (II) .....	46
Figure IV.16 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Langmuir de type (III).....	47
Figure IV.17 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Langmuir de type (IV) .....	47
Figure IV.18 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Dubinin-Radushkevich.....	48
Figure IV.19 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Freundlich .....	48
Figure IV.20 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Temkin .....	49

## Listes des tableaux

Tableau I.1: Différentes classes des produits pharmaceutiques trouvés dans l'environnement .....	8
Tableau II.2 : Comparaison entre l'adsorption physique et l'adsorption chimique .....	13
Tableau III.1 : Caractérisation physico-chimique d'IBU .....	25
Tableau IV.2 : Paramètre de modélisation de la cinétique d'adsorption d'IBU sur le CGO et CND.....	44
Tableau IV.3 : Les paramètres des isothermes de l'adsorption d'IBU sur CGO et CND ...	49

## Liste des abréviations

GO : grignon d'olive ;

ND : noyau de datte :

CGO : charbon grignon d'olive ;

CND : charbon noyau de datte ;

IBU : Ibuprofène ;

RM : résidus médicamenteux ;

MNU : médicaments non utilisés ;

STEP : station d'épuration des eaux usées ;

pH : potentiel d'hydrogène ;

pka : constante de dissolution ;

pHpzc : pH de point de charge nulle :

PPO : pseudo premier ordre ;

PSO : pseudo second ordre ;

D-R : Dubinin Radushkevich ;

BET : Brunauer Emmet Teller ;

UV : ultra violet ;

ng : nano gramme ;

μg : micro gramme ;

$R^2$  : coefficient de corrélation ;

R : constante des gaz parfaits ;

$Q_{cal}$  : valeur théorique de la capacité d'adsorption ;

$Q_{exp}$  : valeur expérimentale de la capacité d'adsorption ;

$q_t$  : capacité d'adsorption au temps t (mg/g) ;

$C_e$  : la concentration du soluté à l'équilibre (mg/L) ;

$C_0$ : la concentration initiale d'adsorbat en solution (mg/L) ;

$V$  : volume de la solution (mL) ;

$q_m$ : la capacité ultime d'adsorption (mg/g) ;

$\beta$  : ( $\text{mol}^2 \cdot \text{KJ}^{-2}$ ) constante du modèle Dubinin-R ;

# Introduction Générale

### Introduction générale

Aujourd'hui, les médicaments sont devenus des produits que tout le monde côtoie au quotidien. En effet presque toute personne possède dans son foyer une pharmacie.

Un médicament n'est pas un produit comme les autres, c'est un produit dynamique c'est-à-dire ses identités chimiques et ses caractères organoleptiques peuvent varier entre le moment de sa fabrication et de sa consommation. Il doit rester pour ses propriétés, un bien sur lequel on doit porter une attention particulière [1].

En septembre 2016 avait lieu à Paris la première conférence internationale sur l'évaluation du risque des résidus pharmaceutiques dans l'environnement (ICRAPHE). Celle-ci a été suivie d'une deuxième en novembre 2019 à Barcelone. La problématique des résidus médicamenteux dans l'environnement est en effet une réalité aujourd'hui et est une préoccupation de bon nombre de scientifiques sur la scène internationale [2].

Les connaissances actuelles indiquent que ces résidus actifs et leurs métabolites, sont très répandus dans les milieux aquatiques. En effet, ils ont même été détectés dans l'eau destinée à la consommation [3]. Ces résidus médicamenteux constituent une menace sérieuse pour les organismes aquatiques et terrestres car leur présence reste constante, étant donné leur rejet relativement continu [4]. Même à des concentrations très faibles de l'ordre de quelques  $\eta\text{g}-\mu\text{g/l}$ , ces « micropolluants » entraînent une multitude d'effets indésirables potentiels, notamment la toxicité, la perturbation du système endocrinien, la reproduction et l'activité antimicrobienne [5].

Les sources des produits pharmaceutique actifs dans l'environnement, ont été bien identifiées, elles ne sont pas seulement excréter directement (des patients, les activités industrielles et les activités d'élevage), mais également indirectes via des rejets inappropriés dans les eaux usées, et à travers les stations d'épuration incapable d'éliminer ce genre de micropolluant [6].

Dans le futur, la situation actuelle va très probablement s'accroître, suite à l'augmentation de la consommation de médicaments. Celle-ci est liée à la fois à l'augmentation de la population, l'amélioration des standards de vie et la mise sur le marché de médicaments moins chers. L'accès aux médicaments grandit au niveau mondial,

## Introduction Générale

---

spécialement dans les pays émergents [7], pour cette raison, une nouvelle méthode d'élimination été développée telle que l'adsorption.

L'objectif de ce travail, est d'étudier la capacité d'adsorption de deux matériaux d'origine végétale, à adsorber un résidu médicamenteux très répandu dans l'environnement « **Ibuprofène** ».

### **Ce mémoire est subdivisé en deux parties**

La première partie est une synthèse bibliographique composée de deux chapitres ; le premier traite des généralités sur la pollution médicamenteuse et son impact sur l'environnement. Le chapitre deux qui comporte des généralités sur l'adsorption, le charbon végétale et la méthode de synthèse et sa régénération.

La deuxième partie composé de deux chapitres ; le troisième chapitre est réservé a la description de l'ensemble du matériel utilisé ainsi que la caractérisation et les analyses chimique. Le quatrième chapitre est consacré a la représentation des résultats expérimentaux et leurs interprétations.

Enfin, une conclusion générale regroupant les résultats obtenus au cours de ce travail ainsi que certaines perspectives.

# Partie bibliographique

# Chapitre I : les médicaments dans l'environnement

## I.1 Introduction

Les médicaments jouent un rôle supérieur dans l'amélioration de la qualité et de l'espérance de vie des peuples. Chaque année, des milliers de tonnes de produits pharmaceutiques sont utilisés en médecine humaine et vétérinaire pour traiter des symptômes, des maladies, des infections bactériennes et aussi pour stimuler la croissance d'élevages agricoles et aquatiques [8].

Depuis les années 1970, est la découverte de molécules à usage pharmaceutique dans les eaux aquatiques [9]. Elles représentent en effet une proportion importante des polluants contenus dans les eaux usées. Étant donné que les STEP n'éliminent que partiellement les molécules médicamenteuses, ce qui provoque la contamination des ressources aquatique (rivières, lacs, nappes souterraines) [10], susceptible d'être utilisées dans les usines, de potabilisation et de devenir une eau destinée à la consommation humaine [11].

Bien que la quantité de ces produits pharmaceutiques dans l'environnement aquatique soit faible (de quelque ppt (ng/L) jusqu'à des centaines de ppb (µg/L)) [12]. Son entrée continue, peut constituer à long terme un risque potentiel pour les organismes aquatiques et terrestres [13].

## I.2 Les résidus médicamenteux (RM) dans l'environnement

### I.2.1 Définition

Les résidus médicamenteux sont des rejets de médicaments dans l'environnement. Le terme RM recouvre : la molécule mère, ainsi que ses métabolites, qu'ils soient issus d'une dégradation lors de son passage rénal ou hépatique, ou lors d'une transformation dans l'environnement par hydrolyse, photolyse... [14].

### I.2.2 Origine de contamination

La présence des substances médicamenteuses dans les eaux est liée à des rejets émis tout au long de leur cycle de vie [15]. Nous distinguons deux types de sources. Celles diffuses qui intéressent les populations humaines et animales en général, et ponctuelles qui sont à l'origine d'émissions plus concentrées mais limitées sur le plan géographique.

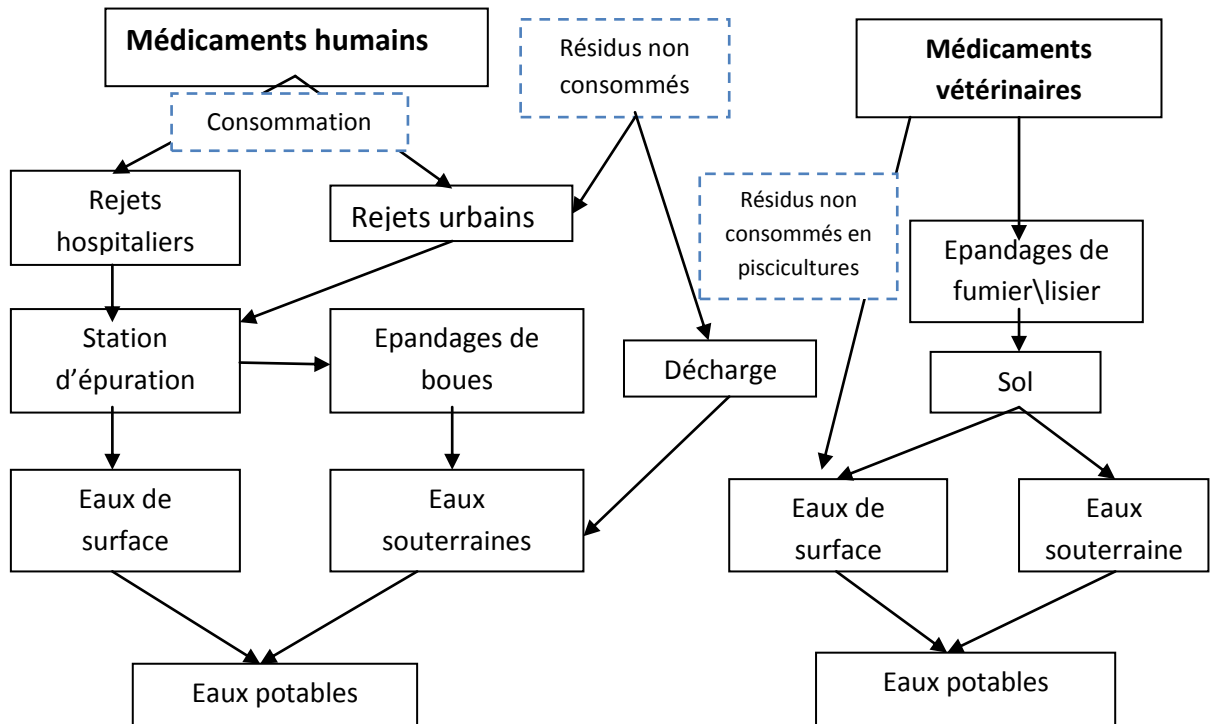
### I.2.2.1 Sources diffuses

Elles proviennent, d'une part, des urines et des selles humaines, ainsi que de celles des animaux de compagnie évacuées dans les eaux domestiques, où d'autre part des médicaments non utilisés directement jetés dans les toilettes ou les égouts, ou partent dans les déchets ménagers [16].

### I.2.2.2 Sources ponctuelles

Elles proviennent de :

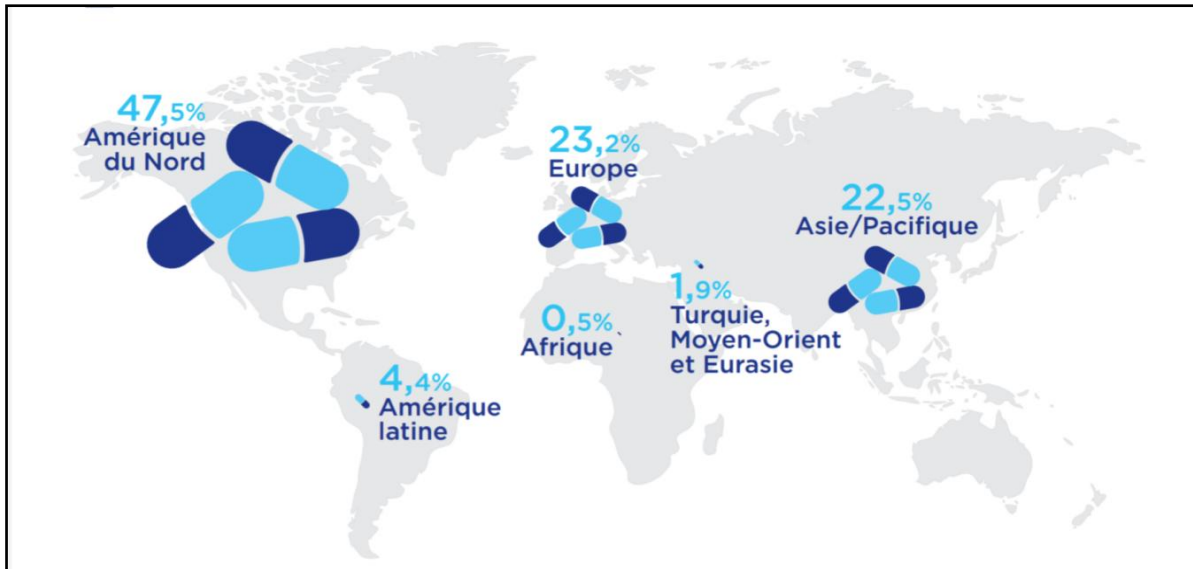
- Boues des stations d'épuration utilisées en épandage agricole et dans les sols", souligne l'Académie nationale de pharmacie française dans un rapport rendu à l'automne 2008 [16].
- Déchets de fabrication des substances médicamenteuses dans les industries chimiques.
- Rejets des industries pharmaceutiques.
- Les établissements de soins qui se caractérisent par une forte concentration de malades et par l'utilisation d'agents chimiques très variés.
- Les élevages industriels d'animaux : les médicaments vétérinaires utilisés peuvent être dispersés directement dans l'environnement lors du traitement des animaux d'élevage ou indirectement en cas d'épandage des lisiers et purins dans les sols destinés à l'agriculture.
- Les élevages piscicoles : qui posent un problème particulier car les médicaments sont directement émis dans les eaux douces et les eaux marines [17].



**Figure I.1 :** Sources et voies de contamination de l'environnement aquatique par les substances pharmaceutiques [12].

### I.3 Consommation mondiale des médicaments

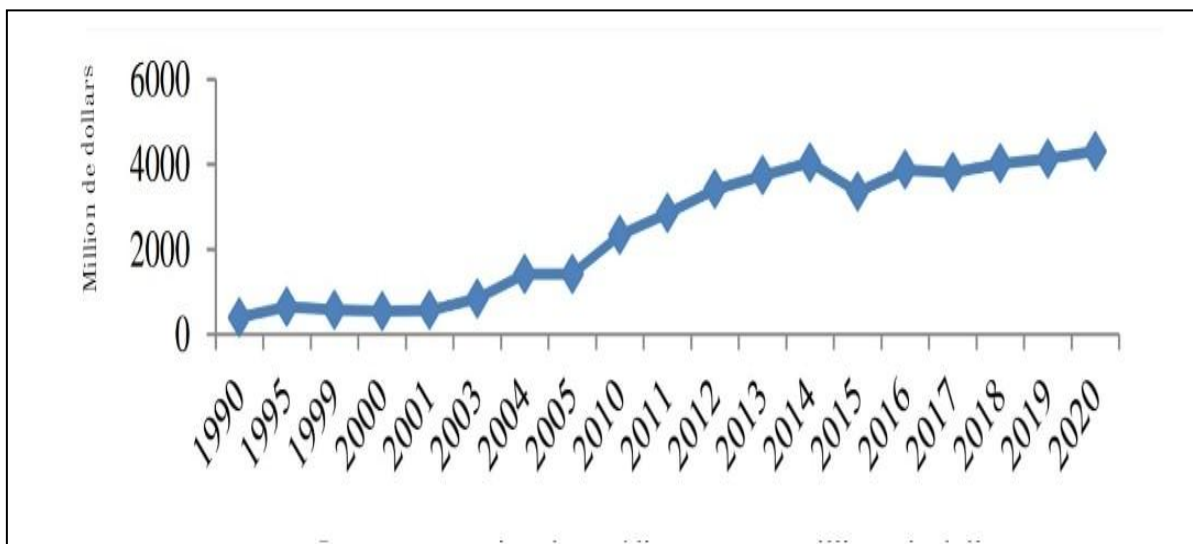
En 2019, le marché mondial du médicament a atteint 1106 milliards de dollars de chiffre d'affaires (environ 977 milliards d'euros), en croissance de plus de 5% par rapport à 2018. [18]. Environ 80 % de la consommation mondiale des médicaments provient des pays les plus industrialisés avec le niveau de vie le plus élevé (Allemagne, France, Amérique du Nord, Japon ...) . Ces médicaments concernent bien les usages vétérinaires qu'humain [17].



