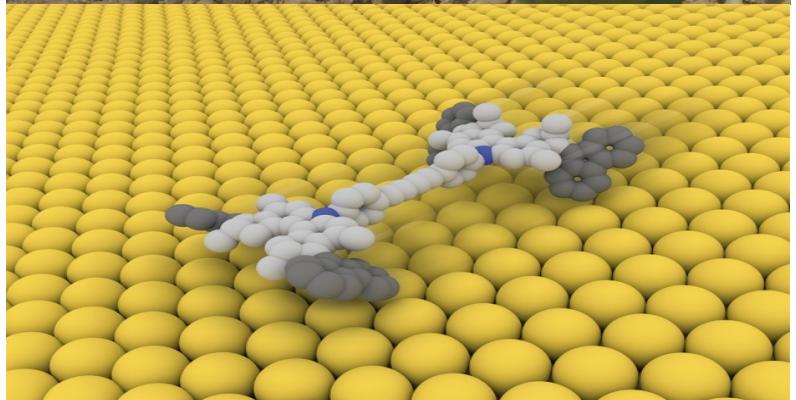


# PhytoChem & BioSub Journal

Peer-reviewed research journal on Phytochemistry & Bioactives Substances

ISSN 2170 - 1768



**PCBS Journal**

**Volume 11 N° 1**

**2017**

**Editor in Chief**  
**Pr Abdelkrim CHERITI**  
Phytochemistry & Organic Synthesis Laboratory  
08000, Bechar, Algeria

**PhytoChem & BioSub Journal (PCBS Journal)** is a peer-reviewed research journal published by Phytochemistry & Organic Synthesis Laboratory. The PCBS Journal publishes innovative research papers, reviews, mini-reviews, short communications and technical notes that contribute significantly to further the scientific knowledge related to the field of Phytochemistry & Bioactives Substances (Medicinal Plants, Ethnopharmacology, Pharmacognosy, Phytochemistry, Natural products, Analytical Chemistry, Organic Synthesis, Medicinal Chemistry, Pharmaceutical Chemistry, Biochemistry, Computational Chemistry, Molecular Drug Design, Pharmaceutical Analysis, Pharmacy Practice, Quality Assurance, Microbiology, Bioactivity and Biotechnology of Pharmaceutical Interest ). Contributions in all areas at the interface of Chemistry, Pharmacy, Medicine and Biology are welcomed.

Submission of an article to the **PCBS Journal** implies that the work described has not been published previously (except in the form of an abstract or as part of a published lecture or academic thesis), that it is not under consideration for publication elsewhere, that its publication is approved by all authors.

The **PCBS Journal** reserves the right to submit all received manuscripts to *ad hoc* referees, whose names will be kept confidential, and will have the authority to decide on the pertinence for acceptance. Referees may send back manuscripts to Editor-in-Chief, for transmission to the author(s) with suggestions for necessary alterations, which are to be made in order to conform to the standards and editorial rules of the Journal. All manuscripts should be prepared in MS-Word format, and submitted online to **Phytochem07@yahoo.fr**. Upon receipt of paper submission, the Editor sends an E-mail of confirmation to the corresponding author within 1-4 working days. The Editors reserve the right to edit or otherwise alter all contributions, but authors will receive proofs for approval before publication.

## Editorial Board

|   |  |  |
|---|--|--|
| <b>Abou Enein H.</b><br>Pharm. Med Chem Dept. Research Division, NRC, Dokki, Giza, Egypt              | <b>Afaxantidis J.</b><br>Synerlab Développement, Orléans, France   | <b>Akkal S.</b><br>Research Unity: VNRBM Lab. Dept. Chem., University of Constantine 1, Algeria            |
| <b>Allali H.</b><br>LASNABIO, Dept. Chemistry, University of Tlemcen, Algeria                         | <b>Allouch A.</b><br>Applied Chem. Lab., Faculty of Science Lebanese University, Tripoli, Lebanon        | <b>Aouf N.</b><br>Lab. Applied Org. Chem. , Dpt. Chem., Annaba University, Algeria                         |
| <b>Awad Allah A.</b><br>Dept. Chem., Faculty of Science, Islamic University of Gaza, Gaza, Palestine  | <b>Badjah A.Y.</b><br>Dept. Chem., College of Science, King Saud Univ., Riyadh, KSA                      | <b>Balansard G.</b><br>Pharmacognosy Lab., Faculty of pharmacy, Univ. Aix Marseille II, Marseille, France  |
| <b>Barkani M.</b><br>Materials Laboratory, Bedjai University, Algeria                                 | <b>Belboukhari N.</b><br>LMBSC Lab. Bechar university Algeria  | <b>Belkhiri A.</b><br>Pharmacognosy Laboratory, Faculty of Medicine, Constantine university, Algeria       |
| <b>Benharathe N</b><br>Materials Laboratory, USTO university, Oran, Algeria                           | <b>Bennaceur M.</b><br>Biochemical Laboratory, Biology faculty, Es Senia University, Oran, Algeria       | <b>Berredjem M.</b><br>Lab. Applied Org. Chem. , Dpt. Chem., Annaba University, Algeria                    |
| <b>Boksha I.</b><br>Federal Research Centre for Epidemiology Microbio., MH, Moscow, Russia            | <b>Bouchekara M.</b><br>Chemistry Laboratory, Science faculty, University of Mascara, Algeria            | <b>Bouklouze A.</b><br>Lab. Pharmaco. Toxic. Faculty of medicine and pharmacy, Med. V Univ. Rabat, Morocco |
| <b>Boukir A.</b><br>Lab. Applied Chem., Faculty of Science, S.M.Ben Abdellah Univ., Fez, Morocco      | <b>Brada M.</b><br>Valuation of Natural Substances Lab., Khemis-Miliana University, Algeria              | <b>Bressy C.</b><br>iSm2, CNRS UMR6263, Aix-Marseille University, Marseille, France                        |
| <b>Boulenouar N.</b><br>Biochemical Laboratory, Nour E. University, El Bayadh, Algeria                | <b>Dadamoussa B.</b><br>Chemistry Laboratory, Ghardai University, Algeria                                | <b>Daich A.</b><br>URCOM, EA-3221, CNRS FR-3038, UFR Sci. Tec., Normandie Univ, Le Havre, France           |
| <b>Daoud K.</b><br>GP- Indus.Pharma Laboratory, USTHB, Algiers, Algeria                               | <b>Djebar S.</b><br>Materials & mineral laboratory, USTHB, Algiers , Algeria.                            | <b>Djebli N.</b><br>Pharmacognosy, Api-Phytotherapy Lab. Mostaganem University, Algeria                    |
| <b>El Abed D.</b><br>Fine Organic Chemistry laboratory, Es Senia university, Oran, Algeria            | <b>Elachouri M.</b><br><i>Lab. Physiology and Ethnopharma.,Sci.Fac Med. I University. Oujda, Morocco</i> | <b>El Hatab M.</b><br>Natural products Laboratory, Science faculty, Blida university, Algeria              |
| <b>El Omar F.</b><br>Applied Chem. Lab., Faculty of Science Lebanese University, Tripoli, Lebanon     | <b>Ermel G.</b><br>Rennes University EA 1254, Beaulieu Campus Rennes, France                             | <b>Esnault M. A.</b><br>INRA, UMR 0118 RENN Vegetal Biotechnology Lab., Rennes, France                     |
| <b>Govender P.</b><br>KwaZulu-Natal Univ., School of Life Sci. Biochem., Durban, South Africa         | <b>Hacini S.</b><br>Fine Organic Chemistry laboratory, Es Senia university, Oran, Algeria                | <b>Hadj Mahamed M.</b><br>BGCMD laboratory, Science Faculty, Univ. Ouargla, Algéria                        |
| <b>Gargouri A. F.</b><br><b>Biotechnology center, CBS Sfax, Tunisia</b>                               | <b>Ghanmi M.</b><br>Medicinal plants division, CRF, Agdal , Rabat, Morocco                               | <b>Gharabli S.</b><br>Chem. Lab., School of App. Med.Sciences, German Jordanian University, Jordan         |
| <b>Gherraf N.</b><br>LRNAMS Laboratory, Larbi ben M'hidi, University, Oum El-Bouaghi, Algeria         | <b>Ghezali S.</b><br>IAP, Dept Catalysis, Sonatrach, Algiers , Algeria                                   | <b>Jesus Aizpurua M.</b><br>Dept. Organic Chemistry-I, Univ. Basque Country UPV/EHU, San Sebastian, Spain  |
| <b>Gouasmia A.</b><br>Organic Materials Laboratory, faculty of science, Tebessa University, Algeria   | <b>Kabouche Z.</b><br>LOST Laboratory, faculty of sciences, Constantine University, Algeria              | <b>Kacimi S.</b><br>Materials laboratory, Chemistry dept. Ain Temouchent University, Algeria               |
| <b>Kajima J.M</b><br>COSNA Laboratory, faculty of science, Tlemcen University, Algeria                | <b>Kaid-Harche M.</b><br>Biotechnology Laboratory, Faculty of biology, USTO, Oran, Algeria               | <b>Kessat A.</b><br>Analytical Laboratory, Central pharmacy Rabat, Morocco                                 |
| <b>Khelil-Oueld Hadj A.</b><br>ECOSYS Laboratory, Ouargla, University, Ouargla, Algeria               | <b>Lahreche M.B.</b><br>LCO laboratory, faculty of Biology, Djelfa University, Algeria                   | <b>Leghseir B.</b><br>Phytochemistry laboratory, Faculty of science, Annaba University, Algeria            |
| <b>Marouf A.</b><br>Biochemistry laboratory, Dept of Biology, Naama University, Algeria               | <b>Meddah B.</b><br>Lab. Pharmaco. Toxic. Faculty of medicine and pharmacy, Med. V Univ. Rabat, Morocco  | <b>Melhaoui A.</b><br>LCOMP-URAC25, Fac. Scie., Mohamed I University, Oujda, Morocco                       |
| <b>Laouar H</b><br>NRV laboratory, Dept. Biology and plant ecology, F.A. University, Setif-1, Algeria | <b>Mushfik M.</b><br>Natural products laboratory, Dept chemistry, AMU university, New Delhi, India       | <b>Ouahrani M. R.</b><br>Faculty of Sciences & Technology, El-Oued University, Oued Souf, Algeria          |
| <b>Oueld Hadj M.D.</b><br>ECOSYS Laboratory, Ouargla, University, Ouargla, Algeria                    | <b>Rahmouni A.</b><br>LMC laboratory, Dept Chemistry, Saida University, Algeria                          | <b>Reddy K.H.</b><br>Dept. Adv. Res. Center, Narayana Med.College , Nellore, Andhra Pradesh, India         |
| <b>Roussel C.</b><br>Chirosciences, UMR 7313, Stereo-Dyna. Chiralty, Aix-Marseille Univ., France      | <b>Saidi M.</b><br>LPSEZA laboratory, Dept Chemistry, Ouargla University, Algeria                        | <b>Salgueiro L.D.</b><br>Lab. Farmacognosia, Fac. Farmacia, Univ. de Coimbra, Coimbra, Portugal            |
| <b>Sidiqi S. K.</b><br>Bioorganometallic Lab., Dept. chemistry, AMU University, New Delhi, India      | <b>Soltani Y.</b><br>BPO Laboratory, Endocrinology theam, Dept. Bio. Physio., USTHB, Algiers, Algeria,   | <b>Tabcheh M.</b><br>Applied Chem. Lab., Faculty of Science Lebanese University, Tripoli, Lebanon          |
| <b>Tabti B.</b><br>LASNABIO, Dept. Chemistry, University of Tlemcen, Algeria                          | <b>Taleb S.</b><br>Materials Chemistry Laboratory Dept Chem. UDL Univ., SBA, Algeria                     | <b>Villemain D.</b><br>LCMT lab., UMR CNRS 6507, ENSICAEN, Caen, France.                                   |
| <b>Youcef M.</b><br>LSF laboratory, faculty of sciences, Laghouat University, Algeria                 |  | <b>Zyoud A.H.</b><br>Dept Chemistry, An-Najah N. University, Nablus, West Bank, Palestine                  |

## Synthèse de catalyseur à base de cuivre supporté sur la bentonite pour l'élimination de polluants de l'eau

\*

**Emna ZOUAOUI, Férial KRID, Hanène ZAAFOUR, AbdelHak MOUMEN  
 & Mohamed Salah MEDJRAM**

*Laboratoire de Recherche de Génie Chimique et Environnement  
 LGCE, Faculté de Technologie, Université du 20 Août 1955-Skikda, Algérie*

Received: October 22, 2016; Accepted: December 25, 2016

Corresponding author Email: [zouaoui\\_anna@yahoo.fr](mailto:zouaoui_anna@yahoo.fr)

Copyright © 2017-POSL

DOI:10.163.pcbsj/2017.10.-1.-41

**Abstract.** *Synthesis of copper-based catalyst supported on bentonite for the removal of water pollutants*

**Objectives.** The objective is to characterize the catalytic efficiency in the oxidation reaction of two BM and MO dyes using  $H_2O_2$  alone and / Sun.

**Methodes.** In this work, supported catalysts (Cu / bentonite) to different metal content (1%, 2.5%, 5%) were prepared in order to study their catalytic behavior in the photodegradation reaction of organic pollutants by the diffusional impregnation method and characterized by IR spectroscopy by Fourier transform. Solutions loaded by orange and methylene methyl blue were taken as samples to investigate the effect of the contents in the degradation kinetics.

**Results.** The results show that the degradation of BM is considerably effective. The effect of sunlight on the mineralization of the MO is very efficient compared to that in the presence of  $H_2O_2$  alone

**Conclusions.** Biomass made from two aquatic animal biomass can be used as adsorbents for the removal of methyl orange and opens prospects for their recovery with other pollutants

**Key Words:** Adsorption, aquatic biomass, Isotherm, Kinetic, Thermodynamic.

### Résumé

**Objectifs.** L'objectif est de caractériser l'efficacité catalytique dans la réaction d'oxydation de deux colorants BM et MO en utilisant l' $H_2O_2$  seul et  $H_2O_2$ /Soleil.

**Méthodes.** Dans ce travail, des catalyseurs supportés (Cu/bentonite) à différent teneur en métal (1%, 2,5%, 5%) ont été préparés afin d'étudier leur comportement catalytique dans la réaction de photodégradation de polluants organiques par la méthode d'imprégnation diffusionale et caractérisés par la spectroscopie IR à transformé de Fourier. Des solutions chargées en bleu de méthylène et méthyle orange ont été prises comme des échantillons pour étudier l'effet des teneurs dans la cinétique de dégradation

**Résultats.** Les résultats obtenus montrent que La dégradation de BM est considérablement efficace. L'effet d'irradiation solaire sur la minéralisation du MO est très efficace comparé à celle en présence de  $H_2O_2$  seul.

**Conclusions.** Les catalyseurs supportés sur la bentonite et à base de cuivre montre une efficacité sur la cinétique de dégradation du bleu de méthylène et du méthyle orange et ouvre des perspectives pour leur valorisation avec d'autre polluants

**Mots clés:** Adsorption, Biomasse aquatique, Isotherme, Cinétique, Thermodynamique

## 1. INTRODUCTION

La recherche de nouveaux matériaux dans le domaine de la catalyse appliquée aux procédés industriels est un enjeu économique important [1-6]. Cette recherche est particulièrement orientée vers la préparation de catalyseurs performants qui doivent répondre à certains critères : stabilité à long terme, activité catalytique élevée, facilité de mise en œuvre et faible coût [7-12]. Cependant, il est difficile de réunir toutes ces exigences dans un seul matériau.

La dépollution des eaux usées et l'assainissement des réserves d'eau potable sont aujourd'hui une préoccupation majeure [13-24]. Parmi les progrès les plus récents dans le traitement de l'eau, les procédés d'oxydation hétérogène qui sont des solutions permettant la minéralisation en milieu aqueux de molécules organiques toxiques pour l'écosystème [25-41].

Dans notre présent travail, nous nous sommes intéressés à la synthèse de catalyseur supporté en utilisant le procédé d'imprégnation en voie liquide ou « humide » de type imprégnation diffusionnelle [42]. Nous avons élaboré des catalyseurs à base de cuivre supportés sur la bentonite commercialisé à différentes teneurs en métal (1%, 2.5%, 5% en masse). Enfin nous avons réalisé des tests catalytiques dans les réactions d'oxydation en présence de  $H_2O_2$  seul et  $H_2O_2$ /Soleil.

## 2-MATERIEL ET METHODE

### 2.1-Matériel

**a-** Dans la synthèse de nos catalyseurs nous avons choisi le Nitrate de Cuivre comme phase active et la bentonite commercialisée comme support.

**Tableau-1-**Les propriétés physico-chimiques du Nitrate de Cuivre.

| Produit           | Formule brute            | Masse molaire (g/L) | Pureté(%) | densité |
|-------------------|--------------------------|---------------------|-----------|---------|
| Nitrate de Cuivre | $Cu(NO_3)_2 \cdot 5H_2O$ | 232,59              | 98        | 2,32    |

**Tableau-2-** Les propriétés physico-chimiques de la bentonite commercialisée.

| Produit           | Formule brute            | Masse molaire (g/L) | Pureté(%) | densité |
|-------------------|--------------------------|---------------------|-----------|---------|
| Nitrate de Cuivre | $Cu(NO_3)_2 \cdot 5H_2O$ | 232,59              | 98        | 2,32    |

**b-**Dans cette étude nous nous intéressons à l'oxydation de deux colorants anionique et cationique qui sont respectivement: le Méthyle Orange et le Bleu de Méthylène.