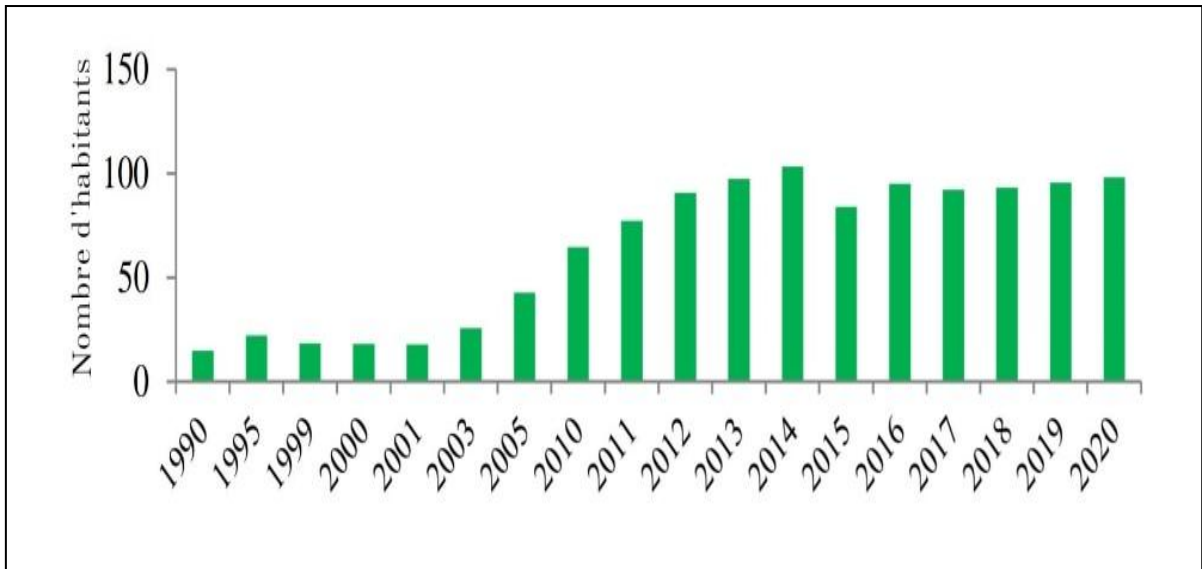
**Figure I.2 :** Marché pharmaceutique mondial par zone géographique en 2019 [17].

#### I.4 Consommation des médicaments en Algérie

Selon la figure (I.3) la consommation de médicaments a subi un accroissement soutenu de 1990 à 2020 et passe de 375 millions de dollars en 1990 à 4300 millions de dollars en 2020, soit une multiplication par 11 en l'espace de 30 ans. En plus de cela la consommation par habitant n'a pas cessé à son tour d'évoluer, passant de 22,54 à 103,24 dollars en 2014, soit une évolution de 358,03 % d'après la **figure (I.4)** [19].



**Figure I.3:** Evolution de la consommation des médicaments en Algérie entre 1990 et 2020 [19].



**Figure I.4:** Evolution de la consommation des médicaments par habitant en Algérie en dollar USD [20].

### I.5 Classes des produits pharmaceutiques retrouvés dans l'environnement

Actuellement plus de deux cent produits pharmaceutiques de différentes classes pharmaceutiques ont été détectés dans l'environnement [21]. Parmi ces classes les antibiotiques et les anti-inflammatoires non stéroïdiens (AINS) représentent la majorité des médicaments existant dans l'environnement, car sont des médicaments en vente libre couramment utilisés et sont considérés comme des médicaments les plus consommés à l'échelle mondiale [22].

Quelques classes des produits pharmaceutiques couramment retrouvé dans l'environnement sont résumées dans le tableau ;

**Tableau I.1:** Différentes classes des produits pharmaceutiques trouvés dans l'environnement [23].

Classe thérapeutique	Produits pharmaceutiques
AINS	Ibuprofen, Naproxen, Diclofenac, Ketoprofen
Antibiotiques	Sulfamethazine, Sulfamethoxazole, Sulphadimethoxine, Sulfadiazine, Penicillin G, Trimethoprim, Oxytetracycline, Tetracycline
Antibactérien	Carbadox
Hormones stéroïdes	17 $\alpha$ -Ethinylestradiol
Antidépresseur	Fluoxetine
Antidiabétique	Metformin, Gliclazide, Glyburide
Antihistamine	Diphenhydramine

### I.5.1 Les Anti-inflammatoires non stéroïdiens (AINS)

Les anti-inflammatoires non stéroïdiens constituaient un groupe hétérogène de substances qui permettaient de réduire ou de supprimer les conséquences de la réaction inflammatoire, ils agissent en inhibant plus ou moins sélectivement les iso-enzymes de la cyclo-oxygénase (COX) [24]. Très largement utilisées en raison de leurs propriétés anti-inflammatoires, antipyrétiques, antalgiques. Les AINS sont parmi les médicaments les plus fréquemment prescrits dans le monde, prescriptions auxquelles il convient d'ajouter une consommation de plus en plus importante via l'automédication [25].

### I.5.2 Ibuprofène (IBU)

Ibuprofène est l'un des produits pharmaceutiques polaires les plus détectés dans les eaux fluviales. De plus, il a également été trouvé dans les eaux souterraines à des concentrations allant jusqu'à 12  $\mu\text{g/l}$ , dans les eaux de surface et de rivière (de 4 à 2383  $\text{g/l}$ ) et dans les eaux de mer (0,07-121  $\text{ng/l}$ ) [26]. Il est utilisé en médecine humaine pour soulager l'inflammation et plusieurs types de douleur, notamment les maux de tête, les douleurs musculaires, les maux de dents, les maux de dos, la fièvre et l'arthrite. Il est

commercialisé sous divers noms commerciaux, par exemple Brufen, Advil, Nurofen, Upfen, Motri [27].

## **I.6 Impact environnemental des médicaments**

La présence des composés pharmaceutiques dans l'environnement, sous forme de principes actifs, est connue depuis les premières études effectuées sur les effluents des STEP [16] ou les milieux aquatiques [28].

À l'heure actuelle, plus de 4.000 molécules actives sont utilisées dans la formulation de médicaments, à destination humaine ou vétérinaire. Une fois consommées, ces substances et leurs métabolites sont rejetés par l'organisme et se retrouvent plus ou moins directement dans l'environnement [29].

### **I.6.1 impact sur les organismes aquatiques**

Les substances pharmaceutiques ont des toxicités létales et sublétales chez les organismes marins, à long termes et à des concentrations très faibles :

- Arrêt de développement foliaires et de la photosynthèse de certaines espèces des algues [30] ;
- Réduction de la survie et perturbation de la croissance des crustacés [31] ;
- Perturbation de système endocriniens chez les poissons et moules (féminisation des individus mâles sous l'effet des œstrogènes), des malformations pouvant entraîner la mort de l'individu, des retards de croissance... [31].

### **I.6.2 impact sur la santé humaine**

Les RM ont aussi été détectés dans les eaux potables, qui engendrent des effets non négligeables sur la santé humaine :

- Des perturbations notamment d'ordre hormonales, aux perturbateurs endocriniens [32] ;
- Blocages de la prolifération des cellules embryonnaires humaines par combinaison de l'ibuprofène avec d'autres médicaments environnementaux [33] ;
- L'ingestion de résidus d'antibiotiques dans l'environnement, modifiant le microbien humain et favorisant l'émergence et la sélection de résistances bactériennes dans le corps humain [34].

## I.7 Efficacité des stations d'épuration

Les stations d'épurations sont destinées à détruire la charge organique, présente dans les eaux de surfaces pour que les effluents en contiennent un minimum. Dans les STEP, la biodégradation conduit à des transformations très variables selon les molécules [17].

D'après le projet AMPERES (qui a pour but d'étudier l'élimination des molécules pharmaceutiques dans les STEP), les résultats montrent que 53 % des médicaments étudiés ont une élimination supérieure à 70 %. Les STEP n'ont donc pas une efficacité totale en ce qui concerne l'élimination des médicaments [35].

En dehors des problèmes d'efficacité des STEP vis-à-vis des résidus de médicaments, certains phénomènes néfastes peuvent aussi se produire :


- L'absence d'adsorption par les boues des substances les plus hydrophiles que l'on retrouve donc plus facilement à la sortie des stations ;
- La concentration de substances lipophiles par adsorption dans les boues qui peut poser un problème sanitaire si ces boues sont épandues à des fins agricoles,
- La réduction de médicaments acides.

## I.8 Conclusion

Actuellement la consommation des médicaments a largement sa part pour assurer la qualité des soins et la progression de vie humaine et animale.

Dénombrables molécules biologique actives sont utilisées pour la formulation de médicaments qui se retrouvent dans l'environnement après consommation ou élimination inappropriés sous forme de résidus sous forme de résidus médicamenteux et métabolites ceux qui constitues une vrai menace pour l'écosystème aquatique terrestre et aussi des impactes sur la santé humaine ,c'est pour cela que certaine recommandation sont décrites :

- Sécuriser le médicament à domiciles
- Utiliser moins de médicament ou inciter les médecins de prescrire un médicament avec la même efficacité mais moins polluant ;
- Récupération des MNU par les officines ;
- Renforcer la surveillance environnementale ;
- Optimisation des stations d'épuration.



**Dans un environnement qui change,  
Il n'y a pas de plus grand risque  
Que de rester immobile**

-Jacques Chirac-

# chapitre II: Généralités sur l'adsorption

## II.1 Introduction

Malgré les récents développements dans le domaine de traitement des eaux usées, l'adsorption reste une procédure fiable, pour éliminer une très grande diversité de polluants dans notre environnement [36]. Elle est essentiellement utilisée pour le traitement des eaux.

Ce procédé est basé sur les propriétés de certains matériaux susceptibles de fixer sur leur surface des molécules (gaz, ions métallique, molécules organique, etc.) d'une manière plus au moins réversible [37].

## II.2 Définition de l'adsorption

L'adsorption est un phénomène qui consiste en, accumulation d'une substance à l'interface entre deux phases (gaz-solide, gaz -liquide, liquide- solide, liquide-liquide, solide-solide) [38]. La surface de la phase qui attire les constituants de l'autre phase est appelée l'adsorbant, les molécules ainsi adsorbées constituent l'adsorbat [39].

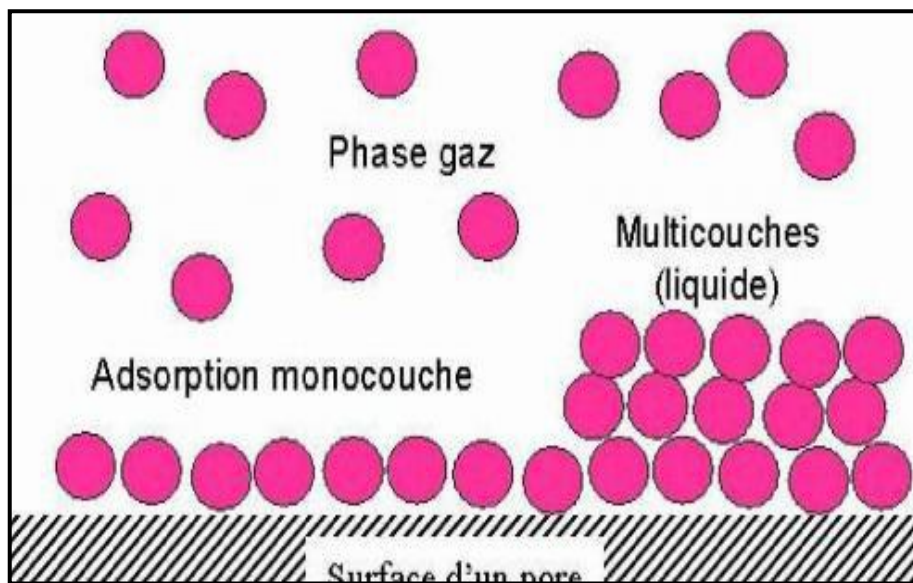


Figure II.1: Phénomène d'adsorption [40].

### II.2.1 L'adsorption physique

L'adsorption physique ou la physisorption est due aux forces électrostatiques entre le soluté et la surface solide. Elle met en jeu des énergies faibles. Ce type d'adsorption est exothermique.

### II.2.1 Adsorption chimique

Appelée également chimisorption. Elle met en jeu des liaisons chimiques covalentes. Contrairement à la physisorption la chimisorption est irréversible puisque les énergies mises en jeu sont importantes [41].

❖ Le tableau ci-dessous représente les principales différences entre la chimisorption et la physisorption :

**Tableau II.2** : Comparaison entre l'adsorption physique et l'adsorption chimique [42].

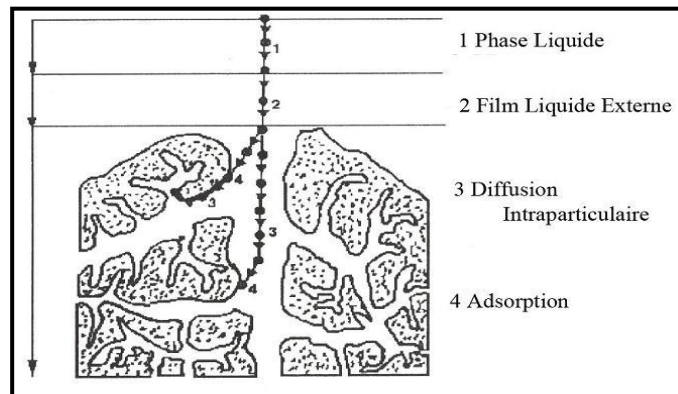
Propriétés	Adsorption physique	Adsorption chimique
Type de liaison	Liaison de Van Der Waals	Liaison chimique
Température de processus	Basse	Elevée
Désorption	Facile	Difficile
Cinétique	Rapide, indépendante de la température	Lente
Chaleur d'adsorption	Inférieur à 10 Kcal/mole	Supérieur à 10 Kcal/mole
Energie mise en jeu	Faible	Elevée
Etat de surface	Formation de monocouche	Formation de multicouche

### II.3 Description du mécanisme d'adsorption

L'adsorption se produit principalement en quatre étapes :

- a) Diffusion de l'adsorbat de la phase liquide externe vers la cellule située au voisinage de la surface de l'adsorbant.

- b) Diffusion externe de la matière (transfert du soluté à travers le film liquide vers la surface des grains).
- c) Transfert interne de la matière (transfert de la matière dans la structure poreuse de la surface extérieure des graines vers les sites actifs).
- d) Réaction d'adsorption au contact des sites actifs, une fois adsorbé, la molécule est considérée comme immobile [43].



**Figure II.2:** Les étapes d'adsorption sur un matériau poreux [44].

## II.4 Facteurs influençant sur l'adsorption

Le processus d'adsorption dépend de plusieurs paramètres qui peuvent influencer la capacité et la cinétique de la rétention d'un soluté sur un adsorbant. Il s'agit des paramètres suivants :

### ❖ Surface spécifique :

L'adsorption est proportionnelle à la surface spécifique, chaque fois qu'un solide est divisé en particules plus petites, il y a augmentation de la surface spécifique [45]. Elle varie généralement entre 600 à 1500 ( $m^2/g$ ).

### ❖ Nature de l'adsorbant :

La structure et la nature des adsorbants jouent un rôle important pour le piégeage des différents composés organique et inorganique présent dans les eaux, les adsorbants polaires adsorbent les molécules polaires et les solides apolaires adsorbent de préférence les solides apolaires [46].

- ❖ **Porosité:** c'est les interstices créés lors de l'activité de l'adsorbant. A chaque fois que celles ci s'allongent en profondeur et le nombre de pores augmente, sa porosité est importante qui est liées directement à sa capacité d'adsorption.
- ❖ **Nature de l'adsorbat:** d'après la règle de LUNDELIUS : « Moins une substance est soluble dans le solvant, mieux elle est adsorbée». Donc il faut rompre le lien entre la molécule et le solvant pour obtenir une meilleur adsorption [47].
- ❖ **Surface de contact:** à chaque fois que la surface de contact entre l'adsorbant et l'adsorbat est importante, l'adsorption augmente.
- ❖ **pH du milieu:** dans la plupart des cas, le pH acide favorise l'adsorption des anions alors que le milieu alcalin favorise celle des cations. De même une molécule neutre est mieux adsorbée qu'une molécule chargée [41].
- ❖ **Température:** l'adsorption est conditionnée par la température. L'augmentation de la température favorise les processus de chimisorption alors que son abaissement favorise l'adsorption physique [47].
- ❖ **Masse de l'adsorbant, concentration, temps de contact et la vitesse d'agitation**

## II.5 Les adsorbants

Un adsorbant est un matériau qui a été optimisé pour un certain type d'adsorption. Il n'existe pas une seule liste de caractéristiques permettant de définir un adsorbant, mais plutôt un très grand nombre de types de matériaux pouvant avoir des propriétés très différentes. Parmi ces dernières nous trouvons : la capacité d'adsorption, la cinétique d'adsorption, la morphologie de l'adsorbant, le cout financier et environnemental...et

### II.5.1 Le charbon d'origine végétale

Le charbon végétal est un matériau utilisé depuis très longtemps, il est préparé par pyrolyse d'une matière contenant du carbone, d'origine végétale.

Parmi les principaux matériaux nous trouvons la houille [48], les dérivés lignocellulosiques (les coques de noix de coco [49], les noyaux de dattes et d'olives...etc.)

Le charbon végétal reste un matériau de valeur, sa porosité, son vaste domaine d'application font de lui l'adsorbant le plus répandu.

## II.5.2 Préparation des charbons végétaux

En général, la préparation de charbon végétal s'effectue selon les étapes suivantes :

- **Séchage de la matière** : il se fait à une température de 110 °C.
- **Pyrolyse de la matière**: afin d'obtenir un résidu carboné presque pur, elle se fait à une température de 300 °C qu'on peut élever jusqu'à 600 °C [50].
- **Activation**: son but est d'augmenter le volume, délater les pores créés lors de la pyrolyse [51].

Il existe deux procédés d'activation :

- ❖ **L'activation physique** : consiste en une oxydation à haute température (750-1000 °C) de la carbonisation par un agent oxydant gazeux. Les gaz principalement utilisés, seuls ou en mélange, dans ce procédé sont l'air, la vapeur d'eau ainsi que le dioxyde de carbone [52].
- ❖ **L'activation chimique** : consiste à imprégner la substance carbonisée avec les réactifs déshydratants, parmi les réactifs utilisés nous trouvons : chlorure de zinc ( $ZnCl_2$ ), acide phosphorique ( $H_3PO_4$ ) et l'acide sulfurique ( $H_2SO_4$ ) [50].