**Tableau-3-**Les propriétés physico-chimiques des deux colorants du BM et MO

| Nom                          | Méthyle d'Orange         | Bleu de Méthylène    |
|------------------------------|--------------------------|----------------------|
| Formule chimique             | $C_{14}H_{14}N_3ONaO_3S$ | $C_{16}H_{18}ClN_3S$ |
| Point de fusion              | 19,85°C                  | 180°C                |
| Etat physique                | poudre                   | poudre               |
| Solubilité dans l'eau à 20°C | 5g/L                     | 40g/L                |
| Masse moléculaire            | 327,33 g/L               | 319,85               |
| Structure chimique           |                          |                      |

### c-Préparation des catalyseurs par imprégnation

Le cheminement suivi pour l'élaboration des catalyseurs de cuivre supporté sur la bentonite englobe les étapes suivantes [42]:

- Préparation de la solution de précurseur.
- L'imprégnation du support par la solution de précurseur.
- Le bain de sable
- La filtration
- Le lavage
- Le séchage.
- Le broyage.
- La calcination.
- Le broyage.

Une série de catalyseurs a été préparée, en faisant varier le taux du métal imprégné de 1 à 5 % (le pourcentage est massique).

### d-Caractérisation des catalyseurs

Les catalyseurs préparés par imprégnation sur argile commercial ont été caractérisés par la méthode spectroscopique à transformé de Fourier (FTIR)

#### 2-1- Techniques analytiques et méthode opératoire

##### a-Méthode opératoire

Les étapes sont les mêmes pour les trois pourcentages du catalyseur (1%, 2,5%, 5% en masse) :

Dans un volume de 300 ml de la solution de colorant, on introduit une masse de 0.1g du catalyseur et un volume de 3ml de  $H_2O_2$ . Le mélange préparé est agité magnétiquement à  $T=40^{\circ}C$ . Des prélèvements à des intervalles réguliers sont effectués et analysés par spectroscopie UV-Vis.

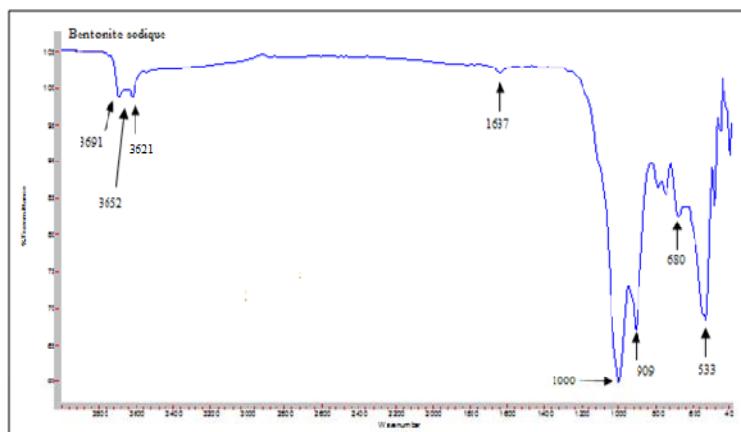
Un même essai a été effectué mais sans catalyseur.

##### b-Analyse par spectrophotométrie UV-visible

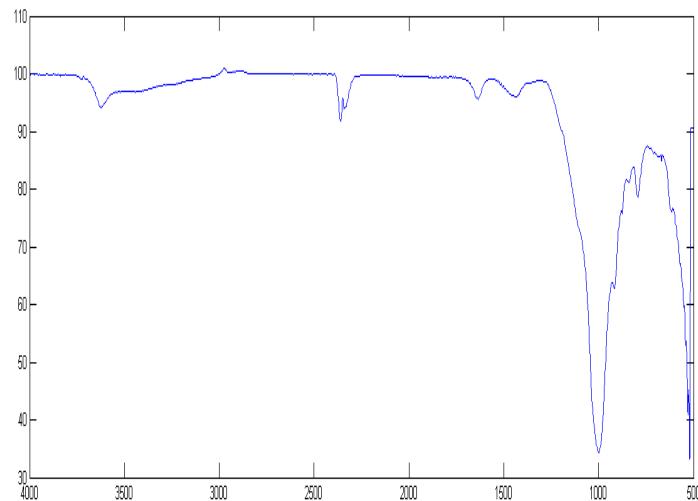
Les colorants de départ ainsi que les échantillons traités sont analysés par spectrophotométrie UV-Vis. En utilisant le spectrophotomètre UV-Visible de type SHIMADZU UV-1605.

### 3-Résultat et discussion

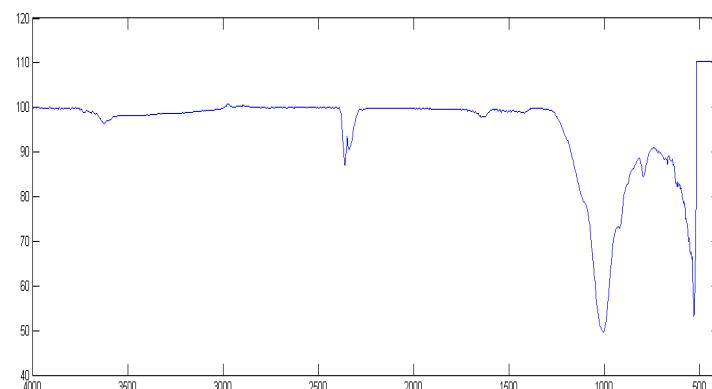
Les catalyseurs synthétisés ont été caractérisés par spectroscopie IR à transformé de Fourier. Les spectres sont illustrés dans les figures 1-4.



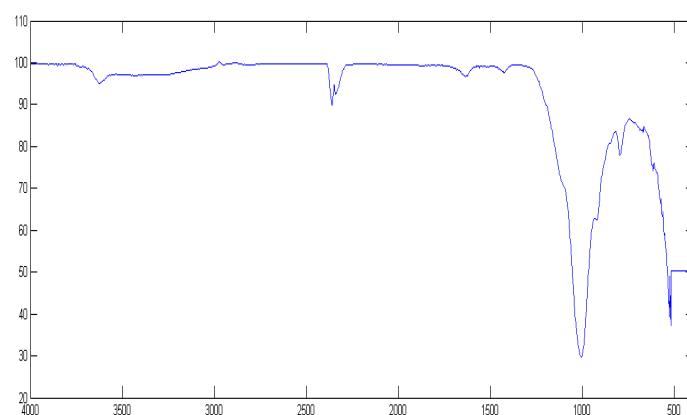
**Figure1** : Spectre IR de la Bentonite



**Figure 2** : Spectre IR CAT 1%



**Figure 3** : spectre IR CAT 2.5%



**Figure 4** : spectre IR CAT 5%

**Tableau 4** : les fréquences IR des vibrations des liaisons des catalyseurs

| $\nu$ (cm⁻¹) : OH | $\nu$ (cm⁻¹) : Si-O | $\nu$ (cm⁻¹) : Si-O-Al <sup>VI</sup> | $\nu$ (cm⁻¹) : Al <sup>VI</sup> -OH |
|-------------------|---------------------|--------------------------------------|-------------------------------------|
| 3600 et 1600      | 990                 | 690                                  | 900                                 |

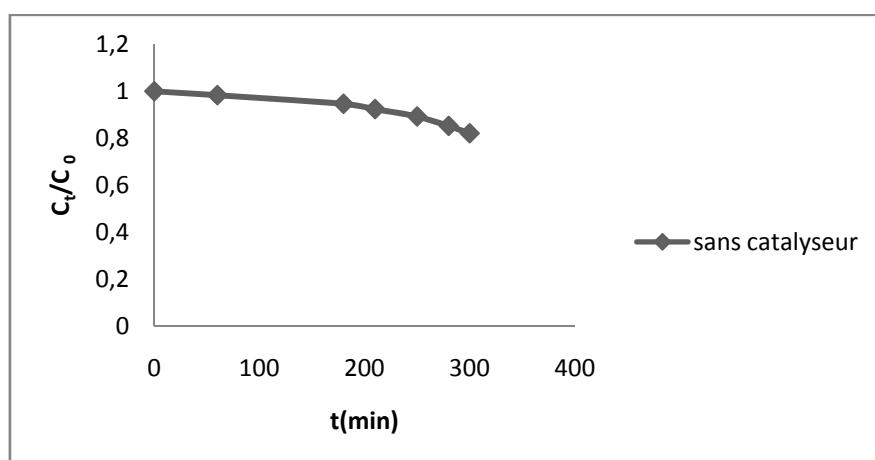
Les bandes d'absorption présentées dans le tableau I sont caractéristiques de la phase argileuse. Ces bandes correspondent aux liaisons : Si–O, Si–O–M, M–O–H (M= Al, Fe et Mg), existantes entre les anions et les cations situés dans les sites octaédriques ou tétraédriques, ainsi que les groupements OH.