## II.5.3 Régénération du charbon

Il existe quatre méthodes de régénération [53] :

### II.5.3.1 Régénération à la vapeur

Cette méthode est réservée à la régénération des charbons qui ont adsorbé des produits très volatiles. Elle sert à déboucher la surface des grains et désinfecter le charbon.

### II.5.3.2 Régénération thermique

Cette opération est réalisée par pyrolyse ou en brûlant les matières organiques adsorbées par le charbon aux alentours de 800 °C au sein d'une atmosphère contrôlée.

### II.5.3.3 Régénération chimique

Procédé utilisant un solvant à une température de 100 °C, avec un pH important. Ensuite les polluants sont détruits par incinération.

### II.5.3.4 Régénération biologique

Le fait expérimental demeure, en conditions aérobies les bactéries sont capables de minéraliser la matière organique du charbon.

## II.6 Isothermes d'adsorption

Les isothermes d'adsorption sont des courbes expérimentales qui représentent les variations (masse ou volume) du substrat adsorbé (gaz ou liquide), par poids d'adsorbant, en fonction de la concentration (en phase liquide) ou de la pression (en phase gazeuse) [51].

Nous obtenons de telles courbes à partir des résultats d'essais de laboratoire effectués à une température constante. Pour ce faire, on introduit des quantités connues d'adsorbant dans des volumes d'eau à traiter et, après un temps de contact donné, on mesure la concentration résiduelle de soluté en solution.

La quantité de soluté adsorbé est calculée à l'aide de l'équation [54] :

$$q_e = \frac{C_0 - C_e \cdot V}{m} \quad (\text{II.1})$$

Où :

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

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

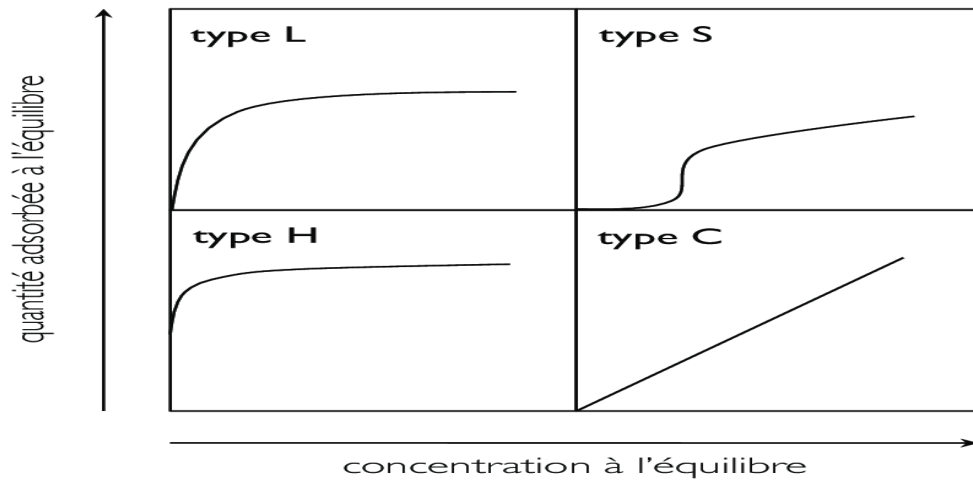
$q_e$  : Quantité de soluté adsorbé à l'équilibre par unité de poids de l'adsorbant (mg/g) ;

$m$  : Masse d'adsorbant (g) ;

$V$  : Volume de la solution (L).

### II.6.1 Classification des isothermes d'adsorption

Expérimentalement, Si l'adsorbat est une molécule en solution dans un solvant, nous distinguons quatre principales classes d'isotherme d'adsorption : la classe S (Sigmoide), la classe L (Langmuir), la classe H (Haute affinité) et la classe C (partition Constante) [55].



**Figure II.3 :** Classification d'isothermes d'adsorption selon Giles 1974

- **Type L :** Ce type de courbe est le plus fréquent, il s'obtient lorsque les forces d'attraction entre les molécules adsorbées sont faibles et les molécules de l'adsorbant sont orientées à plat ;
- **Type S :** S'obtient lorsque les molécules du soluté ne s'accrochent au solide, que par l'intermédiaire d'un seul groupement;
- **Type H :** S'obtient lorsqu'il y a chimisorption du soluté et aussi les interactions entre les molécules adsorbées et la surface du solide sont très fortes.
- **Type C :** Correspond à une isotherme linéaire. Ce type de courbe est obtenu lorsqu'il y a compétition entre le solvant et le soluté pour occuper les sites de l'adsorbant [56].

## II.6.2 Modèle d'isotherme d'adsorption

Plusieurs modèles ont été développés afin d'étudier l'équilibre de l'adsorption. Ces modèles décrivent la relation entre la masse d'adsorbant fixée à l'équilibre et la concentration sous laquelle a lieu [57].

### II.6.2.1 Isotherme de Langmuir

L'isotherme de Langmuir le plus couramment appliquée a été relevée pour représenter l'adsorption gaz-solide [58]. Cette théorie implique en fait :

- L'adsorption se produit en monocouche, pas de formation multicouche ;
- Chaque site ne peut adsorber qu'une seule molécule ;
- L'énergie d'adsorption est constante sur tous les sites ;
- L'absence d'interaction entre molécules adsorbées.

L'isotherme de Langmuir est représentée par l'équation suivant

$$\frac{q_e}{q_m} = \frac{b \cdot C_e}{1 + b \cdot C_e} \quad (\text{II.2})$$

$q_e$  : quantité adsorbée à l'équilibre (mg/g) ;

$q_m$  : quantité maximale adsorbée à la saturation de la monocouche ou capacité maximale d'adsorption (mg/g) ;

$C_e$  : concentration à l'équilibre (mg/L) ;

$b$  : constante reliée à l'énergie libre d'adsorption (1/mg) [59].

La linéarisation de cette équation (II.2) s'écrit [60] :

$$\text{Langmuir I: } \frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{b q_m} + \frac{C_e}{q_m} \quad (\text{II.3})$$

$$\text{Langmuir II : } \frac{1}{q_e} = \frac{1}{q_m} + \frac{1}{b \cdot q_m} + \frac{1}{C_e} \quad (\text{II.4})$$

$$\text{Langmuir III : } q_e = -\frac{q_e}{b C_e} + q_m \quad (\text{II.5})$$

$$\text{Langmuir IV : } \frac{q_e}{C_e} = -b q_e + b q_m \quad (\text{II.6})$$

L'isotherme de Langmuir peut être caractérisée par le rapport  $R_L$  rapport adimensionnel

$$\text{définie par : } R_L = \frac{1}{1 + b \cdot C_0} \quad (\text{II.7})$$

Si  $R_L > 1$  les conditions d'adsorption sont défavorables ;

Si  $R_L < 1$  les conditions d'adsorption sont favorables ;

Si  $R_L = 0$  l'adsorption est irréversible [61-62].

### II.6.2.2 L'isotherme de Dubinin-Radushkevich

Le modèle Dubinin Radushkevich a été proposé comme isotherme empirique pour représenter l'adsorption des vapeurs sur les solides microporeux [63]. Elle suppose une surface hétérogène et elle est exprimée par l'équation

$$q_e = q_m * e^{(-\beta\varepsilon^2)} \quad (\text{II.8})$$

La linéarisation de l'équation (II.9) s'écrit :

$$\ln q_e = \ln q_m - \beta\varepsilon^2 \quad (\text{II.9})$$

Avec ;

$q_e$  : Quantité adsorbée à l'équilibre (mg/g) ;

$q_m$  : Capacité maximale adsorbée (mg/g) ;

$\beta$  : Constante du modèle ( $\text{mol}^2 \cdot \text{KJ}^{-2}$ ) ;

$\varepsilon$  : Potentiel d'adsorption basé sur la théorie de potentiel de Polanyi ( $\text{KJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) ;

$K$  : Constante liée à l'énergie d'adsorption ( $\text{mol}^2 \cdot \text{J}^{-2}$ );

$R$  : Constante des gaz parfaits et  $T(\text{K})$  la température absolue ( $\text{J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$ ).

$$\varepsilon = RT \ln\left(1 + \frac{1}{C_e}\right) \quad (\text{II.10})$$

### II.6.2.3 L'isotherme de Freundlich

$$q_e = K_f * C_e^{\frac{1}{n}} \quad (\text{II.11})$$

La linéarisation de l'équation (II.11) s'écrit :

$$\ln q_e = \ln K_f + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (\text{II.12})$$

$q_e$  : Quantité de soluté adsorbée par gramme d'adsorbant à l'équilibre (mg/g).

$C_e$  : Concentration du soluté dans la solution à l'équilibre (mg/L) ;

$K_F$  : Constante de Freundlich (L/g) ;

$1/n$  : Constante de mesure de l'intensité de l'adsorption ou de l'hétérogénéité de la surface [64].

#### II.6.2.4 L'isotherme de Temkin

Le modèle de Temkin repose sur l'hypothèse que, lors de l'adsorption en phase gazeuse la chaleur différentielle d'adsorption est linéaire et inversement proportionnelle au taux de recouvrement [65]. Le modèle de Temkin est présenté de la forme :

$$q_e = \frac{RT}{\Delta Q} \ln(K_T \cdot C_e) \quad (\text{II.13})$$

La linéarisation de l'équation (II.13) s'écrit sous la forme :

$$q_e = \frac{RT}{\Delta Q} \ln K_T + \frac{RT}{\Delta Q} \ln C_e \quad (\text{II.14})$$

Avec ;

$q_e$  : Quantité adsorbée à l'équilibre en (mg/g) ;

$C_e$  : Concentration du colorant à l'équilibre (mg/L) ;

$\Delta Q$  : Variation de l'énergie d'adsorption (kJ/mol) ;

$K_T$  : Constante de Temkin (L/mg) ;

$R$  : Constante universelle des gaz parfaits (8.314 J. /mol.K) et  $T$  est la température absolue en (K).

#### II.6.3 Cinétique d'adsorption

Certains modèles cinétiques ont été développés pour décrire le transfert de matière à l'interface liquide-solide. Ils permettent de déterminer le temps de contact d'équilibre d'adsorption et d'évaluer la vitesse de la réaction. Parmi les modèles les plus étudiés qui ont été rapportés dans littérature. Nous pouvons citer les deux suivants [66] :

**II.6.3.1 Modèle pseudo-premier ordre : (Lagergren, 1898)**

- L'équation de vitesse décrivant la cinétique d'adsorption du couple adsorbant-adsorbant ;
- L'équation est basée sur la quantité adsorbée ;
- Le modèle n'est applicable que dans les premières minutes du phénomène d'adsorption ;

L'équation de ce modèle se présente sous cette forme [67] :

$$q_t = q_e \cdot (1 - e^{-k_1 t}) \quad (\text{II.15})$$

La linéarisation de l'équation (II.15) s'écrit :

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (\text{II.16})$$

Avec ;

$k_1$  : Constante de vitesse ( $\text{min}^{-1}$ ).

$q_e$  : Capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g).

$q_t$  : Capacité d'adsorption à l'instant t (mg/g).

**II.6.3.2 Modèle pseudo second-ordre :(Blanchard 1984)**

- La vitesse d'adsorption de pseudo second ordre dépend de la quantité adsorbée sur la surface de l'adsorbant et de la quantité adsorbée à l'équilibre ;
- Le modèle décrit le phénomène de la chimisorption.

L'équation de ce modèle est présentée de la forme [68] ;

$$q_t = \left( \frac{K_2 \cdot q_e^2 \cdot t}{K_2 \cdot q_e \cdot t + 1} \right) \quad (\text{II.17})$$

La linéarisation de l'équation (II.17) s'écrit :

$$\frac{t}{q_t} = \frac{t}{q_e} + \frac{1}{K_2 q_e^2} \quad (\text{II.18})$$

Avec ;

$K_2$  : Constante de vitesse de réaction (g/mg/min) ;

$q_e$  : Quantité adsorbée à l'équilibre (mg/g) ;

$q_t$  : Quantité adsorbée à l'instant t (mg/g).

# Chapitre III: Matériel et méthodes

### III.1 Introduction

Ce chapitre décrit la partie expérimentale réalisée au sein du laboratoire chimie appliquée et génie-chimique (LCAGC), de l'université de Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou. Elle désigne le processus de l'adsorption, le mode opératoire de préparation des bio-adsorbants à base de grignons et de noyaux de dattes, et l'adsorbat (solution d'ibuprofène), ainsi les caractérisations physico-chimiques et analyses spectrales.

### III.2 Préparation de l'adsorbat-adsorbant

#### III.2.1 Matériel et produits utilisés

##### ❖ Solution et réactifs :

- Solution d'Algifen (Ibuprofène 20 mg/ml) de Genericlab ;
- Acide chlorhydrique HCl, (36.5-38 %) de Sigma-Aldrich,
- Hydroxyde de sodium NaOH (98 %), (D : 2.13g/cm<sup>3</sup>), (M :40 g/mol) de Chem-Lab NV ;
- Chlorure de sodium NaCl ;(99 %), (M : 58.44 g/mol) de Sigma-Aldrich ;
- Solvant (eau distillée).

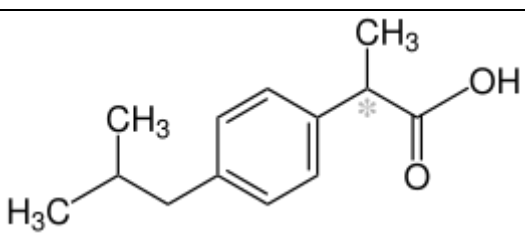
##### ❖ Appareils

- Balance analytique Pioneer<sup>TM</sup> de marque OHAUS de précision 0.0001 g ;
- Agitateur magnétique multipostes de marque DAIHAN Scientific MSMP8 ;
- Centrifugeuse de marque Hettich Zentrifugen (D-78532 Tuttlingen) ;
- Spectrophotomètre UV-Visible de marque UV-1800 -SHIMADZU ;
- pH mètre de marque HANNA instrument (type-pH211) ;
- Four de calcination de marque Linn High Therm VMK10 ;
- Moulin à café de marque SKANEX ;
- Moulin en pierre manuelle ;
- Etuve de laboratoire de marque Memmert 854 Schwabach ;
- BET de marque Quantachrome Instruments (NOVA 2000e).

### III.2.2 L'adsorbat Ibuprofène

#### III.2.2.1 Caractéristiques physico-chimiques de l'ibuprofène

**Tableau III.1** : caractérisation physico-chimique d'IBU [69- 60- 71]

Nomenclature	l'acide alpha-méthyl-[4-(2-méthylpropyl) phényl] propénoïque
Formule chimique	C <sub>13</sub> H <sub>18</sub> O <sub>2</sub>
Structure	
Poids moléculaire (g/mol)	206,280 g/mol
Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	0,2 à 0,6
Solubilité (mg/ml)	0,043 mg·ml <sup>-1</sup> eau à 37 °C. Soluble dans la plupart des solvants organiques
Log Kow	3.97
Log Koc (L/kg)	2.60
Pka	4.5
T°fusion	76 °C

- ❖ Kow : Coefficient de partition octanol-eau (Octanol - water partition coefficient) ;
- ❖ Pka : constante de dissociation ;
- ❖ Koc : Coefficient de octanol / carbone organique (Coefficient de octanol / carbone organique).

#### III.2.2.2 Préparation de la solution d'IBU

Le polluant pharmaceutique utilisé dans cette étude est un générique d'ibuprofène qui comporte le nom d'Algifen suspension buvable 20mg /ml. Pour préparer la solution mère de ce polluant nous procédons à sa dilution dans un volume d'un litre et pour obtenir des concentrations plus faibles on continue à diluer la solution mère, (à noter que le solvant est l'eau distillée).



**Figure III.1 :** Solution d'Ibuprofène (1g/L)

### III.2.2.3 Analyse par spectroscopie UV-visible [72]

La spectroscopie **UV – Visible** étudie le spectre compris entre 200 et 800 nm. Le domaine spectral de l'UV-Visible est largement exploité en analyse quantitative. Les mesures reposent sur la loi de Beer-Lambert qui relie, moyennant certaines conditions, l'absorption de la lumière par un composé à sa concentration.



**Figure III.2 :** Spectrophotomètre UV-Visible

La loi de Beer Lambert :  $A = \log\left(\frac{I_0}{I}\right) = \epsilon lc$  (III.1)

Avec ;

A : Absorbance.

$\frac{I_0}{I}$  : Transmittance de la solution ;

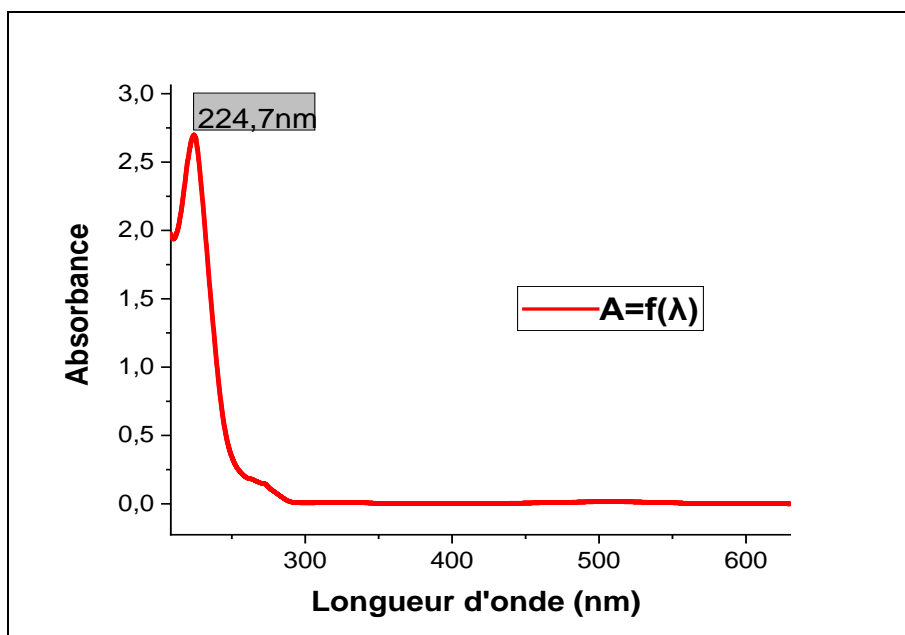
I : Intensité du faisceau émergent ;

$I_0$  : Intensité du faisceau incident ;

$\epsilon$  : Coefficient spécifique d'absorption massique dépendant du composé et de la longueur d'onde considérée ( $L \cdot cm^{-1} \cdot g^{-1}$ ) ;

c : Concentration massique du composé dosé (g/L) ; l : Epaisseur de la cuve (cm).

Après avoir fait passer un échantillon d'ibuprofène au balayage de spectrophotométrie, nous avons pu déterminer le domaine d'adsorption qui est l'ultraviolet entre (190nm-400nm) à une longueur d'onde  $\lambda_{max} = 224.7nm$ .



**Figure III.1** : Absorbance d'Ibuprofène en fonction de la longueur d'onde

### III.2.2.4 Courbe d'étalonnage

Elle consiste au dosage du polluant médicamenteux Ibuprofène par spectrométrie UV-visible. Tout d'abord on prépare une solution mère d'Ibuprofène de concentration (1g/L), puis on effectue une série de dilution de cette solution (de 10 à 100mg/L) et par la suite on fera analyser par spectrophotométrie UV-visible (UV-1800 –SHIMADZU) pour une longueur d'onde fixée ( $\lambda_{max} = 224.7nm$ ).

La courbe d'étalonnage (Figure III.2) est obtenue en variant l'absorbance en fonction de la concentration du médicament Ibuprofène. L'équation de la droite obtenue est de la forme  $A=0.011*C$  (A : absorbance ; C : concentration) avec un très bon coefficient de régression  $R^2=0.0997$ .

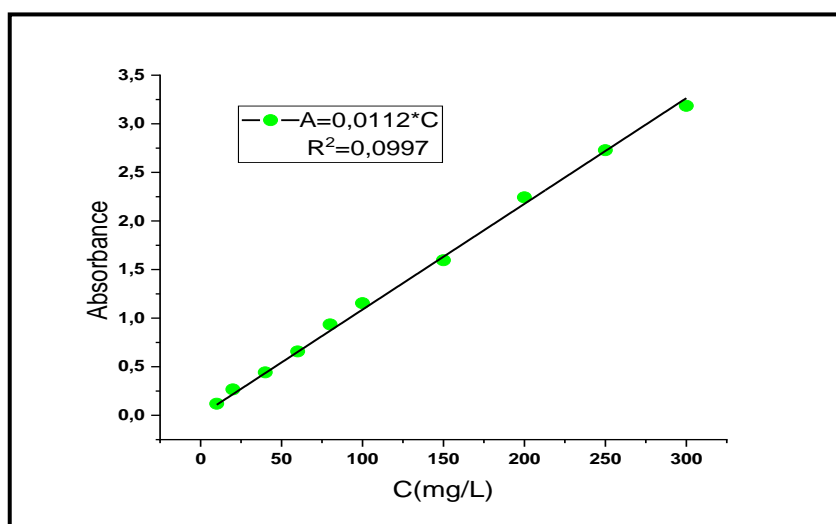


Figure III.2 : Courbe d'étalonnage d'Ibuprofène ( $\lambda_{max}=224.7nm$ )

### III.3 Préparation de l'adsorbant

L'adsorbant utilisé dans cette étude est le charbon synthétisé à partir de déchets agricoles grignons d'olives (GO) et noyau de dattes (ND). La préparation de ces deux matériaux se fait selon les étapes suivantes :

- **Lavage** : les GO et ND sont préalablement lavés avec de l'eau chaude pour retirer les impuretés, les poussières et des résidus de la pulpe jusqu'à l'obtention d'une eau claire ;
- **Séchage** : après le lavage les GO et ND sont mis dans l'étuve à  $105^{\circ}C$  pendant 24h ;

- **Broyage et tamisage** : grâce au moulin à café et au moulin traditionnel les deux matériaux sont broyés afin d'obtenir deux différents matériaux homogènes de taille de grains très petits puis tamiser pour séparer les gros grains des petits et récupérer deux masses de taille uniforme ;
- **Pyrolyse** : enfin en dernière étape les deux matériaux sont placés dans un four (de marque Linn High Therm VMK10) en absence d'oxygène en commençant par une température de 350°C jusqu'à 600°C pendant 2h, pour permettre la décomposition chimique de la matière organique. Après pyrolyse on obtient un charbon presque pur (CGO et CND).

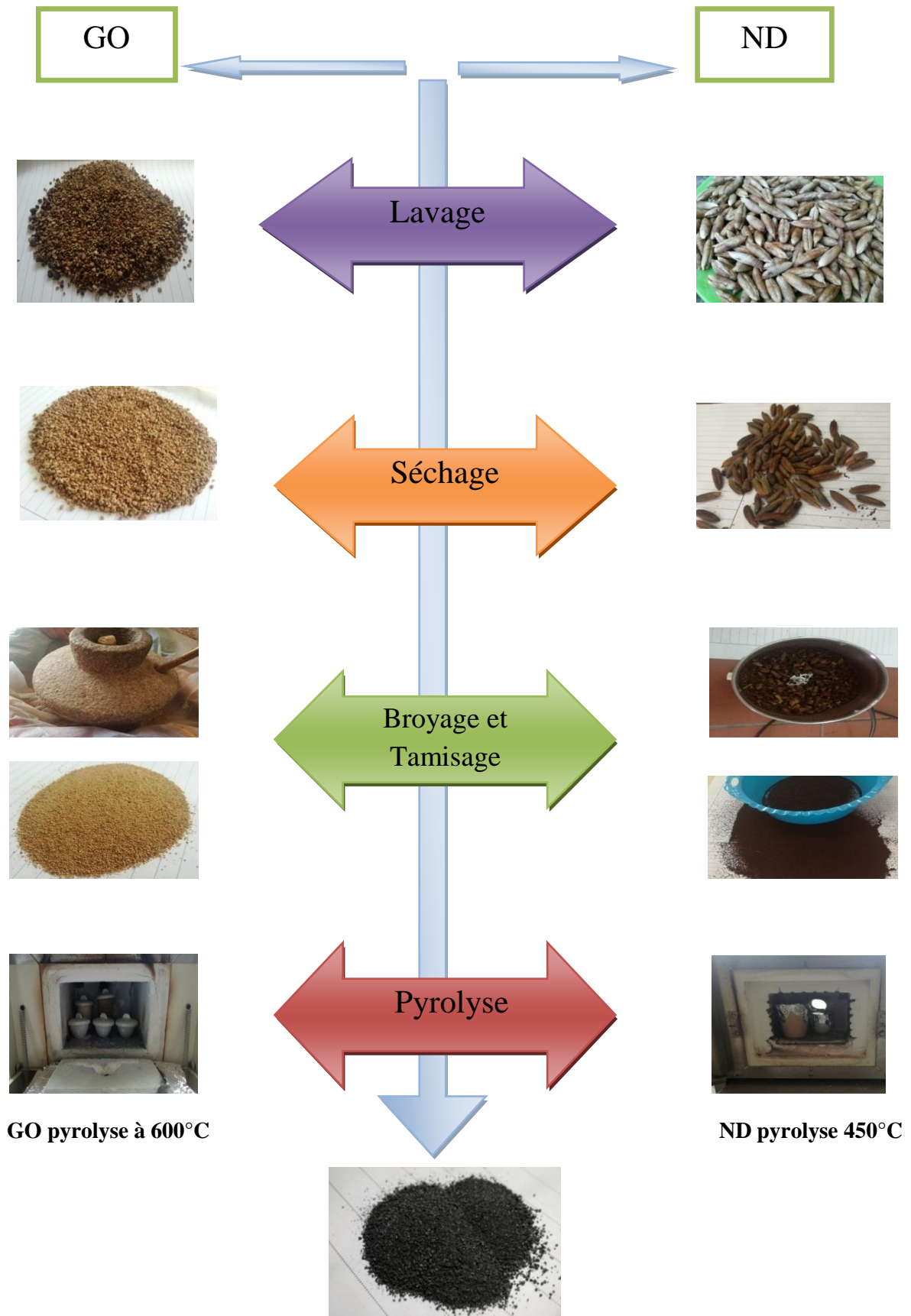


Figure III.3 : Schéma résumant les étapes de préparation de CGO et CND

### III.4 Caractérisation des adsorbants utilisés

#### III.4.1 Analyses physico-chimiques

##### III.4.1.1 Taux d'humidité

C'est un rapport exprimé en pourcentage, il consiste à sécher l'adsorbant dans une étuve à 105 °C jusqu'à ce que son poids reste constant. Il est calculé par la relation suivante [73] :

$$H (\%) = \frac{M_0 - M_1}{M_0} \times 100 \quad (\text{III.2})$$

Avec ;

$m_0$  : Masse d'adsorbant avant le séchage (g) ;

$m_1$  : Masse de l'adsorbant après séchage (g).

##### III.4.1.2 Taux de cendre

Il permet de connaître la part de la matière minérale dans l'adsorbant

###### ❖ Mode opératoire

On pèse 2g d'adsorbant sec, et on l'introduit dans un creuset à calcination, on le place ensuite dans un four à 550 °C pendant 2 heures. Après refroidissement, on pèse à nouveau le creuset. On exprime le taux de cendre par l'équation suivante [67] :

$$C(\%) = \left( \frac{P_2}{P_1} \right) \times 100 \quad (\text{III.3})$$

Avec

$P_1$  : Poids d'adsorbant avant calcination(g) ;

$P_2$  : Poids de l'adsorbant après calcination(g).

### III.4.1.3 La densité apparente

La densité apparente est l'ensemble des fractions solides et pores. On introduit une quantité de grignon d'olive et de noyau de datte dans une éprouvette graduée ( $V=10\text{ml}$ ), soit  $P_0$  le poids de l'éprouvette vide et  $P_1$  le poids de l'éprouvette remplie [74].

La densité apparente est donnée par la relation suivante :

$$D(\%) = \frac{(P_1 - P_0)}{10} \quad (\text{III.4})$$

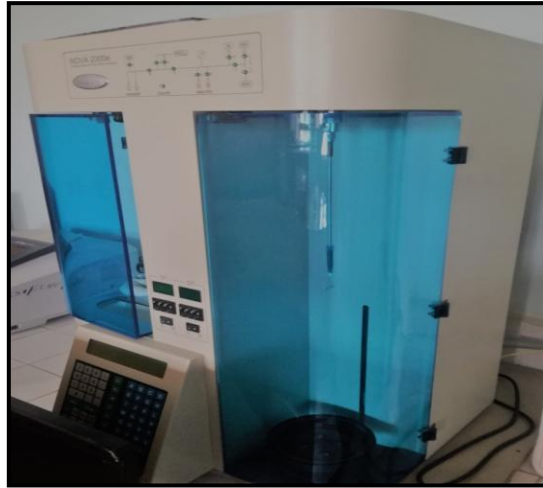
### III.4.1.4 Le pH de point de charge nulle ( $\text{pH}_{\text{pzc}}$ )

Le point de charge nulle est un paramètre qui correspond au pH pour lequel la surface du solide présente une charge nulle. La détermination de  $\text{pH}_{\text{pzc}}$  se fait par la méthode de **Tran et al., 2017** qui consiste à introduire 50ml de solution NaCl (0.01M) dans des flacons fermés et ajuster le pH de chacun (valeurs comprise entre 2; 4; 6; 8 ; 10 et 12) par ajout de solution NaOH ou HCl, ensuite nous ajoutons 0.05g d'adsorbant (CND et CGO) à caractériser pour chaque flacon.

L'ensemble est laissé sous agitation pendant 24 h à température ambiante. Le pH final est alors déterminé. En fin, on trace  $\text{pH}_i = f(\text{pH}_i)$  et  $\text{pH}_i = f(\text{pH}_f)$ , nous obtenons une droite et une courbe. Le point d'intersection entre la courbe et la droite c'est le  $\text{pH}_{\text{pzc}}$ .

### III.4.2 Analyse texturale par la méthode multipoint BET

Cette technique nous permet d'avoir des informations à propos de la texture des solides poreux par adsorption-désorption d'azote. Les courbes d'isothermes obtenus nous renseignent sur la classe du matériau analysé (micro, méso ou macroporeux), le volume poreux et la surface spécifique. Cette dernière est estimée à partir de la quantité d'azote adsorbée [75].



**Figure III.4 :** Analyseur de surface BET

## III.5 Optimisation des conditions opératoires

### III.5.1 Effet de pH

Afin d'étudier l'effet de pH sur l'adsorption d'ibuprofène par le charbon de grignon d'olives (CGO) et de noyau de dattes (CND), nous avons effectué une série d'expériences pour un domaine de pH variant de 2 à 12 (ce dernier est ajusté par addition de HCl ou NaOH sous agitation). Les réactions ont été réalisées sous les conditions opératoires suivantes :

- Masse de l'adsorbant : 0.2 g CGO ,0.15 g CND ;
- Concentration de l'adsorbant : 80 mg/L, 40 mg/L ;
- Volume de la solution : 50 ml ;
- vitesse d'agitation : 350 tr/min ;
- temps d'agitation : 120 min ;
- Température ambiante ( $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$ ).

### III.5.2 Effet de la masse d'adsorbant

La masse de l'adsorbant est un paramètre très important pour l'évolution de la capacité d'adsorption. Afin de déterminer la masse optimale nous avons varié la dose des deux différents adsorbants (CND et CGO) de 0.05 à 0.4 g, sous les mêmes conditions opératoires précédentes et avec un pH déjà optimisé pour chaque adsorbant.

### III.5.3 L'effet de la concentration initiale

Afin d'étudier l'influence de la concentration initiale sur la capacité d'adsorption d'ibuprofène, nous avons réalisé une gamme d'expérience à différentes concentrations allant de 10 à 300 mg/L avec un pH et une masse déjà optimisés pour les deux différents adsorbants. L'ensemble est laissé sous agitation pendant 4 h.

### III.6 Calcul de la quantité adsorbée

La quantité adsorbée et le rendement d'élimination sont donnés par les équations suivantes :

$$q_t = \frac{C_0 - C_t}{m} \times V \quad (\text{III.4})$$

$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} \times V \quad (\text{III.5})$$

$$R(\%) = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (\text{III.6})$$

Avec ;

$q_t$ : Quantité adsorbée à l'instant t (mg/g) ;

$q_e$ : Quantité adsorbée à l'équilibre (mg/g) ;

V : Volume de l'adsorbant (L) ;

m : Masse de l'adsorbant (g) ;

$C_0$  : Concentration initiale de la solution (mg/L) ;

$C_t$  : Concentration à l'instant t (mg/L) ;

$C_e$  : Concentration résiduelle.

### III.7 Cinétique d'adsorption

Le temps de contact est un paramètre très important, permet la détermination de la vitesse d'élimination de l'adsorbat et par conséquent l'évolution de la capacité d'adsorption de l'adsorbant. L'étude de la cinétique d'adsorption de l'ibuprofène par les deux adsorbants (CND et CGO) a été réalisée pour une durée maximale de 360 min.

Nous préparons une solution d'algifène d'une concentration  $C_0$  (déjà déterminée), un pH et une masse déjà optimisée qu'on verse dans un grand bécher. L'adsorption est effectuée en mettant la solution en contact avec une masse connue de CGO et CND sous agitation pendant 180min à température ambiante.

Des prélèvements ont été réalisés chaque 5 min (0 à 30 min), ensuite chaque 10min (30 à 60 min) puis chaque 20min (60 à 180 min) et enfin chaque 30min (180 à 360 min), les échantillons ont été filtrés directement à l'aide d'une centrifugeuse et analysés par spectroscopie UV-Visible.