Par ailleurs, Nous remarquons dans les spectres IR que les bandes vers  $3500\text{ cm}^{-1}$  diminuent d'intensité avec l'augmentation du pourcentage massique en phase active qui sont caractéristique de la liaison OH. De même pour le cas de la bande vers  $1000\text{ cm}^{-1}$  qui est caractéristique des vibrations d'allongement de la liaison Si–O.

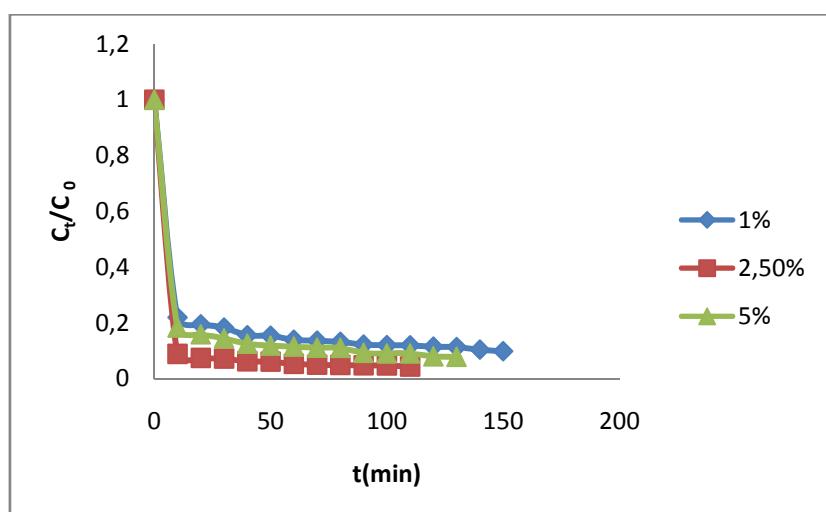
La bande moyenne qui s'étale entre  $1600\text{--}1700\text{ cm}^{-1}$  est attribuée aux vibrations de valence (allongement) de la liaison O–H de l'eau de constitution et aux vibrations de déformation des liaisons des molécules d'eau adsorbées entre les feuillets.

### 3-1- dégradation du Bleu de Méthylène

Les figures 5-6 donnent l'évolution de la concentration résiduelle du BM en fonction du temps d'irradiation en absence et en présence du catalyseur.



**Figure 5-** Dégradation du BM en absence du catalyseur.



**Figure 6-**Dégradation du colorant BM en présence du catalyseur (Cu/bentonite).

Il apparaît clairement que la courbe obtenu est une courbe légèrement décroissante, ce qui montre qu'il ya une faible diminution de la concentration cela signifie que la dégradation du BM en absence du catalyseur est très lente au cours du temps.

Les courbes de la dégradation du BM en présence du catalyseur sont des courbes décroissantes qui se terminent par un palier. La première partie se traduit par une chute rapide en concentration dans un intervalle du temps court, alors que la partie du palier se caractérise par une dégradation presque totale de la solution contaminée par le colorant.

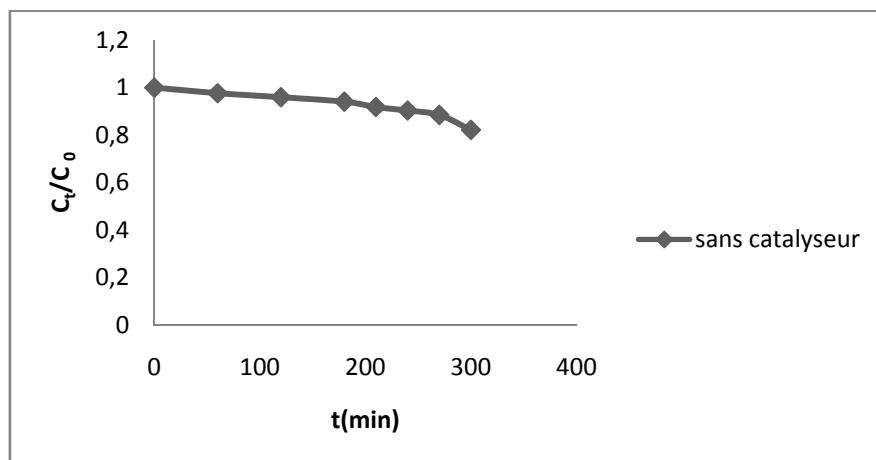
On remarque aussi, dans la partie décroissante, que la quantité dégradée du colorant BM en fonction du temps est presque la même pour les trois pourcentages du catalyseur mais elle diffère dans le cas du palier dont lequel la meilleure quantité éliminée de la solution contaminée correspond au catalyseur C<sub>2</sub> (2,5% en masse).

### 3-2- dégradation du Méthyle Orange

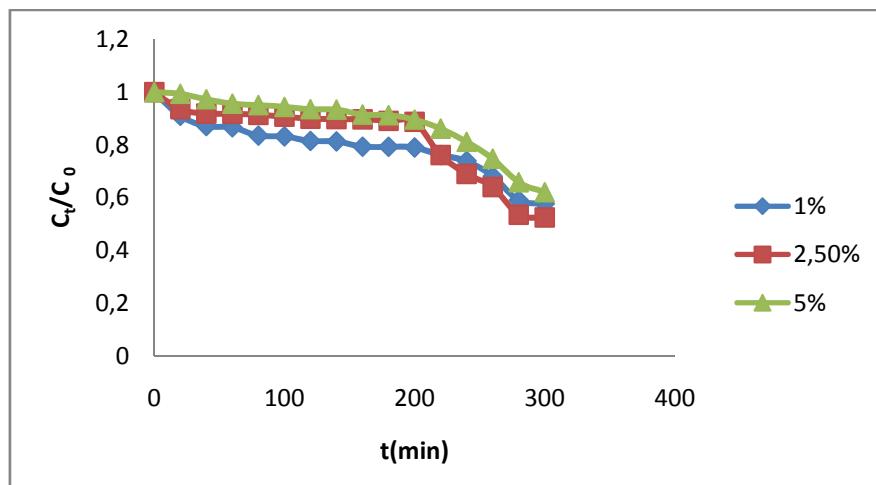
La dégradation du MO est effectuée selon le même mode opératoire que pour le cas du BM mais en absence et en présence du soleil afin d'améliorer le rendement de dégradation.

#### 3-2-a-dégradation du Méthyle Orange en absence du soleil.

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 7 et la figure 8.



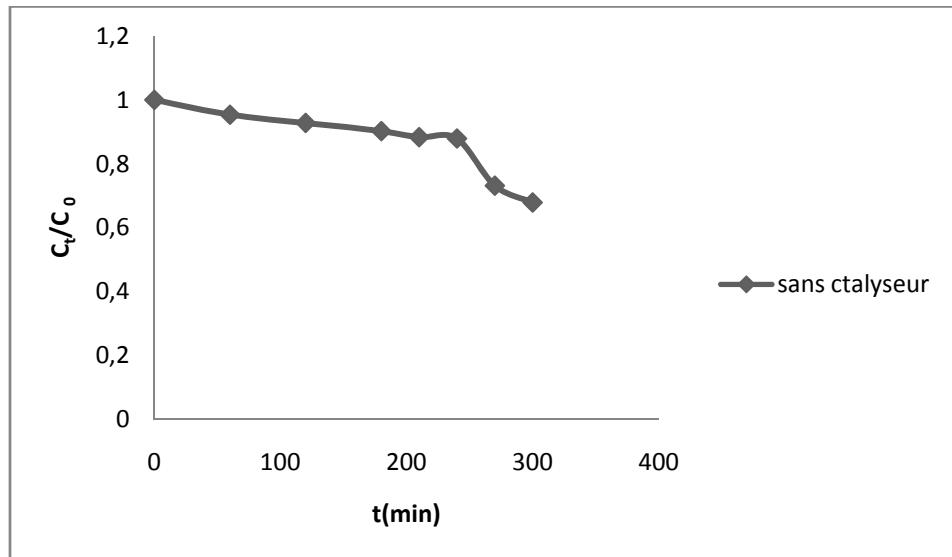
**Figure 7-** Dégradation du colorant MO en absence du catalyseur.



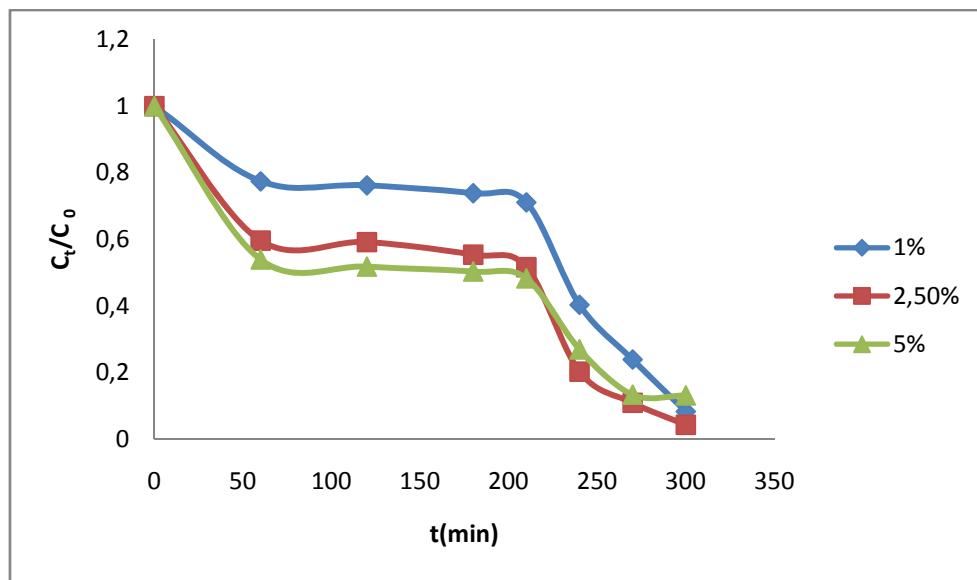
**Figure 8-** dégradation du colorant MO en présence du catalyseur (Cu /bentonite).

### 3-2-b-dégradation du colorant MO sous l'effet du soleil

Les résultats de variation de la concentration du MO en fonction du temps sous l'effet du soleil en absence et en présence du catalyseur sont illustrés par les figures 9-10.



**Figure-9-** dégradation du colorant MO sous l'effet de soleil en absence du catalyseur.



**Figure-10-** dégradation du colorant MO sous l'effet de soleil en présence du catalyseur (Cu/bentonite).

#### Sans catalyseur

D'après la figure 9 et 10 on remarque qu'il ya une faible diminution de la concentration du colorant ce qui montre que l'élimination de la solution contaminée en MO en absence du catalyseur est très lente en fonction du temps. On peut constater aussi que La quantité éliminée de MO sous l'effet du soleil en absence du catalyseur est supérieure à celle éliminée en absence du soleil.

#### Avec catalyseur

Les courbes obtenus pour les différentes pourcentages du catalyseur dans la dégradation du MO en présence du catalyseur en absence ou sous l'effet du soleil sont des courbes décroissantes se qui

signifie qu'il ya une diminution de la concentration de polluant dans la solution contaminé. En effet, on peut distinguer que:

L'élimination du MO en présence du catalyseur sous l'effet du soleil est presque totale pour les trois pourcentages du catalyseur.

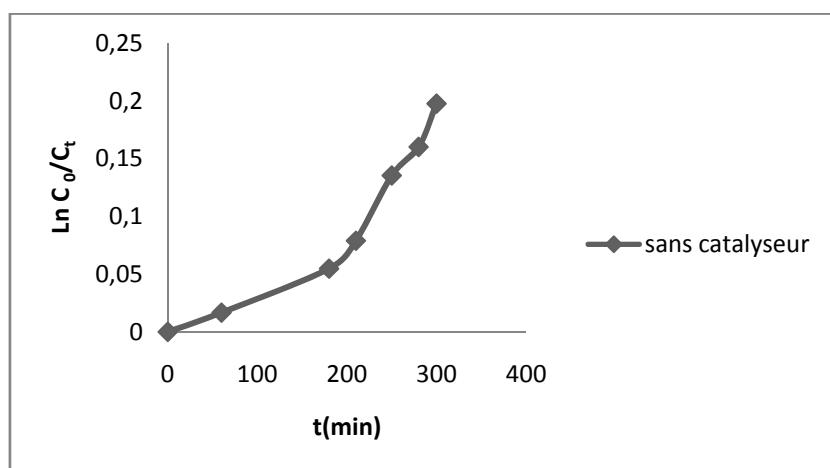
La quantité éliminée de MO sous l'effet du soleil est supérieure à celle éliminée à l'abri du soleil dont lequel l'élimination est presque totale dans le premier cas.

Dans les deux cas la meilleure quantité éliminée de la solution contaminée correspond au catalyseur C<sub>2</sub> (2,5% en masse).

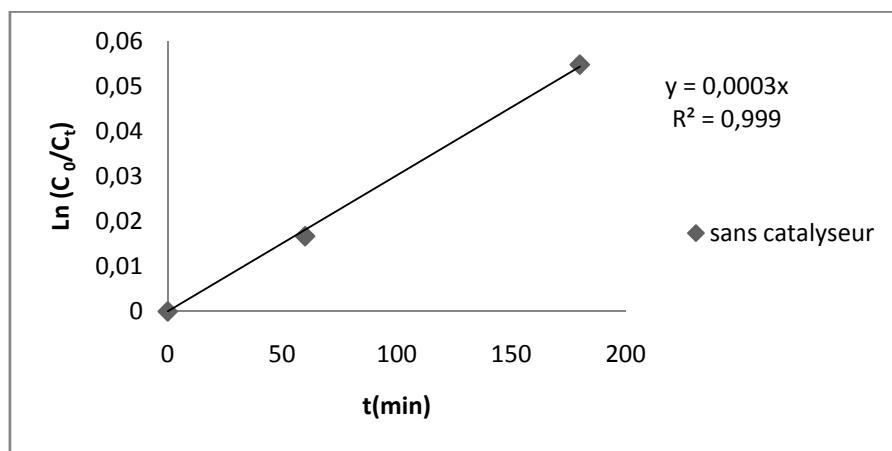
### 3-3-Etude cinétique

Nous avons utilisé dans cette étude, la loi cinétique donnée par l'équation suivante :

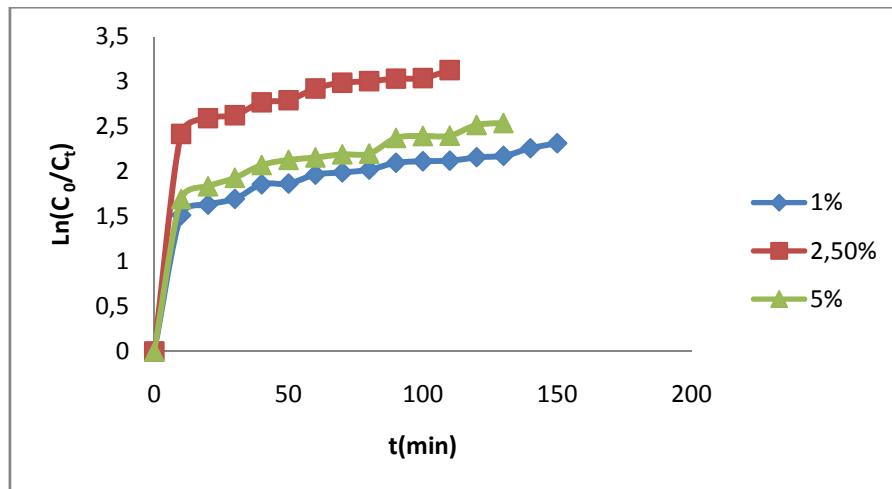
#### 3- 3-1-Etude cinétique de la réaction de dégradation du colorant BM



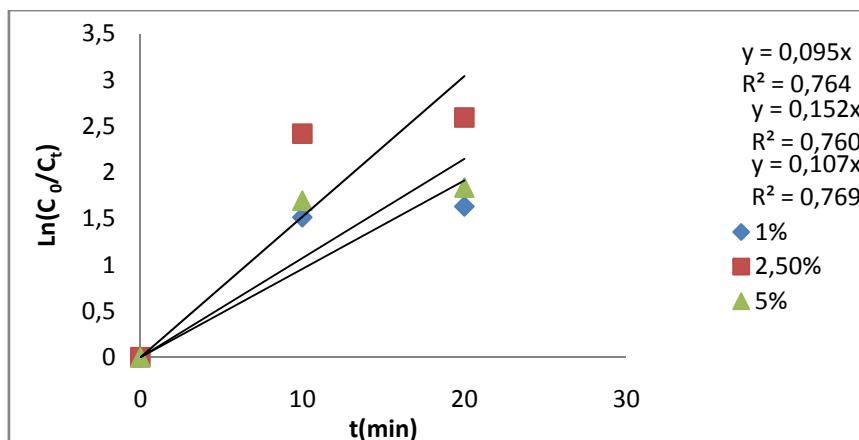
**Figure-11-** La cinétique de la réaction de dégradation du colorant BM en absence du catalyseur.