# Chapitre IV: Résultats et discussion

## IV.1 Caractérisation des adsorbants utilisés

### IV.1.1 Les résultats des analyses physico-chimiques et spectrales

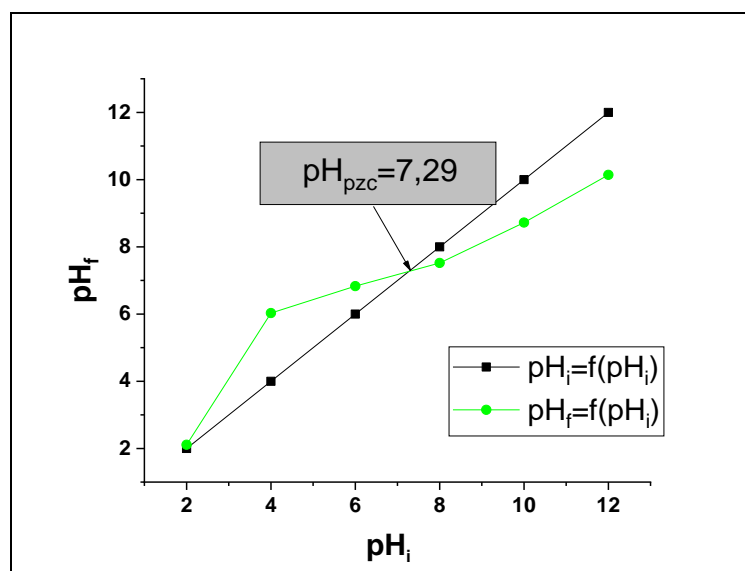
Les analyses physico-chimiques étudiées sont indiquées dans le tableau ci-dessous :

**Tableau IV.1** : Caractérisation des adsorbants CND et CGO

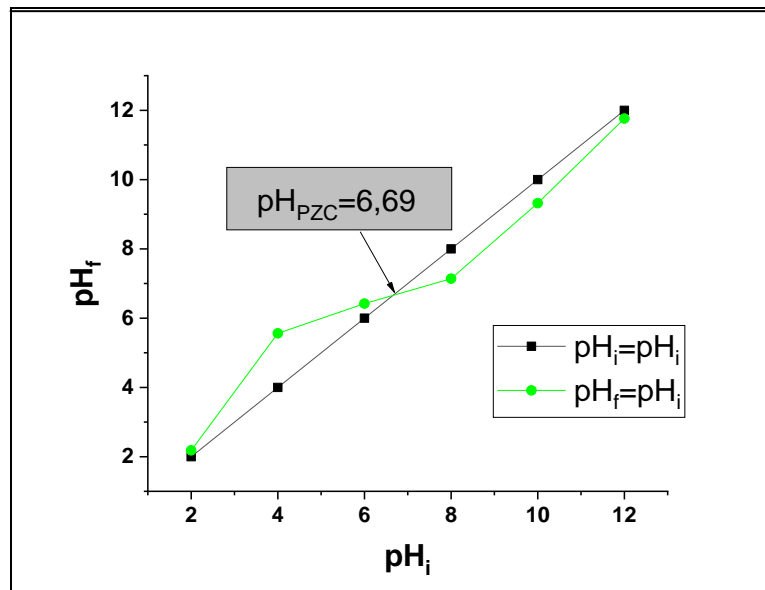
Paramètres	CND	CGO
Taux d'humidité (%)	1.72	2.33
Taux de cendre (%)	1.2299	1.84
La densité apparente (%)	0.758	0.824
Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)	22.211	306.206

Les résultats obtenu ont montré que le taux d'humidité des deux différents adsorbants est inférieur à 5 % ce qui nécessite pas un séchage avant l'utilisation. Les charbons caractérisés possèdent un taux de cendre très faible ce qui montre que les adsorbants ont une matrice organique importante. [76-77].

### IV.1.2 Point de charge nulle



**Figure IV.1** : Point de charge nulle de CGO



**Figure IV.2:** Point de charge nulle CND

Le point de charge nulle, en anglais « point of zero charge pzc » est défini comme la valeur du pH à laquelle la charge de surface nette d'un adsorbant soit nulle [78]. Il permet de déterminer le caractère acide ou basique d'un adsorbant en solution. Le  $\text{pH}_{\text{pzc}}$  est un paramètre très important dans le phénomène d'adsorption. Nous constatons que les résultats obtenus sont représentés dans les deux figures (IV.1 et IV.2), le  $\text{pH}_{\text{pzc}}$  de CGO est égale à 7.29 et celui de CND égale à 6.69. La charge nette se définit grâce au pH de la solution aqueuse dans laquelle la surface de l'adsorbant existe c'est-à-dire

- Si  $\text{pH}_{\text{sol}} < \text{pH}_{\text{PZC}}$  alors la charge nette des matériaux est positive ;
- Si  $\text{pH}_{\text{sol}} > \text{pH}_{\text{PZC}}$  alors la charge nette des matériaux est négative.

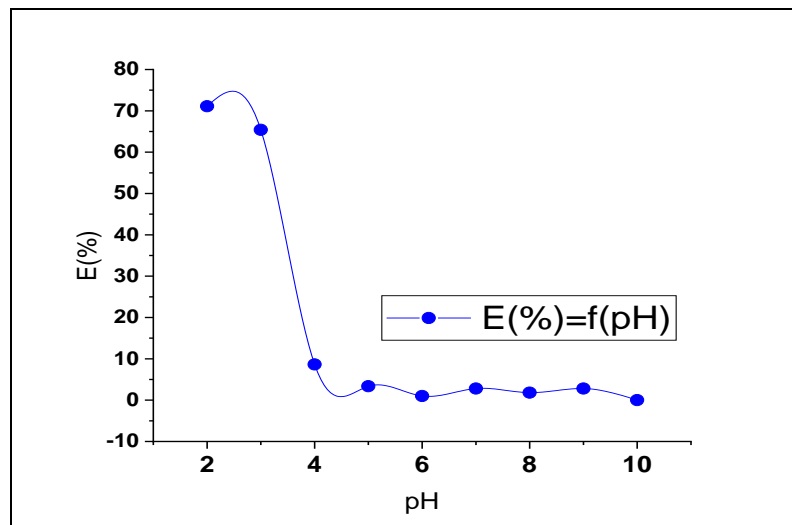
## IV.2 Résultats de l'étude paramétrique

### IV.2.1 Effet de pH initial de la solution

L'élimination de l'IBU par adsorption dépend grandement du pH c'est pourquoi l'influence de ce paramètre a été examinée en détail.

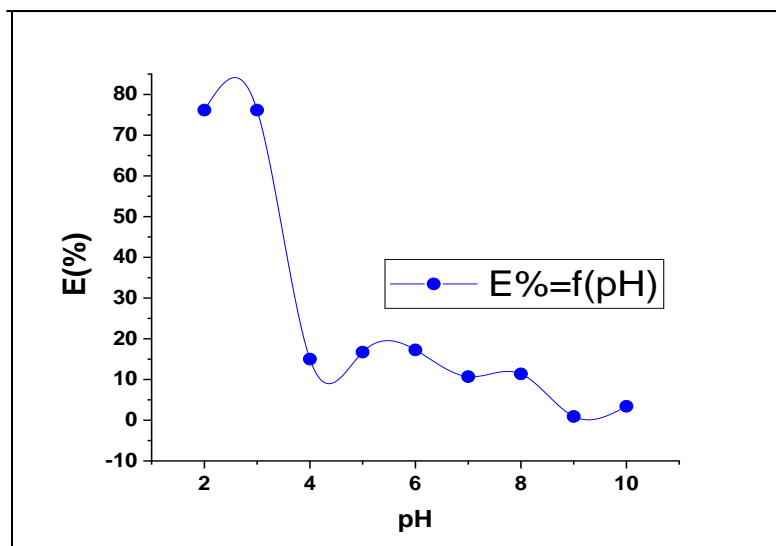
Au cours de l'étude expérimentale, le pH a été varié de 2 à 12 pour une solution de concentration de 80 mg/L pour le CGO et 40 mg/L pour le CND.

- D'après les figures (IV.3 et IV.4) nous constatons que les taux d'éliminations sont respectivement de 71.1% pour CGO (pH=2) et 76.15% pour CND (pH=3) et ceci peut être justifié par la présence des forces non covalentes physiques.
- $pK_{a_{IBU}} < pH < pH_{pzc}$  : un taux d'abattement faible qui est dû à la compétition des ions  $OH^-$
- $pH_{pzc} < pH$  : un rendement très faible qui peut être expliqué par les interactions électrostatiques de répulsion, de plus les interactions  $OH^-$  sont mineures.



**Figure IV.3 :** Effet de pH sur l'adsorption de l'IBU Par CGO

( $C_0=80$  ppm,  $m=0.1$ g,  $v=50$ ml)



**Figure IV.4 :** Effet de pH sur l'adsorption de l'IBU par CND

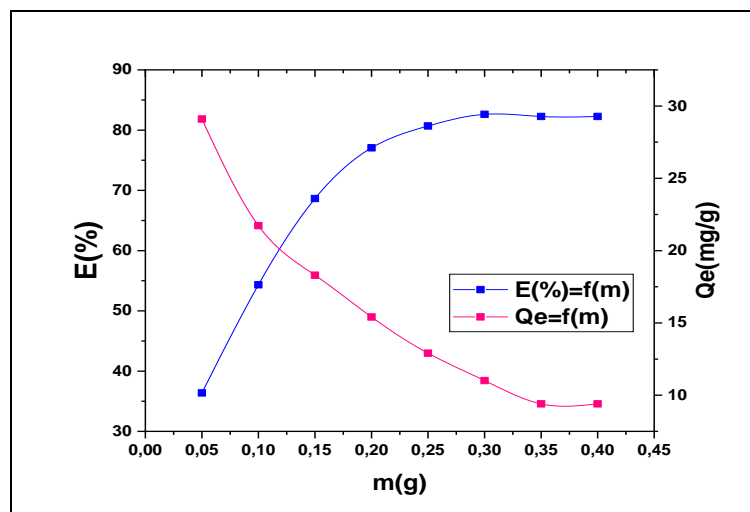
( $C_0 = 40$  ppm,  $m = 0.1$ g,  $v = 50$ ml)

#### IV.2.2 Effet de la masse d'adsorbant

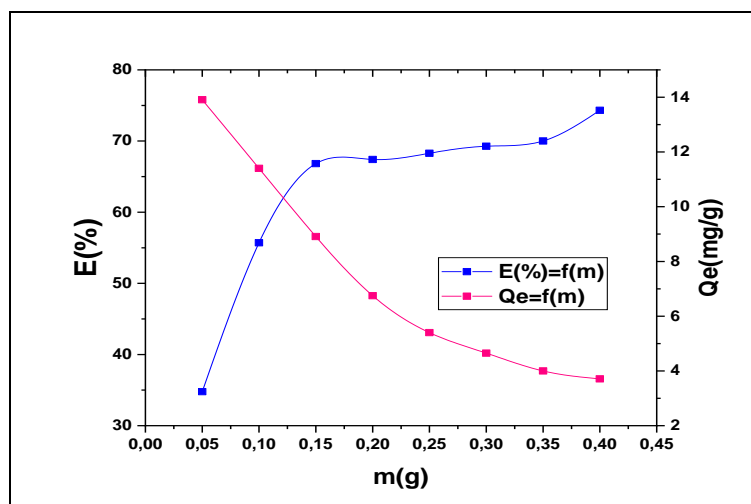
La dose de l'adsorbant est un paramètre très important dans le processus d'adsorption. En raison de son influence, l'adsorption de l'IBU a été effectuée en faisant varier la masse de charbon de 0.05 à 0.4 g à un pH optimal (pH=2 pour CGO et pH=3 pour CND). Les résultats sont montrés dans les deux figure ci-dessous (Figure IV.5 et figure IV.6) ;

La quantité d'Ibuprofène adsorbée diminue lorsque la masse de charbon augmente donc nous pouvons dire que la capacité d'adsorption est inversement proportionnelle à la dose d'adsorbant. Cela peut être expliqué par la non saturation des sites d'adsorption [79].

Le taux maximal d'élimination d'IBU est d'environ 77.05 % pour une masse de 0.2 g de CGO et de 66.82 % pour une masse de 0,15 g de CND. En effet l'efficacité d'élimination augmente avec la masse de l'adsorbant ceci est due à l'augmentation de la surface active et la disponibilité des sites d'adsorption [80]. Au delà de ces deux masses le taux d'adsorption est devenu stable, formation d'un palier de saturation.



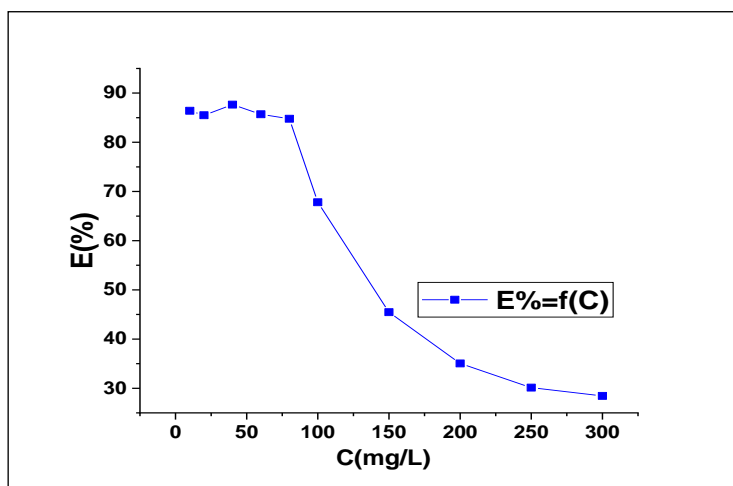
**Figure IV.5 :** Effet de masse de CGO sur le taux d'élimination et la quantité d'adsorption d'IBU (pH=2,  $C_0=80$ ppm,  $v=50$ ml)



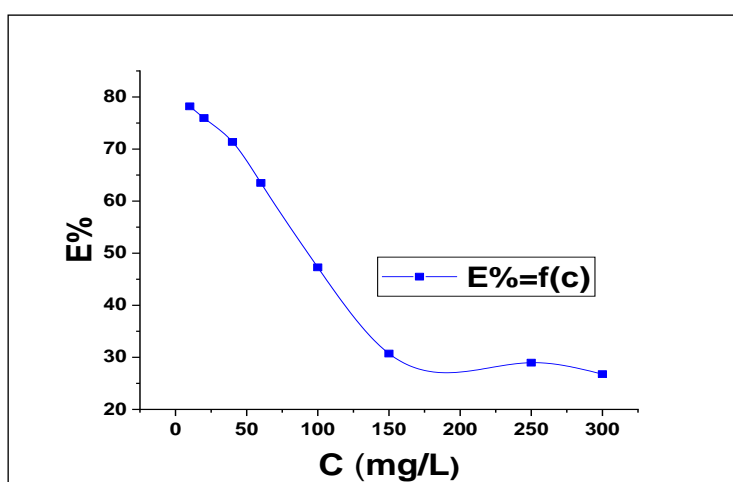
**Figure IV.6 :** Effet de masse de CND sur le taux d'élimination et la quantité d'adsorption d'IBU (pH=3,  $C_0=40$ ppm,  $v=50$ ml)

### IV.2.3.Effet de la concentration initiale d'IBU

Les résultats illustrés dans les figures IV.7 et IV.8 montrent que l'efficacité d'élimination d'IBU diminue avec l'augmentation des concentrations initiales en polluants. Passant de 86.4%(10 ppm) à 28.44%(300 ppm) pour le CGO et de 78.2%(10 ppm) à 17.04%(300 ppm) pour le CND. En effet a des concentration plus élevés, la présence de molécule du soluté de l'adsorbat sur le site actif du matériau était suffisamment importante, cela induit à une saturation des sites actifs de sorption [81].



**Figure IV.7 :** Effet de la concentration initiale d'adsorption d'IBU sur CGO (pH=2,  $C_0=80$ ppm,  $v=50$ ml)



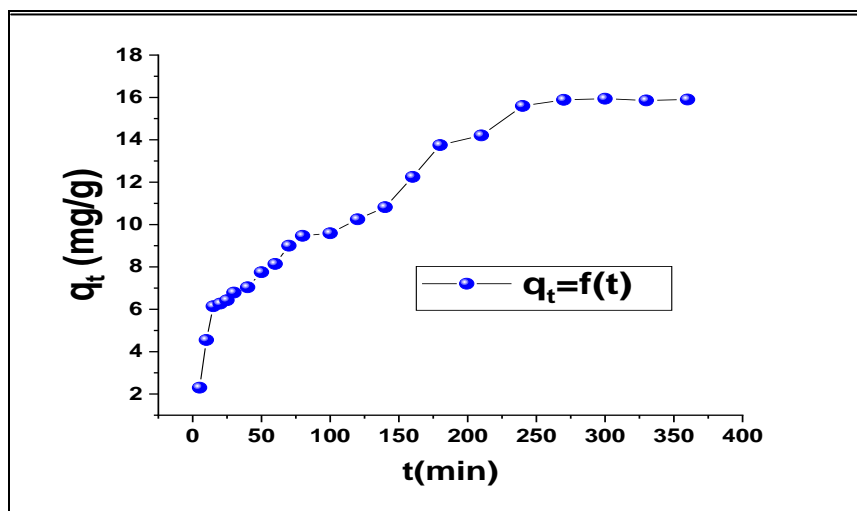
**Figure IV.8 :** Effet de la concentration initiale d'adsorption d'IBU sur CND (pH=3,  $C_0=40$ ppm,  $v=50$ ml)

#### IV.2.4 Effet du temps de contact

L'évolution de la quantité adsorbée d'AINS ibuprofène au cours de temps est représentée dans les figures (IV.9 et IV.10). Ces dernières montrent que plus la durée de contacte augmente plus la quantité adsorbé augmente aussi.