**Figure 12-** représentation de  $\ln (C_0/C)$  en fonction du temps pour la première partie.



**Figure-13-**La cinétique de la réaction de dégradation du colorant BM en présence du catalyseur (Cu/bentonite).



**Figure 14-** représentation de  $\ln(C_0/C)$  en fonction du temps pour la première partie.

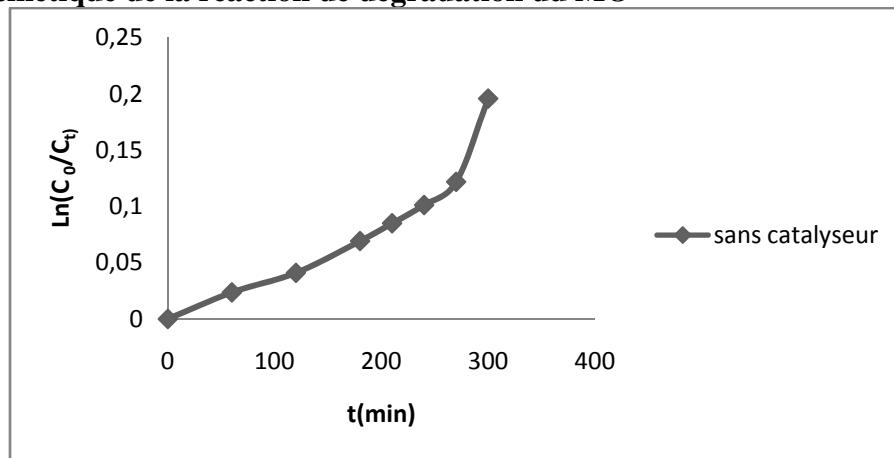
L'ensemble des paramètres cinétiques déterminés à partir de ces droites est rassemblé dans le tableau 4.

**Tableau 4-** Les paramètres cinétiques du pseudo-premier-ordre pour la première partie.

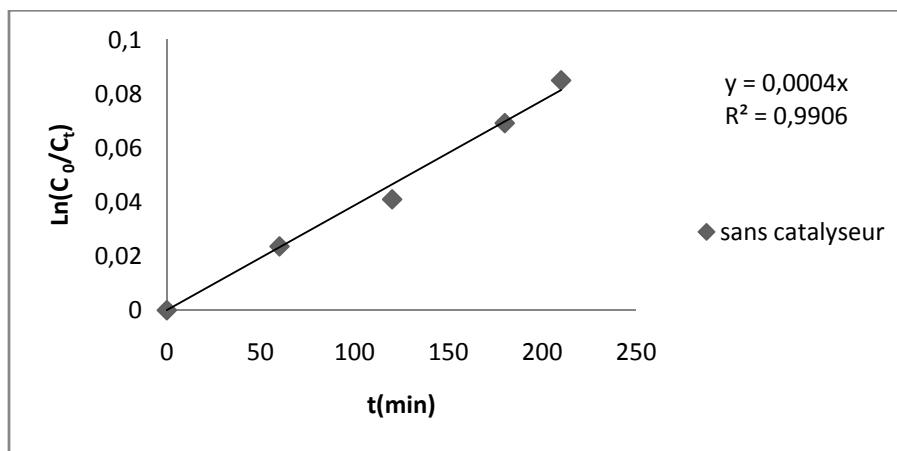
| Catalyseur          | $k_1$  | $R_1^2$ |
|---------------------|--------|---------|
| Sans catalyseur     | 0,0003 | 0,999   |
| Cu/bentonite (1%)   | 0,095  | 0,764   |
| Cu/bentonite (2,5%) | 0,152  | 0,760   |
| Cu/bentonite (5%)   | 0,107  | 0,769   |

D'après les résultats obtenus, on remarque que la dégradation du BM en présence du catalyseur ne suit pas une cinétique de premier ordre, par contre dans le cas où la réaction s'effectuée en absence du catalyseur la dégradation a lieu en deux étapes. La première étape du processus suit une cinétique du premier ordre et une seconde étape plus lente jusqu'à la fin du processus de dégradation catalytique.

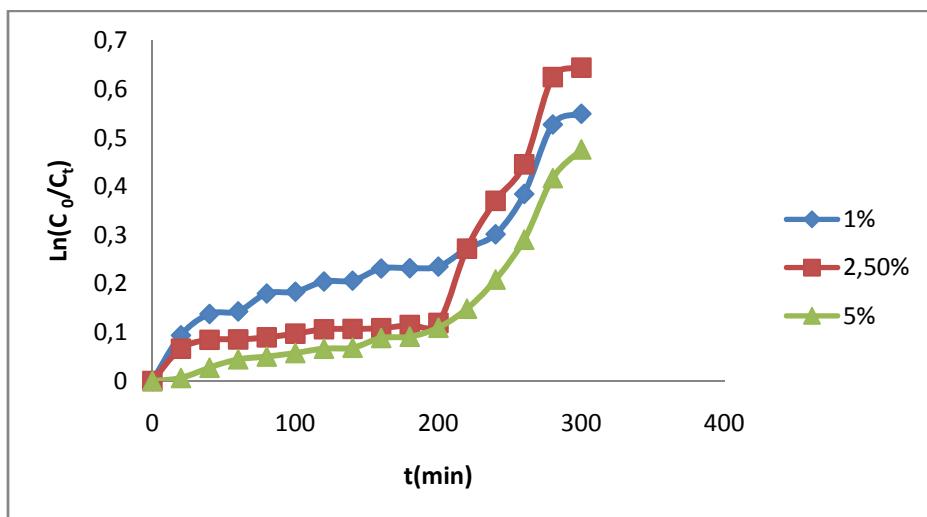
**3- 3-2-Etude cinétique de la réaction de dégradation du MO**



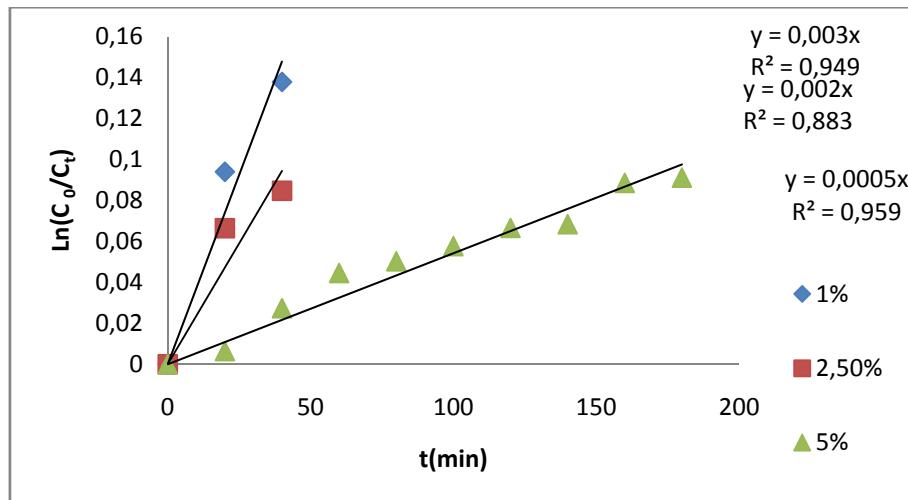
**Figure 15**-La cinétique de la réaction de dégradation du colorant MO en absence du catalyseur (Cu/bentonite).



**Figure 16**- représentation de  $\ln(C_0/C_t)$  en fonction du temps pour la première partie.



**Figure 17**-La cinétique de la réaction de dégradation du colorant MO en présence du catalyseur (Cu/bentonite).



**Figure 18-** représentation de  $\ln (C_0/C_t)$  en fonction du temps pour la première partie.

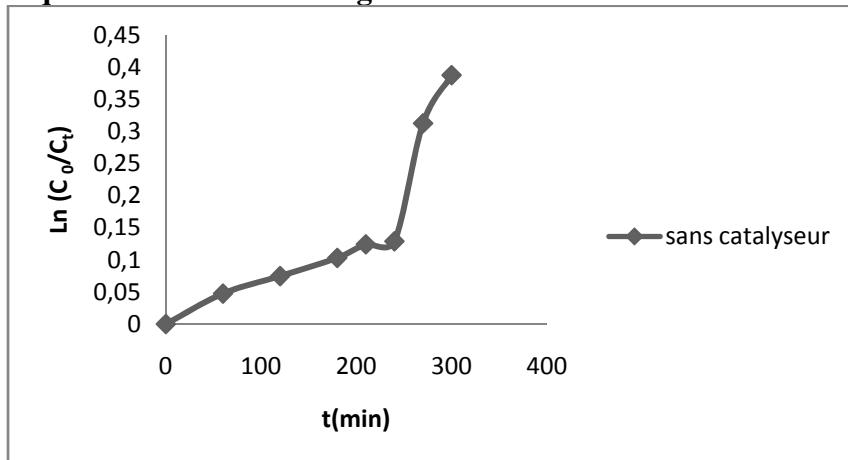
L'ensemble des paramètres cinétiques déterminés à partir de ces droites est rassemblé dans le tableau 5.

**Tableau 5-** Les paramètres cinétiques du pseudo-premier-ordre pour la première partie.

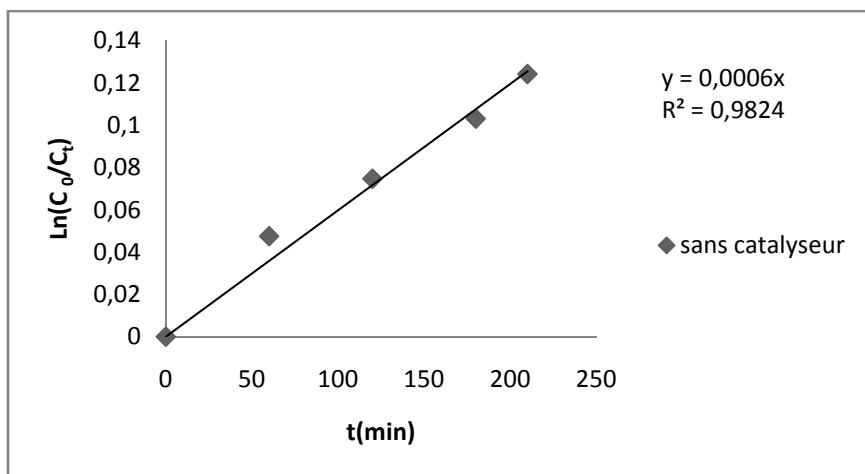
| Catalyseur          | $k_1$   | $R^2$  |
|---------------------|---------|--------|
| Sans catalyseur     | 0,00004 | 0,9906 |
| Cu/bentonite (1%)   | 0,003   | 0,949  |
| Cu/bentonite (2,5%) | 0,002   | 0,883  |
| Cu/bentonite (5%)   | 0,0005  | 0,959  |

Les figures montrent que la minéralisation de MO en présence de l'agent oxydant suit une cinétique de premier ordre dans les deux cas avec et sans catalyseur, dont lequel la dégradation catalytique se déroule en deux étapes. La première étape du processus est caractérisée par une cinétique de premier ordre tandis que la deuxième est plus lente jusqu'à la fin de processus de réaction.

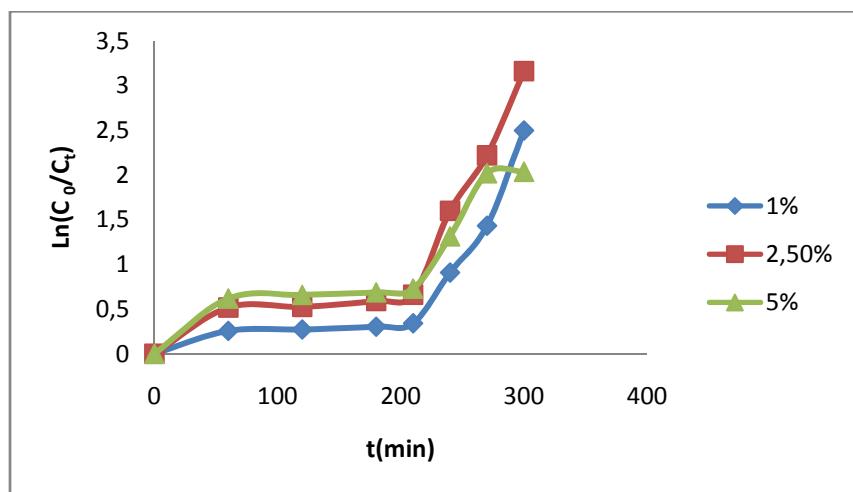
### 3-3-3-Etude cinétique de la réaction de dégradation du MO sous l'effet du soleil



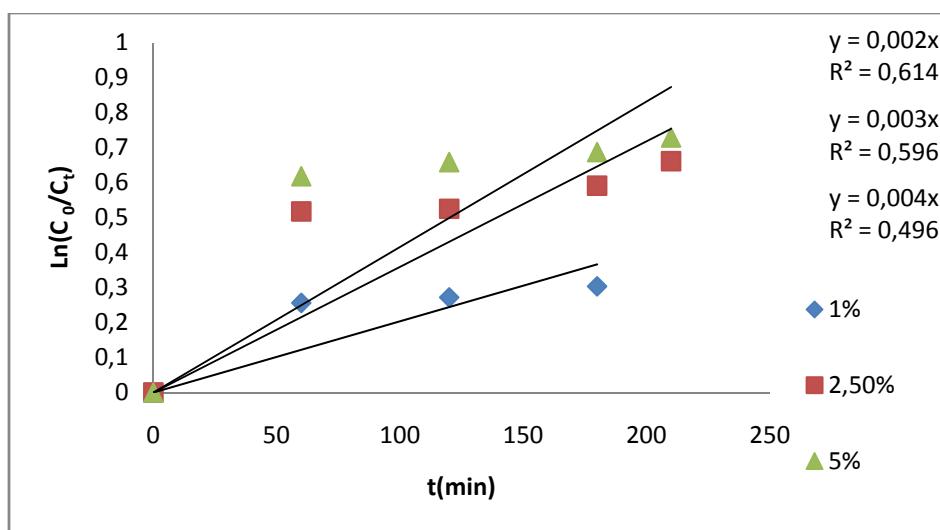
**Figure 19-** La cinétique de la réaction de dégradation du colorant MO sous l'effet du soleil en absence du catalyseur.



**Figure 20-** représentation de  $\ln (C_0/C_t)$  en fonction du temps pour la première partie.



**Figure 21-** La cinétique de la réaction de dégradation du colorant MO sous l'effet du soleil en présence du catalyseur.



**Figure 22-** représentation de  $\ln (C_0/C_t)$  en fonction du temps pour la première partie.

L'ensemble des paramètres cinétiques déterminés à partir de ces droites est rassemblé dans le tableau 6.

**Tableau 6-** Les paramètres cinétiques du pseudo-premier-ordre pour la première partie.

| Catalyseur          | $k_1$  | $R_1^2$ |
|---------------------|--------|---------|
| Sans catalyseur     | 0,0006 | 0,9824  |
| Cu/bentonite (1%)   | 0,002  | 0,614   |
| Cu/bentonite (2,5%) | 0,003  | 0,596   |
| Cu/bentonite (5%)   | 0,004  | 0,496   |

Comme pour le BM, on remarque que la cinétique du premier ordre a lieu seulement dans le cas où la dégradation catalytique du MO se déroule en absence du catalyseur.

#### 4-Conclusion

Ce travail avait pour objectif de synthétiser un catalyseur supporté en différente teneur en métal (1%, 2,5% et 5% en masse). Dans ce cadre nous nous sommes intéressés aux catalyseurs à base de cuivre supporté sur la bentonite commercialisée préparés par le procédé d'imprégnation en voie liquide ou « humide » de type imprégnation diffusionnelle pour une utilisation en catalyse hétérogène notamment dans les procédés d'oxydation.

Les matériaux élaborés sont caractérisés par la spectroscopie infrarouge (FTIR).

Au cours de l'étude de dégradation catalytique des colorants par (Cu/bentonite), plusieurs résultats ont été mis en évidence :

La dégradation de Bleu de Méthylène en présence du l'agent oxydant  $H_2O_2$  et le catalyseur (Cu/bentonite) est presque totale pour les trois pourcentages du catalyseur.

Le rendement de minéralisation de Méthyle d'Orange sous une irradiation solaire en présence de l'agent oxydant  $H_2O_2$  et le catalyseur (Cu/bentonite) est très important comparé à ceux sans irradiation solaire. En effet la photodégradation est presque totale dans le premier cas. On peut conclure donc que la lumière solaire peut être utilisée comme une source d'activation (abondante et renouvelable) des photocatalyseurs.

La dégradation de Méthyle d'Orange et de Bleu de Méthylène en présence de  $H_2O_2$  et en absence du catalyseur (Cu/bentonite) est légèrement faible et très lente au cours de temps ce qui montre que le catalyseur joue un rôle très important au cours de la réaction dans laquelle il permet d'accélérer sa vitesse.

L'étude cinétique a confirmé que la décoloration du Méthyle d'Orange sous irradiation en présence de  $H_2O_2$  et (Cu/bentonite) pourrait être décrite par une loi cinétique apparente de premier ordre. De même pour la dégradation de Bleu de Méthylène et Méthyle d'Orange en absence du catalyseur et en présence de  $H_2O_2$ .