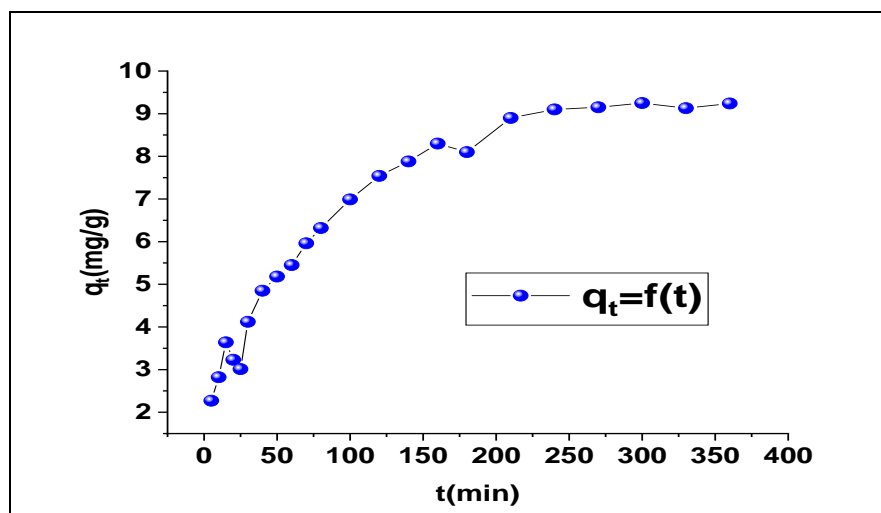
Deux segments sont observés : premier segment ; l'élimination d'IBU par CGO et CND est rapide dans les premiers temps (5 à 180 min) en raison de la disponibilité des sites actifs sur la surface des adsorbants [85].

Deuxième segment ; ralentissement de l'adsorption à partir de 200 min jusqu'à l'obtention d'un palier d'équilibre, ceci est dû au fait que tous les sites d'adsorption sont probablement occupés c'est-à-dire que la molécule de l'adsorbat a besoin de plus de temps pour diffuser à l'intérieur l'adsorbant [67].



**Figure IV.9:** Effet du temps de contact sur l'adsorption d'IBU par le CGO

( $C_0 = 80$  ppm, pH= 2, m=4 g, v=1 L)



**Figure IV.10 :** Effet du temps de contact sur l'adsorption de l'IBU par le CND

( $C_0 = 40$  ppm, pH= 3, m=3 g, v=1 L)

### IV.3 Modélisation de la cinétique d'adsorption de l'IBU

La modélisation de la cinétique d'adsorption est étudiée pour d'écrire le processus et le mécanisme d'élimination d'IBU par CGO et CND. Pour déterminer les paramètres cinétiques, deux modèles sont appliqués; pseudo premier(PPO) et pseudo-second ordre(PSO).

#### IV.3.1 Pseudo premier ordre

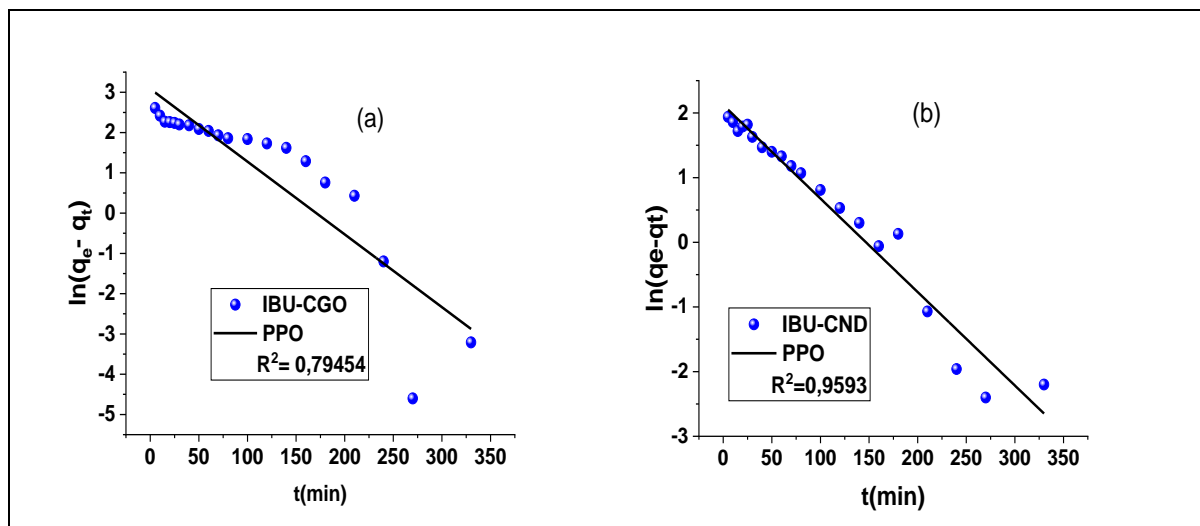


Figure VI.11 : Linéarisation du pseudo premier ordre

(a) CGO, (b) CND

#### IV.3.2. Pseudo second ordre

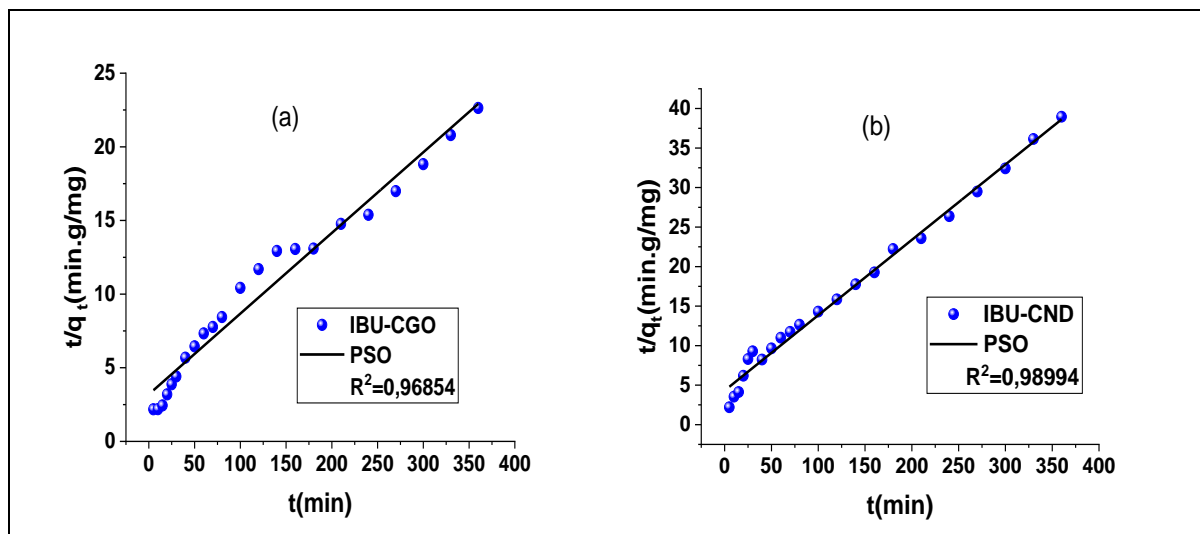


Figure IV.12 : Linéarisation pseudo second ordre

(a) CGO, (b) CND

**Tableau IV.2 :** Paramètre de modélisation de la cinétique d'adsorption d'IBU sur le CGO et CND

Modèles et paramètres	CGO	CND
Q <sub>e</sub> (exp) (mg/g)	15.90	9.25
<b>Pseudo premier ordre</b>		
Q <sub>e</sub> (cal) (mg/g)	21.85	8.35
K <sub>1</sub> (min <sup>-1</sup> )	0.01806	0.01446
R <sup>2</sup>	0.79454	0.9593
<b>Pseudo second ordre</b>		
Q <sub>e</sub> (cal) (mg/g)	18.25	10.49
K <sub>2</sub> (min <sup>-1</sup> )	0.0012	0.0027
R <sup>2</sup>	0.96854	0.98994

D'après les résultats obtenus dans le tableau (IV.2), nous constatons que le coefficient de corrélation (CGO) obtenu par le modèle PSO ( $R^2=0.96854$ ) est proche de l'unité, à l'opposé de celui obtenu par le PPO. De plus la quantité adsorbée calculée par le modèle PSO est (18.25 mg/g) proche à la quantité adsorbée expérimentalement (15.90 mg/g). Ce qui indique que ce dernier est le modèle adéquat.

Le coefficient de corrélation obtenu par le modèle de PPO (CND) est de l'ordre de 0.9593, par contre celui obtenu par le PSO est plus proche de l'unité ( $R^2=0.98994$ ), avec une valeur  $Q_{exp}=9.25$  mg/g très proche de la valeur théorique (10.49 mg/g). Par déduction, le PSO est le modèle significatif.

Cela suggère que le processus d'adsorption est une chimisorption dans la plupart des cas.

#### IV.4. Isotherme d'adsorption

L'isotherme d'adsorption est un modèle qui montre le transfert de l'adsorbat de la phase aqueuse à la surface d'adsorbant dans des conditions d'équilibre [83].

Les isothermes d'adsorptions, obtenues dans les conditions optimales en faisant varier les concentrations d'IBU sont représentées sur la figure(IV.13).

Selon Gilles et all (1974), l'allure des deux courbes obtenus est de type L (Langmuir) c'est-à-dire monocouche. Ce type d'isotherme indique que les forces d'attraction entre les molécules adsorbées est très faible [56]. Dans la plupart des cas l'isotherme de type L montre une grande affinité entre l'adsorbat et l'adsorbant.

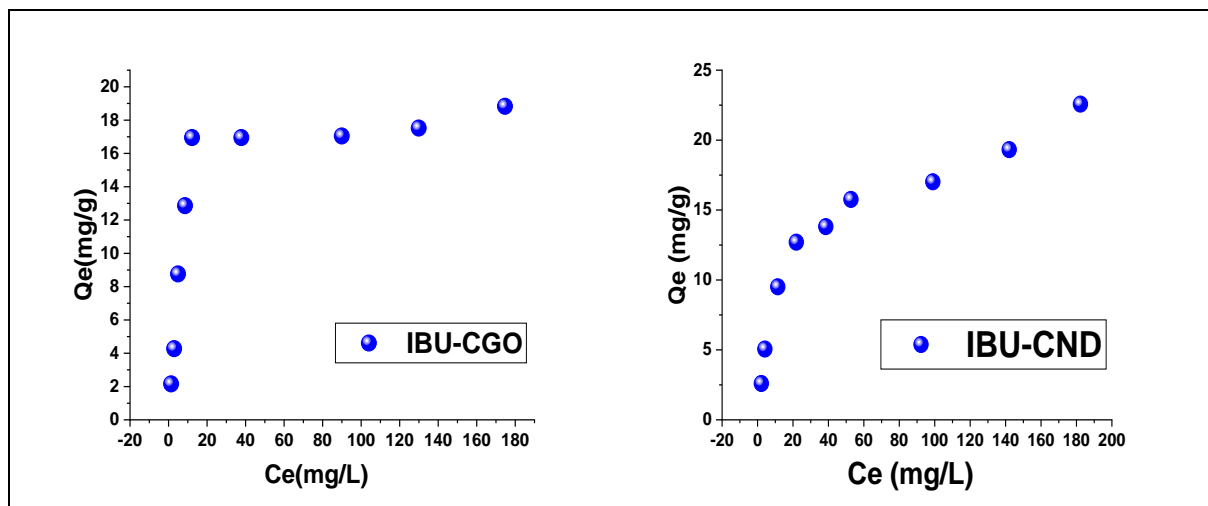


Figure IV.13: Isotherme de l'adsorption d'IBU sur CGO et CND

##### IV.4.1. Modélisation des isothermes d'adsorption

La modélisation de la cinétique d'adsorption est étudiée pour d'écrire le processus et le mécanisme d'élimination d'IBU par CGO et CND. Pour déterminer les paramètres cinétiques deux modèles sont appliqués; pseudo premier et second ordre.

IV.4.1.1 Modèle linéaire de Langmuir

❖ Langmuir I

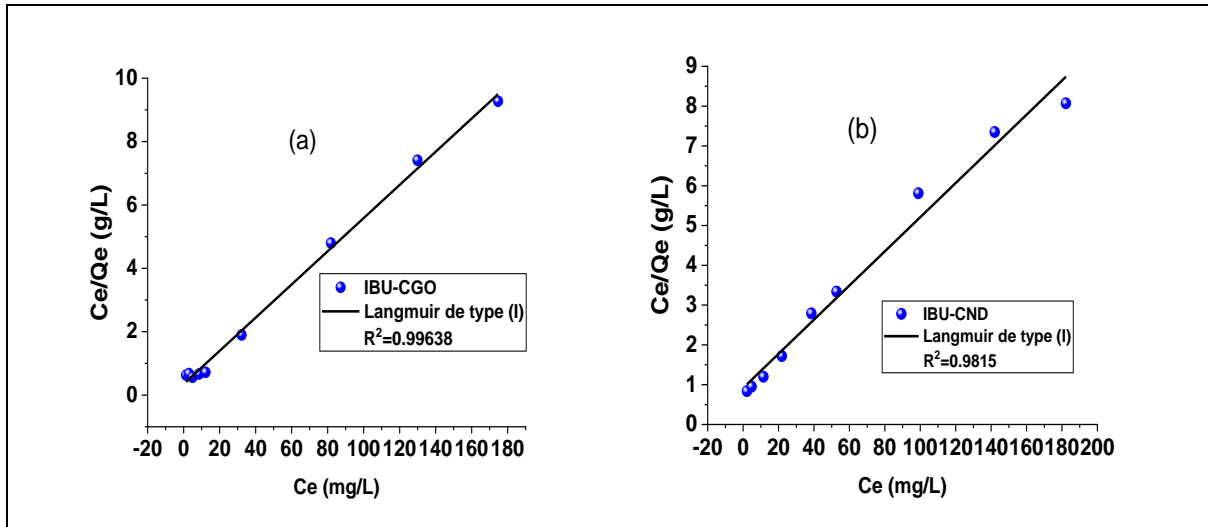


Figure IV.14 : Linéarisation de l'isotherme du modèle de Langmuir de type (I)  
a (CGO), b (CND)

❖ Langmuir II

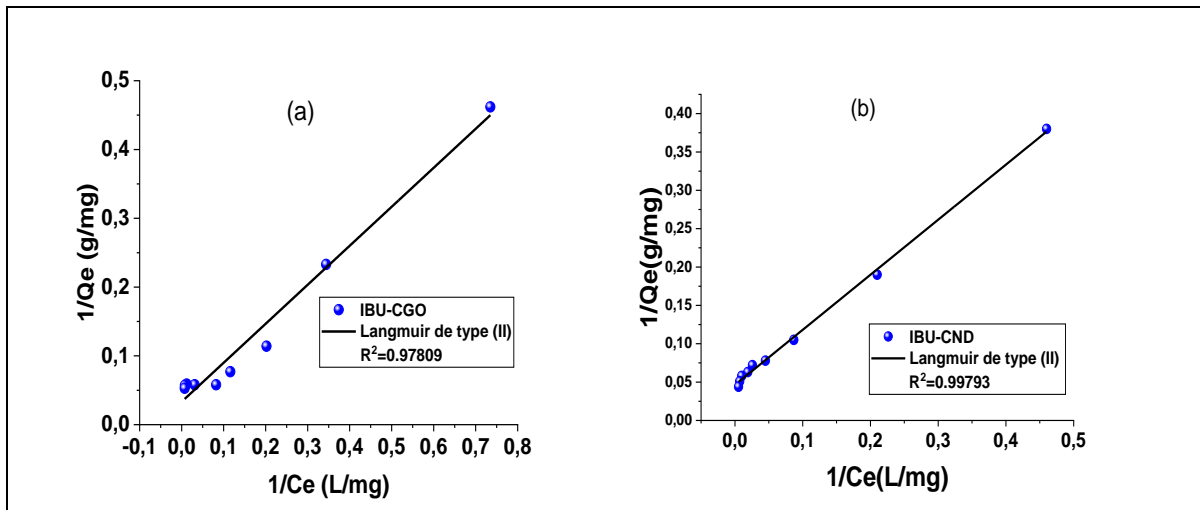


Figure IV.15 : Linéarisation de l'isotherme du modèle de Langmuir de type (II)  
a (CGO), b (CND)

❖ Langmuir III

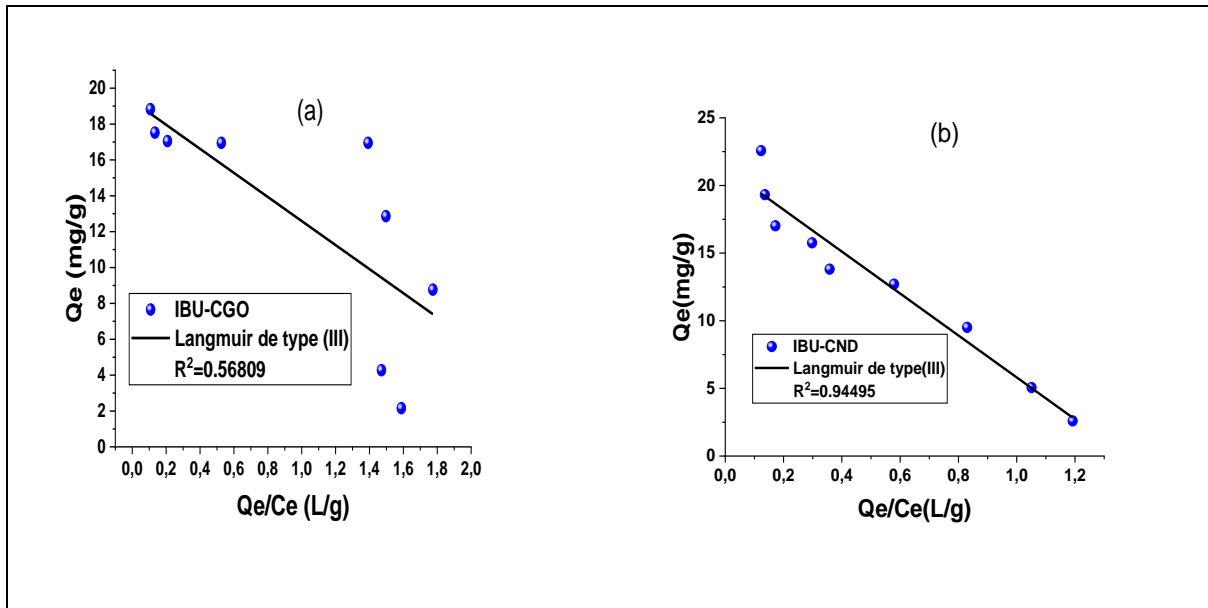


Figure IV.16 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Langmuir de type (III)  
a (CGO), b (CND)

❖ Langmuir IV

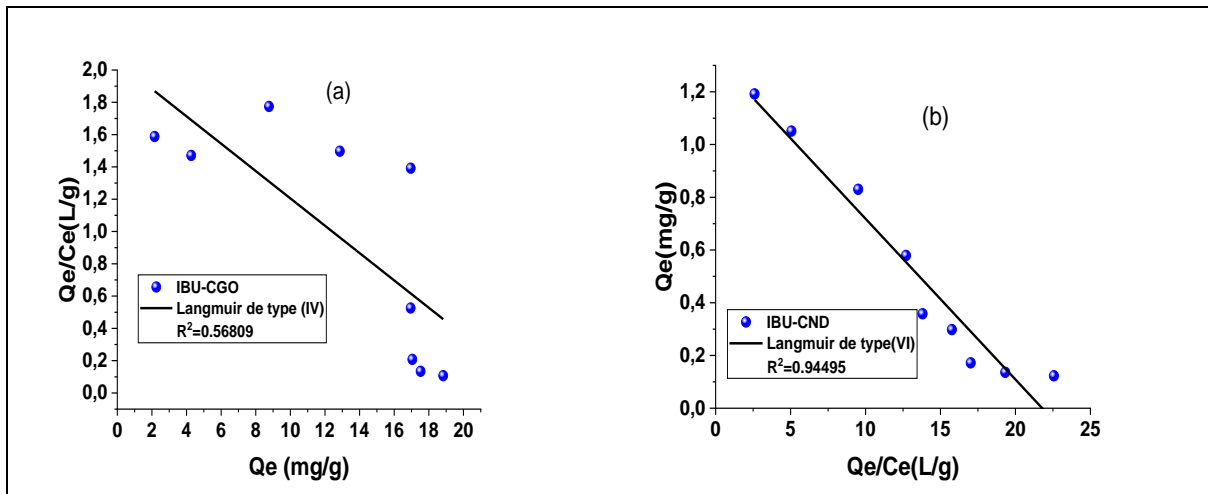


Figure IV.17 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Langmuir de type (IV)  
a (CGO), b (CND)

IV.4.1.2 Le modèle linéaire de Dubinin-Radushkevich

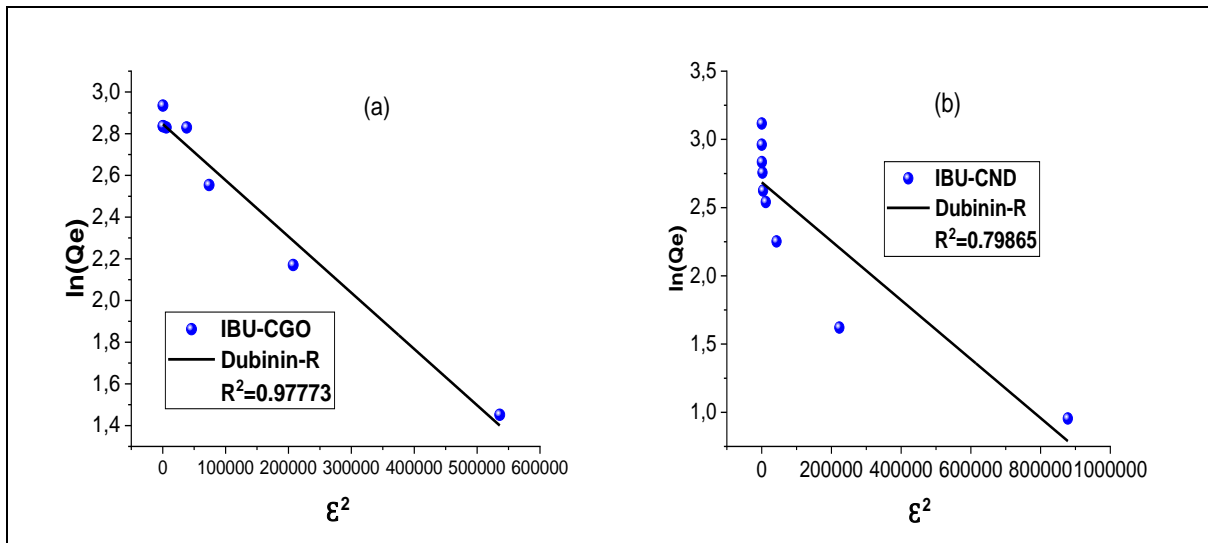


Figure IV.18 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Dubinin-Radushkevich  
a (CGO), b (CND)

IV.4.1.3 Le modèle linéaire de Freundlich

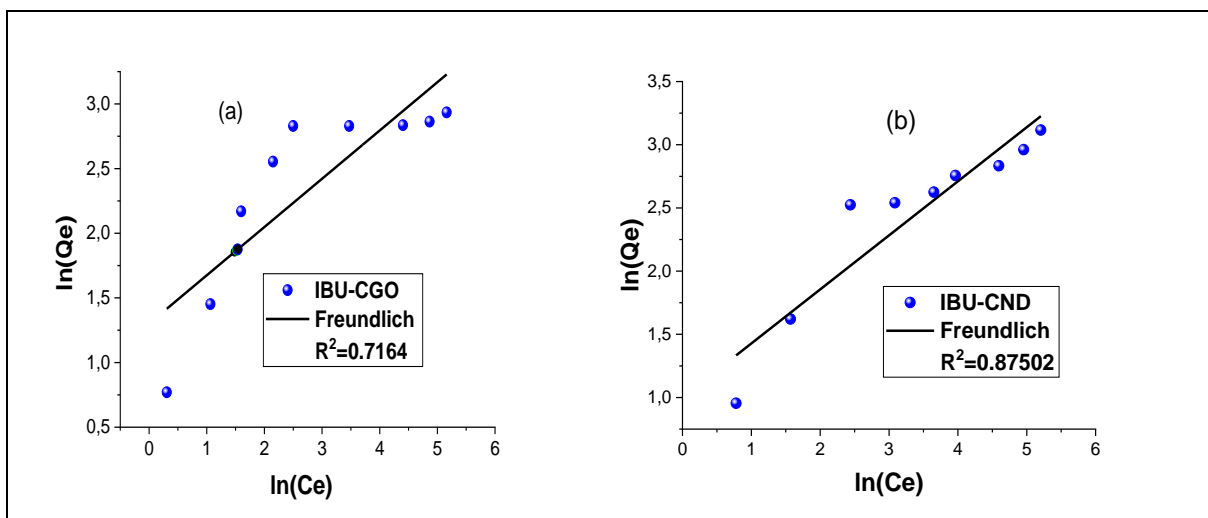


Figure IV.19 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Freundlich  
a (CGO), b (CND)

## IV.4.1.4 Le modèle linéaire de Temkin

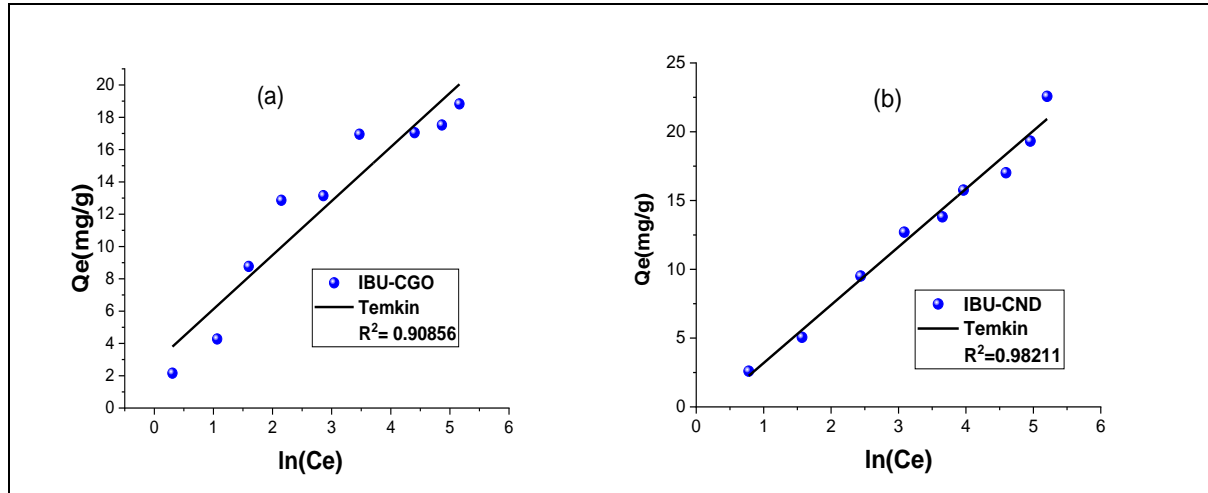


Figure IV.20 : Linéarisation d'isotherme du modèle de Temkin

a (CGO), b (CND)

Tableau IV.3 : Les paramètres des isothermes de l'adsorption d'IBU sur CGO et CND

Modèles	Paramètres	CGO	CND
		Q <sub>m</sub> =21.33 (mg/g)	Q <sub>m</sub> =22.57 (mg/g)
Langmuir type I	Q <sub>m</sub> (mg/g)	19.08	23.31
	b (L/g)	0.149	0.046
	R <sup>2</sup>	0.996	0.9815
Langmuir type II	Q <sub>m</sub> (mg/g)	30.03	21.59
	b (L/g)	0.058	0.064
	R <sup>2</sup>	0.9781	0.9979
Langmuir type III	Q <sub>m</sub>	19.302	21.311
	b (L/g)	0.149	0.064
	R <sup>2</sup>	0.5681	0.9450
Langmuir type IV	Q <sub>m</sub>	24.14	21.77
	b (L/g)	0.085	0.061
	R <sup>2</sup>	0.5681	0.9450
Dubinin Radushkevich	Q <sub>m</sub> (mg/g)	17.22	14.67
	β(mol <sup>2</sup> /KJ <sup>2</sup> )	-3.10 <sup>-6</sup>	-2.10 <sup>-6</sup>
	R <sup>2</sup>	0.9777	0.7965
Freundlich	K <sub>f</sub> (L/g)	3.674	2.718
	1	0.373	0.428
	n		
	R <sup>2</sup>	0.7164	0.8750
Temkin	ΔQ(KJ/mol)	0.736	0.587
	K <sub>T</sub> (L/g)	1.000	0.999
	R <sup>2</sup>	0.9086	0.9821

D'après les résultats obtenus dans le tableau (IV.3)

- ❖ Pour le CGO, l'isotherme de Langmuir de type (I) est le modèle applicable avec un coefficient de corrélation ( $R^2=0.996$ ) très proche de l'unité. De plus, la quantité d'IBU adsorbée déterminé théoriquement (19.02mg/g) est approximative à la valeur expérimentale (21.33mg/g). Le facteur de séparation adimensionnel ( $R_L=0.07$ ) est inférieur à 1, d'où une adsorption très favorable [61-62]. En outre, pour le type (II) ( $R^2=0.9781$ ) le coefficient n'est pas loin de l'unité mais  $Q_m$  est éloignée à celle de l'expérience, d'où ce modèle n'est pas adéquat.

Nous observons un corrélation de détermination significatif ( $R^2=0.9777$ ) pour le modèle D-R, ce qui signifie que ce dernier est un modèle adéquat.

Les coefficients de confiances déduites pour les modèles (Langmuir III, VI, Freundlich et Temkin) sont faibles ; ils ne sont donc point significatifs.

- ❖ Pour le CND, les isothermes de Langmuir de type (I, II, III, IV) sont réalisables avec succès (des coefficients de confiances importants). Cependant, la forme(II) est la mieux adéquate pour la sorption d'IBU d'une part ( $R^2 \approx 1$ ) et d'autre part la capacité d'adsorption maximale théorique est très rapprochée à celle obtenue expérimentalement, et aussi ( $R_L=0.28$ ) est inférieur à 1 ce qui implique une sorption favorable.

Nous constatons, que le modèle de Temkin est satisfaisant avec ( $R^2=0.9821$ ), et aussi une variation d'énergie d'adsorption  $\Delta Q$  découlant de la linéarisation de ce dernier est positive d'où l'endothermicité de la sorption [39].

En revanche le coefficient de corrélation des deux modèles D-R et Freundlich sont très loin de l'unité, par conséquent, ils ne décrivent pas l'adsorption d'IBU sur CND.

# Conclusion Générale

## Conclusion Générale

---

Ce travail de recherche, à pour intérêt de répondre à l'exigence de la dépollution des eaux chargées en rejets pharmaceutiques, dans le cadre environnementale.

Notre étude a montré la possibilité d'adsorber une molécule médicamenteuse, à savoir l'ibuprofène, existante dans une solution synthétique, par l'utilisation d'un charbon végétal issue de la valorisation des déchets agricoles. « Carbonisation des grignons d'olives et noyaux de dattes sans aucune activation chimique ou physique. »

La caractérisation des charbons préparés a portée sur une caractérisation physico-chimique à savoir l'humidité, la teneur en cendre ; la densité apparente, pH de la charge nulle et la surface spécifique ( $306.206 \text{ m}^2/\text{g}$  pour CGO et  $22.211 \text{ m}^2/\text{g}$  pour CND) déterminée par la méthode BET.

La capacité d'adsorption a été examinée à divers paramètres pour nos deux adsorbants :

- ❖ L'adsorption maximale d'IBU a été trouvée à un pH=2 pour le CGO et un pH=3 pour le CND
- ❖ La masse idéale pour un rendement meilleur est de 0.2g pour le CGO et 0.15g pour le CND.
- ❖ La concentration initiale d'IBU est de 80ppm pour le CGO ( $E(\%)=84.77\%$ ) et de 40ppm pour le CND ( $E(\%)=71.37$ ) dans un volume de 50 ml.
- ❖ Le temps de contact pour une bonne élimination d'AINS est au environ de 200 minutes pour les deux matériaux, avec un taux d'élimination qui dépasse les 75% pour CGO et 65% pour CND.

La modélisation de la cinétique d'adsorption nous a permis de déduire que le pseudo-second ordre est le modèle adéquat pour les deux sorptions.

La modélisation des isothermes d'adsorption indique que la sorption se fait en monocouche pour les deux charbons et que l'adsorbat se fixe sur un seul site bien définie.

Le modèle de Temkin nous a indiqué l'endothermicité de l'adsorption par CND.

## Conclusion Générale

---

### ➤ Perspectives

- L'activation physique ou chimique pour un meilleur rendement d'élimination et une adsorption plus rapide ;
- Régénération des adsorbants ;
- Faire une étude thermodynamique et des analyse spectrales ;
- l'application de ces adsorbants dans le domaine industriels (eaux textiles, colorants ...)

## Références bibliographiques

---

- [1] Article 170 «loi 90-17 du 31 juillet 1990 modifiant et complétant la loi 85-05 du 16 février relative à la protection et à la promotion de la sante » Algérie p17.
- [2] FRADIN, D. 1985 Résidus médicamenteux dans l'eau environnementale : le rôle du pharmacien d'officine ; thèse pour le diplôme d'état de docteur en pharmacie.
- [3] Fent,K et al. Ecotoxicology of human pharmaceuticals. *Aquatic toxicology*, 76, pp. 122-59.
- [4]Heath, E et al. 2010. Second interlaboratory exercise on non-steroidal anti-inflammatory drug analysis in environmental aqueous samples. *Talanta*, 81, pp.1189-96
- [5] Bradley, P. M.; Journey, C.A.; Button, D.T.; Carlisle, D.M.; Clark, J.M.; Mahler, B.J.; Nakagaki, N.; Qi, S.L.; Waite, I.R et VanMetre, P.C. 2016. Metformin and other pharmaceuticals widespread in wadeable streams of the southeastern United States. *Environmental Science & Technology Letters*. 3 ,6 , 243-249.
- [6] Muthanna, J.A. 2017. Adsorption of non-steroidal anti-inflammatory drugs from aqueous solutions using activated carbons: Review. *Journal of Environmental management*. 190 , 274-282.
- [7] Kümmerer, K.2009 The presence of pharmaceuticals in the environment due to human use - present knowledge and future challenges. *Journal of environmental management*, 90, pp.2354-66. DOI : 10.1016/j.jenvman
- [8] Pépin, J.M. 2006. Impacts éco toxicologiques de certains médicaments dans l'environnement ». Centre universitaire de formation en environnement université de Sherbrooke., Sherbrooke, Québec, Canada, Disponible. sur :<http://www.pubmedcentral.nih.gov/articlerender.fcgi?artid=1314909>
- [9] Hignite, C.Aznaroff DL. 1977 Drugs and drugs metabolites as environmental contaminants: chlorophenoxyisobutirate and salicylic acid in sewage effluent. *Life Sci*, 20 337-41.