#### Références

- 1-M. Campanati, G. Fornasari, A. Vaccari, *Catalysis Today* 77 (2003) 299–314
- 2- J.A. Melero, R. van Grieken, G. Morales, *Chem. Rev.* 106 (2006) 3790–3812.
- 3- M. Hara, T. Yoshida, A. Takagaki, T. Takata, J.N. Kondo, S. Hayashi, K. Domen, *Angew. Chem. Int.* 43 (2004) 2955–2958.
- 4- M.D. González, Y. Cesteros, J. Llorca, P. Salagre, *J. Catal.* 290 (2012) 202–209.
- 5- H.E. Armstrong, W.H. Glover, *Proc. R. Soc. Lond. Ser. B* 80 (1908) 312–321
- 6-A. Gharib , L. Vojdanifard, N. Noroozi Pesyan, B. R. Hashemi Pour Khorasani, M. Jahangir, M. Roshani, *Bulgarian Chemical Communications*, 46, (2014), 667 – 679

- 7- B. Delmon, P. Jacobs, G. Poncelet (Eds.), Preparation of Catalyst 1, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 1, Elsevier, Amsterdam, 1976, and following books of the same series (last vol. 143).
- 8- J.W. Geus, in: G. Poncelet, P. Grange, P.A. Jacobs (Eds.), Preparation of Catalysts III, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 16, Elsevier, Amsterdam, 1983, p. 1.
- 9- Ph. Courty, Ch. Marcilly, in: G. Poncelet, P. Grange, P.A. Jacobs (Eds.), Preparation of Catalysts III, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 16, Elsevier, Amsterdam, 1983, p. 485.
- 10- P.T. Cardew, R.J. Davey, P. Ellitt, A.W. Nienow, J.P. Winterbottom, in: B. Delmon, P. Grange, P.A. Jacobs, G. Poncelet (Eds.), Preparation of Catalysts IV, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 31, Elsevier, Amsterdam, 1987, p. 15.
- 11- I. Biay, C. Dossalces, C. Hypolite, F. Kolenda, J.P. Reymond, in: G. Poncelet, P.A. Jacobs, P. Grange, B. Delmon (Eds.), Preparation of Catalysts V, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 63, Elsevier, Amsterdam, 1991, p. 1.
- 12- T.P.M. Beelen, W.H. Dokter, H.T. van Garderen, R.A. van Santen, E. Pantos, in: G. Poncelet, J. Martens, B. Delmon, P.A. Jacobs, P. Grange (Eds.), Preparation of Catalysts VI, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 91, Elsevier, Amsterdam, 1995, p. 33.
- 13- Y.J. Chan, M.F. Chong, C.L. Law et D.G. Hassell, A review on anaerobic-aerobic treatment of industrial and municipal wastewater, *Chem. Eng. J.*, 155, 1-18, 2009.
- 14- S. Imamura, Catalytic and Noncatalytic Wet Oxidation, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 38, 1743-1753, 1999.
- 15- M.W. Chang et J.M. Chern, Stripping of organic compounds from wastewater as an auxiliary fuel of regenerative thermal oxidizer, *J. Hazard. Mater.*, 167, 553-559, 2009.
- 16- S. Wang et Y. Peng, Natural zeolites as effective adsorbents in water and wastewater treatment, *Chem. Eng. J.*, 156, 11-24, 2010.
- 17- V. Fierro, V. Torné-Fernández, D. Montané et A. Celzard, Adsorption of phenol onto activated carbons having different textural and surface properties, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 111, 276-284, 2008.
- 18- W. Kujawski, A. Warszawski, W. Ratajczak, T. Porbski, W. Capala et I. Ostrowska, Application of pervaporation and adsorption to the phenol removal from wastewater, *Sep. Purif. Technol.*, 40, 123-132, 2004.
- 19- C.A. Wedeking, V.L. Snoeyink, R.A. Larson et J. Ding, Wet air regeneration of PAC: Comparison of carbons with different surface oxygen characteristics, *Water Res.*, 21, 929-937, 1987.
- 20- N. Durán et E. Esposito, Potential applications of oxidative enzymes and phenoloxidases-like compounds in wastewater and soil treatment: a review, *Appl. Catal. B: Environ.*, 28, 83-99, 2000.
- 21- K. Nazari, N. Esmaeili, A. Mahmoudi, H. Rahimi et A.A. Moosavi-Movahedi, Peroxidative phenol removal from aqueous solutions using activated peroxidise biocatalyst, *Enzyme Microb. Technol.*, 41, 226-233, 2007.
- 22- W.M. Throop, Alternative methods of phenol wastewater control, *J. Hazard. Mater.*, 1, 319-329, 1975/1977.
- 23- M.J. Pacheco, A. Morão, A. Lopes, L. Ciríaco et I. Gonçalves, Degradation of phenols using boron-doped diamond electrodes: A method for quantifying the extent of combustion, *Electrochim. Acta*, 53, 629-636, 2007.
- 24- M. Panizza et G. Cerisola, Removal of organic pollutants from industrial wastewater by electrogenerated Fenton's reagent, *Water. Res.*, 35, 3987-3992, 2001.
- 25- R. Andreozzi, V. Caprio, A. Insola et R. Marotta, Advanced oxidation processes (AOP) for water purification and recovery, *Catal. Today*, 53, 51-59, 1999.
- 26- B. Kasprzyk-Hordern, M. Ziółek et J. Nawrocki, Catalytic ozonation and methods for enhancing molecular ozone reactions in water treatment, *Appl. Catal. B: Environ.*, 46, 639-669, 2003.
- 27- P.R. Gogate et A.B. Pandit, A review of imperative technologies for wastewater treatment I: oxidation technologies at ambient conditions, *Adv. Environ. Res.*, 8, 501-551, 2004.
- 28- H.J.H. Fenton, Oxidation of tartaric acid in the presence of iron, *J. Chem. Soc.*, 65, 899, 1894.
- 29- C. Walling, Fenton's Reagent Revisited, *Acc. Chem. Res.*, 8, 125-131, 1975.
- 30- J.J. Pignatello, Dark and Photoassisted  $Fe^{3+}$ -Catalyzed Degradation of Chlorophenoxy Herbicides by Hydrogen Peroxide, *Environ. Sci. Technol.*, 26, 944-951, 1992.
- 31- F.J. Rivas, S.T. Kolaczkowski, F.J. Beltrán et D.B. McLurgh, Development of a model for the wet air oxidation of phenol based on a free radical mechanism, *Chem. Eng. Sci.*, 53, 2575-2586, 1998.

- 32-A. Sadana, J.R. Katzer, Involvement of Free Radicals in the Aqueous-Phase Catalytic Oxidation of Phenol Over Copper Oxide, *J. Catal.*, 35, 140-152, 1974.
- 33-A. Pintar et J. Levec, Catalytic Oxidation of Organics in Aqueous Solutions – I. Kinetics of Phenol Oxidation, *J. Catal.*, 135, 345-357, 1992.
- 34-J. De Laat et H. Gallard, Catalytic Decomposition of Hydrogen Peroxide by Fe(III) in Homogeneous Aqueous Solution: Mechanism and Kinetic Model, *Environ. Sci. Technol.*, 33, 2726-2732, 1999.
- 35-J. Kiwi, C. Pulgarin, P. Peringer et M. Gratzel, Beneficial effects of homogeneous photo-Fenton pretreatment upon the biodegradation of anthraquinone sulfonate in waste water treatment, *Appl. Catal. B: Environ.*, 3, 85-99, 1993.
- 36-Y.S. Ma, C.F. Sung et J.G. Lin, Degradation of carbofuran in aqueous solution by ultrasound and Fenton processes: Effect of system parameters and kinetic study, *J. Hazard. Mater.*, 178, 320-325, 2010.
- 37-M.N. Chong, B. Jin, C.W.K. Chow et C. Saint, Recent developments in photocatalytic water treatment technology: A review, *Water Res.*, 44, 2997-3027, 2010
- 38-Beltran F., Encinar J. et Gonzalez J., 1997, *Water Res.*, 31, 2415–2428.
- 39- Brindeley G., Sharp J., Patterson J. et Narahari A., 1967, *American Mineralogy*, 52, 201-211.
- 40- Centi G., Perathoner S., Torre T. et Verduna M., 2000, *Catalysis Today*, 55, 61-69
- 41- Combes J., Manceau A., Galas G. et Bottero J., 1989, *Gosmochem Acta*, 56, 583.
- 42-M. Campanati, G. Fornasari, A. Vaccari, Fundamentals in the preparation of heterogeneous catalysts, *Catalysis Today* 77 (2003) 299–314

# PhytoChem & BioSub Journal

Peer-reviewed research journal on Phytochemistry & Bioactives Substances

ISSN 2170 - 1768



*PCBS Journal*



Edition LPSO - Phytochemistry & Organic Synthesis Laboratory-

<https://sites.google.com/site/phytochembsj/>

Email: phytochem07@yahoo.fr