## Références bibliographiques

---

- [10] Anses Laboratoire d'hydrologie de Nancy, *Campagne nationale d'occurrence des résidus de médicaments dans les eaux destinées à la consommation humaine*, rapport, janvier 2011.
- [11]Dagot, C. 2018 Traitement des résidus de médicaments dans les ouvrages d'épuration des eaux. *Environ Risque Santé*; 17(S1): 47-58. DOI: 10.1684/ers.2017.1126.
- [12]Heberer ,T. 2002Occurrence, fate and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data. *Toxicol Lett*; 131: 5-17.
- [13] Méndez-Arriaga, F.Torres-Palma .R.A, C. Pétrier, S. Esplugas, J. Gimenez, C. Pulgarin. 2008 Ultrasonic treatment of water contaminated with ibuprofen, *Water Research* 42 4243-4248.
- [14] Ségolène ,S. 2012 Résidus médicamenteux : Prise en compte dans la prescription du devenir environnemental des résidus médicamenteux. *Sciences du Vivant [q-bio]*.. hal-01733159.
- [15] Académie nationale de pharmacie, . *Médicaments et Environnement*. Paris, Académie nationale de pharmacie,2008.
- [16] Pierre Le Hir, « L'alarmante pollution de l'eau par les médicaments », *Le Monde*, 3 février 2009.
- [17] Haguenoer.J.M. 2010« Les résidus de médicaments présentent-ils un risque pour la santé publique », *Santé Publique* . 22, p. 325-342. DOI 10.3917/spub.103.0325
- [18] LEEM. *Marché mondial* [Internet]. LEEM les entreprises du médicament. 2019.Disponible sur: <https://www.leem.org/marche-mondial>
- [19] Ziani,.,2020 *Données du Ministère de la Santé, de la Population et de la Réforme Hospitalière* , p 172.
- [20] Zerhouni & El Alami El Fellousse, 2015, p.26. *Conseil National Economique et Social*, 2003, p 59. - *Données du Ministère de la Santé, de la population et de la réforme Hospitalière*, 2021. - Kaddar, 1997, p.28.
- [21]Mezzelani, M. Gorbi, S etRegoli, F.2018 *Pharmaceuticals in the aquatic environments: Evidence of emerged threat and future challenges for marine organisms*. *Marine environmental reseach*. 140 : 41-60

- [22] Inouss, H.; Ahid, S.; Belaiche, A et Cherrah, Y. 2015. Évolution de la consommation des antibiotiques au Maroc (2003–2012). *Revue d'Épidémiologie et de Santé Publique*. 63 : 78.
- [23] Madikizela, L.M.; Tavengwa, N.T et Chimuka, L.2018. Applications of molecularly imprinted polymers for solid-phase extraction of non-steroidal anti-inflammatory drugs and analgesics from environmental waters and biological samples. *Journal of pharmaceutical and biomedical analysis*. 147 : 624-633.
- [24] Vial, T. 2001 Pharmacologie des anti-inflammatoires non stéroïdiens. In: Aspirine et AINS : intolérance et allergie. Montrouge, France: John Libbey Eurotext: 55–60.
- [25] Viel, E. ;Cuvillon, P. ; Ripart, J. ; Eledjam ,JJ.2007 Pharmacologie et utilisation périopératoire des anti-inflammatoires non stéroïdiens non sélectifs et coxibs. Congrès national d'anesthésie et de réanimation. *Essentiels*;341–54.
- [26] Trombini, C.; Hampel, M.; et Blasco, J.2019. Assessing the effect of human pharmaceuticals (carbamazepine, diclofenac and ibuprofen) on the marine clam *Ruditapes philippinarum*: An integrative and multibiomarker approach. *Aquatic toxicology*. 208 146-156.
- [27] Lindqvist, N.; Tuhkanen, T et Kronberg, L. 2005. Occurrence of acidic pharmaceuticals in raw and treated sewages and in receiving waters. *Water research*. 39(11): 2219-2228.
- [28] Richardson, M.L., Bowron, J.M., 1985. The fate of pharmaceutical chemicals in the aquatic environment. *J. Pharm. Pharmacol.* 37, 1–12. doi:10.1111/j.2042-7158.1985.tb04922.x
- [29] Eau | 18 janvier 2008 | Florence Roussel | Actu-Environnement.com
- [30] ISIDORI, M. ,LAVORGNA, M. ; NARDELLI ,A., PASCARELLA, L., PARRELLA A., 2005. Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms. *Science of The Total Environment*, vol.346, Issues 1-3, p 87-98. Issues 1-3, p 87-98.
- [31] GARRIC, J. 2005. Chercheur Laboratoire d'Eco toxicologie du Cemagref de Lyon.

- [32] Burkhardt-Holm, P. 2010. Endocrine Disruptors and Water Quality: A State-of-the-Art Review. *Int. J. Water Resour. Dev.* 26, 477–493. doi:10.1080/07900627.2010.489298.
- [33] Zhou , Y.; Wu, S.; Zhou, H.; Huang, H.; Zhao, J.; Deng, Y.; Wang, H.; Yang, Y.; Yang, J et Luo, L. 2018. Chiral pharmaceuticals: Environment sources, potential human.
- [34] Zuccato, E .; Castiglioni, S.; Fanelli, R .; Reitano, G .; Bagnati, R .; Chiabrando, C.; Pomati, F.; Rossetti, C et Calamari, D.2006. Pharmaceuticals in the environment in Italy: causes, occurrence, effects and control. *Environmental Science and Pollution Research.* 13:15-21.
- [35] Soulier, C.,Gabet, V., Lardy ,S., Lemenach ,K., Pardon ,P., Esperanza, M., et al. 2011 Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration. *Tech Sci Méthodes.* (1/2):63-77.
- [36] Losi, M.E., Amrhein, C., Franchenberger, W.T.1994 biodegradation and bioremediation. bioremediation of chromate- contaminated groundwater by reduction and precipitation in surface soil. *J.Enviro. Qual.*23, 141-1150
- [37] Azzouzi, M., Mountacer, H., & Mansour, M. 1999 Kinetics of photochemical degradation of imazapyr in aqueous solution. *Fresenius Environmental Bulletin.*8(11), 709-717.
- [38] Jermouni,S, 1996 contribution à l'Etude de la Resistance au chrome des bactéries, Isolées des rejets de Tannerie de la ville de Fes. Thèse de 3<sup>ème</sup> science Dhar El Mahraz, Fes.
- [39] Aksas,H. 2013.étude de la cinétique et thermodynamique de l'adsorption des métaux lourds par utilisattion des adsorbants naturels .thèse de doctorat. p18
- [40] Laurette, S . 2004. Utilisation des fibres de carbone activé comme catalyseurs d'O- et Nglycosylation Application à la synthèse d'analogue de saponines et de nucléosides. Thèse de doctorat.
- [41] Bentahar,Y., Marmier.N., draoui,K.,khairoun,S 2016 caractérisation physico-chimique des argiles marocaines : application à l'adsorption de l'arsenic et des colorants cationiques en solution aqueuse thèse .p41

## Références bibliographiques

---

- [42] Navauo,R.,Sumi,K and Matsumura, M . 1998 “Heavy Metal sequestration properties of a New Amine-Type chelating adsorbent” ; published by Elsevier science ltd, Wat. Sci. Tech., vol.38, N°4-5, p 195-201, IAWQ,
- [43] Flora S., Wetterhahn K.E. (, Mechanisms of chromium metabolism and genotoxicity. Life Chemi Reports1989, 7, 169-244
- [44] Weber,W.J. Vanvliet, B.M.,2010 In: Activated carbon adsorption of organic from the aqueous phase, Ed. I.H. Suffet, M.J. Mc Guire1 .
- [45] EDELINE,F.1998L'épuration physico-chimique des eaux “. Théorie et technologie, 4<sup>ème</sup> Edition. CEBEDOC. SPRI). Liège.
- [46] EDLIN.F, 1992, Ed. Cebedoc SPRL.
- [47]Errais ,E.2011 Réactivité de surface d'argiles naturelles: Etude de l'adsorption de colorants anioniques, Strasbourg.
- [48]Rodriguez-Reinoso.F.,Molina-Sabio.M, carbon 1992.
- [49] Jaguarib E.F., Medeiros L., Barreto M.C.S., Araujo L.P., 2005. Brazilian journal of chemical Engineering, 22: 41- 47
- [50]BEN NELKACEM,O.2000”valorisation du marc de café dans le domaine de traitement des effluants de l'ennoblissement textile ». Mémoire d'ingeniorat, Boumerdes.
- [51]Benamraoui,F.2014 «Elimination des colorants cationiques par des charbons actifs synthétisés à partir des résidus de l'agriculture,». MAGISTER en Génie Chimique. Setif.
- [52] Wigmans ,T.1989; *Carbon*, **27**, 13.
- [53] DEGREMONT, “Mémento .Technique de l'eau“. (Théorie et technologie, 4<sup>ème</sup> édition
- [54] Desjardins,R. 1990 Le traitement des eaux. 2ème Edition revue et améliorée, Édition de l'Ecole Polytechnique de Montréal.
- [55] Giles,C.H., Smith,D.et Huitson,A.1974 «A General Treatment and Classification of the Solute Adsorption Isotherm,» Journal of Colloid and Interface Science, vol. 3.

- [56] Maiza,H.2000 Modélisation des cinétiques d'adsorption dans le cas du phénol et du bleu de méthyle sur le charbon actif en grain, Ingénieur d'état, Ecole Nationale Supérieure Polytechnique, p 3,4.
- [57] Ouakouak ,A.,2017 Elimination de cuivre, des nitrates et des phosphates des eaux par adsorption sur différents matériaux, thèse de doctorat .
- [58] Langmuir, I.1918The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. *J. Am. Chem. Soc.*, 40, 1361–1403.
- [59] Langmuir,I.1915Modeling of adsorption, *Phys. Rev.* 6 .78-80.
- [60] Tran,N.H., Sheng-Jie You, Huan-Ping Chao. 2016 Thermodynamic parameters of cadmium adsorption onto orange peel calculated from various methods: A comparison study, *Journal of Environmental Chemical Engineering* 4 ,2671–2682,
- [61]Hall, .k.L., Eagleton, L.C., Acrivos, A., Vermeulen, T. 1966 Pore and solid-diffusion kinetics in fixed-bed adsorption under constant-pattern conditions. *Ind. Eng. Chem. Fundam.* .5, 212-223
- [62] Laksaci, H. , Khelifi, A., Trari, M., Addoun, A., Synthesis and characterization of microporous activated carbon from coffee grounds using potassium hydroxides, *Journal of Cleaner Production*, Volume 147, 20 March 2017, Pages 254-262.
- [63]Dubinin, M.M., Radushkevich, L.V.1947 The equation of the characteristic curve of the activated charcoal. *Proc. Acad. Sci. USSR Phys. Chem. Sect.*,55, 331–337.
- [64] Freundlich, H.M.F, Über die adsorption in lösungen. *Z. Phys. Chem.*1906. 57,385–470.
- [65] Zaheer, Z., Aisha, A.A., Aazam, E.S. 2019adsorption of methyl red on biogenic Ag@Fe nanocomposite adsorbent: Isotherms, kinetics and mechanisms. *J. Mol.Liq.* 283, 287–298.
- [66] Temkin, M.J., Pyzhev, V. 1940 Kinetics of ammonia synthesis on promoted iron catalyst. *Acta Phys. Chim. USSR* ..12, 327-356.
- [67] Grabi,H. 2021 purification d'une eau usée industrielle par des matériaux naturels et valorisation de la boue résultante .thèse de doctorat Tizi ouzou. .p64

## Références bibliographiques

---

- [68] Lagergren ; Svenska B.K. 1898. Zurtheorie der sogenannten adsorption gelösterstoffe. Vetenskapsakad Handlingnar, 24 (4), pp.1-39.
- [69] Ho ,Y.S., McKay G., 1998. Comparison of chemisorption kinetic models applied to pollutant removal on various sorbent. Trans Chem E, Vol 76 (Part B), pp. 332-34
- [70] Bagheri, H.; Ghader, S et Hatami, N. 2019. Solubility of Ibuprofen in Conventional Solvents and Supercritical CO<sub>2</sub>: Evaluation of Ideal and Non-Ideal Models. Chemistry. 13(1) : 1-10.
- [71] Wikipédia ,2021. Ibuprofène. En ligne : <http://fr.wikipedia.org/wiki/Ibuprofène> consulté le 25/10/2021.
- [72] Madikizela, L.M.; Tavengwa, N.T et Chimuka, L. 2018. Applications of molecularly imprinted polymers for solid-phase extraction of non-steroidal anti-inflammatory drugs and analgesics from environmental waters and biological samples. Journal of pharmaceutical and biomedical analysis. 147 : 624-633.
- [73] Mazet, M. Retention de substances humique sur charbon activé en poudre, Etude de la Modification de quelques caractéristiques physico-chimiques du milieu lors de l'adsorption ; revus française des sciences de l'eau .
- [74] Baccar, R., Bouzid, J., Feki, M and A Montiel. 2009 Preparation of activated carbon from unisian olive-waste cakes and its application for adsorption of heavy metal ions. Hazardous Materials.. 162(2) :1522–1529.
- [75] Sing, K.S.W, S.J. Gregg, 1982 Adsorption, Surface Area and Porosity, Academic Press, London.
- [76] Lachebi, S., Trachi, M., and Hachemi, M., 2016 Biosorption of Zinc (II) and Copper (II) Ions from Aqueous Solution by Pericarp Oak Acorns, Asian Journal of Chemistry; Vol. 28, No. 12 , 2717-2724. <http://dx.doi.org/10.14233/ajchem.2016.20094>
- [77] Osnick, J. 2009 Etude du potentiel d'utilisation de résidus agricoles haïtiens pour le traitement par biosorption d'effluents pollués. Thèse de doctorat, Sciences de l'Environnement industriel et Urbain, INSA, Lyon, p.130 .
- [78] Parks, G.A. 1995 "The iso electric points of solid oxides, solid hydroxides, and aqueous hydroxo complexes systems", Chem. Rev., 65, pp. 177-198.

## Références bibliographiques

---

[79] Jain, SN., Shaikh, Z., Mane, VS., Vishnoi. S., Mawal VN, Patel OR, Bhandari PS, Gaikwad MS. 2019. Nonlinear regression approach for acid dye remediation using activated adsorbent: kinetic, isotherm, thermodynamic and reusability studies. *Microchem J.* 148:605–615.

[80] Han, RP., Zou WH, Zhang ZP, Shi J, Yang JJ. 2016. Removal of copper (II) and Lead (II) From aqueous solution by manganese oxide coated Sand. I. Characterization and Kinetic study, *J. Hazard. Mater.*; 137:384-395.

[81] Arivoli, S., M. Hema, S. Parthasarathy, and N. Manju. 2010. Adsorption dynamics of methylene blue by acid activated carbon. *Journal of Chemical and Pharmaceutical Research* 2 (5) : 626– 41

[82] Sahnoun, S. 2013. Synthèses, caractérisation et application des argiles organophiles, Thèse de Magister.

[83] Leizou K. E., Muhammad A. A., Ahmad. J. K. C., Haroon. R. 2018. Adsorption studies of  $Pb^{2+}$  and  $Mn^{2+}$  ions on low-cost adsorbent: unripe plantain (*Musa paradisiaca*) peel biomass. *Acta Chemica Malaysia (ACMY)*, 2(1), 11-15.

## **Résumé**

L'objectif visé par le thème traité est d'évaluer deux différents charbons synthétisés à base de grignon d'olive et de noyau de datte, pour la dépollution d'une eau chargée en molécules d'Ibuprofène. Ces deux matériaux ont été caractérisés par des analyses physico-chimiques tel que : la teneur en humidité, la cendre, la densité apparente, le point de charge nulle et la surface spécifique déterminée par la méthode BET. Une étude paramétrique a été effectuée pour examiner l'influence de certains paramètres opératoires sur la capacité d'adsorption à savoir : le pH, la dose de charbon, la concentration initiale, la description de la modélisation cinétique et l'isotherme d'adsorption. Les résultats ont montré qu'à pH=2 (CGO) et pH=3(CND), la quantité maximale adsorbée est respectivement de 15.90 mg/g et 9.25 mg /g. La modélisation de la cinétique PSO et d'isothermes d'adsorption ont montré que la sorption d'IBU se produit en monocouche, le modèle Langmuir est le mieux adapté pour la fixation d'IBU.

**Mots clés :** Adsorption, ibuprofène, charbon, cinétique

## **Abstract**

The objective of this paper is to evaluate two different carbons synthesized on the basis of olive pomace and date stone, for the depollution of a water loaded with Ibuprofen molecules. These two materials were characterized by physico-chemical analyses such as: moisture content, ash, bulk density, zero charge point and specific surface determined by the BET method .A parametric study was carried out to examine the influence of some operating parameters on the adsorption capacity namely: pH, carbon dose, initial concentration, kinetic modeling description and adsorption isotherm. The results showed that at pH=2 (CGO) and pH=3(CND), the maximum adsorbed amount is respectively 15.90 mg/g and 9.25 mg /g. Modeling of adsorption kinetic PSO and isotherms showed that the sorption of IBU occurs in monolayer, the Langmuir model is the best for the fixation of IBU.

**Key words:** Adsorption, ibuprofen, carbon, kinetics