

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA
RECHERCHE

SCIENTIFIQUE



UNIVERSITÉ SALAH BOUBNIDER, CONSTANTINE 03
FACULTÉ DE GÉNIE DES PROCÉDÉS
DÉPARTEMENT DE GÉNIE DE L'ENVIRONNEMENT

N° d'ordre :

Série :

Mémoire

PRÉSENTÉ POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE MASTER
EN GÉNIE DES PROCÉDÉS
OPTION : GÉNIE DES PROCÉDÉS DE L'ENVIRONNEMENT

SYNTHÈSE D'UN MATÉRIAU CARBONNE : OXYDE DE GRAPHÈNE VERT

Présenté par :

BENMOUSSA DARINE SOUHA
BENMAIZA YASMINE SALIMA INES

Dirigé par :

ARRIS Sihem
Grade : Professeur

Année universitaire

2024-2025

Session : Juillet

Sommaire :

<i>LISTE DE FIGURE</i>	11
<i>LISTE DE TABLEAU</i>	13
<i>LISTE DES ABREVIATIONS</i>	14
<i>LISTE D'EQUATION</i>	15
<i>INTRODUCTION GENERALE</i>	16
CHAPITRE 1 : PARTIE BIBLIOGRAPHIQUE	19
1. INTRODUCTION	19
2. DEFINITION ET CARACTERISTIQUES DES MATERIAUX INTELLIGENTS	20
<i>2.1. Définition et caractéristiques</i>	21
3. GENERALISTES SUR LE GRAPHENE ET SES COMPOSITES	22
<i>3.1. Définition :</i>	22
4. STRUCTURE DU GRAPHENE	24
5. PROPRIETES DU GRAPHENE	25
<i>5.1. Propriétés du graphène</i>	25
<i>5.2. Propriétés mécaniques</i>	26
<i>5.3. Propriétés électroniques</i>	26
<i>5.4. Autres caractéristiques</i>	26
6. METHODES DE SYNTHESE DU GRAPHENE	26
<i>6.1. Exfoliation physique</i>	27
<i>6.2. Exfoliation chimique</i>	29
<i>6.3. Exfoliation électrochimique</i>	31
7. AVANTAGES DU GRAPHENE.....	32
<i>7.1. Avantages du graphène en matière de développement durable</i>	33
8. L'OXYDE DE GRAPHENE	33
9. LA STRUCTURE DE L'OXYDE DE GRAPHENE	34
10. APPLICATIONS DU GRAPHENE.....	35
11. PHENOMENE ADSORPTION	36
<i>11.1. Définition d'adsorption</i>	36
<i>11.2. Types d'adsorption</i>	36
12. PRINCIPAUX ADSORBANTS INDUSTRIELS	37
<i>Charbon actif :</i>	37
<i>Zéolithes :</i>	37

<i>Silice activée :</i>	37
<i>Alumine activée :</i>	37
<i>Gels de silice</i>	37
13. LES FORMES DE CARBON	38
13.1. <i>Les formes amorphes</i>	38
13.2. <i>Les formes synthétiques</i>	39
13.3. <i>Les formes cristallines</i>	40
14. SYNTHÈSE DE L'OXYDE DE GRAPHÈNE.....	41
14.1. <i>Matériels</i>	41
14.2. <i>Procédure</i>	41
15. LES PROPRIÉTÉS DE L'OXYDE DE GRAPHÈNE	42
16. APPLICATION DE L'OXYDE DE GRAPHÈNE	43
17. SYNTHÈSE SUR L'EXPLOITATION DE L'OXYDE DE GRAPHÈNE, ET L'OXYDE DE GRAPHÈNE REDUIT DANS TRAITEMENT DES EAUX	44
18. POURQUOI PRÉFÉRER LE RGO AU GO ?	46
19. REVUES GLOBALES	47
CHAPITRE 2 : MATÉRIELS ET MÉTHODES	49
2.1. INTRODUCTION	49
2.2. LES RÉACTIFS CHIMIQUES	49
2.3. LES NOYAUX DE DATTE	49
2.4. MATÉRIELS UTILISÉS.....	50
2.5. PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE	56
2.5.1. <i>Mode opératoire</i>	56
<i>Procédure</i>	56
<i>Procédure</i>	58
2.6. RÉDUCTION DE L'OXYDE DE GRAPHÈNE (RGO)	59
2.6.1 <i>Réduction de l'oxyde de graphène (rGO) avec (NaOH, l'ail et zeste de citron)</i>	60
2.7. ÉTAPES GÉNÉRALES ET INTÉRÊTS DE FABRICATION DU RGO À PARTIR DE NOYAUX DE DATTE	61
2.7.1. <i>Carbonisation des noyaux de datte</i>	61
2.7.2. <i>Activation chimique ou physique</i>	61
2.7.3. <i>Exfoliation pour obtenir de l'oxyde de graphène (GO)</i>	61
2.7.4. <i>Réduction du GO en rGO</i>	62
2.8. APPLICATIONS POSSIBLES DU RGO ISSU DE NOYAUX DE DATTE.....	62

2.9. METHODES D'ANALYSE.....	62
2.9.1. Analyse par Spectrophotométrie UV-visible	62
<i>Source de lumière</i>	63
<i>Système dispersif</i>	63
<i>Détecteur</i>	64
2.10. ETABLISSEMENT DE LA COURBE D'ETALONNAGE	65
2.10.1. Préparation des solutions étalons.....	65
2.10.2. Préparation de solutions étalons de safranine en présence de rGO réduit par NaOH, ail et zeste de citron	66
2.11. DEFINITION DE LA SPECTROSCOPIE FTIR	67
2.11.1. Objectif de l'analyse.....	67
2.11.2 Principe de la méthode.....	67
2.11.3. Méthodologie (ou Protocole)	68
CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSION	70
3.1. INTRODUCTION	70
3.2. RESULTATS DE L'ELIMINATION DU SAFRANINE O PAR SORPTION SUR LES OG	70
3.2.1. Introduction.....	70
3.3. ETUDE PRELIMINAIRE	71
3.3.1. GRAPHITE avec NAOH, ZESTE ET L'AIL.....	72
3.3.2. Noyau de datte calcinée a 700C avec NAOH, ZESTE ET L'AIL.....	73
3.4. ETUDE DE L'ADSORPTION DE LA SAFRANINE O PAR LES OXYDES DE GRAPHENE.	75
3.4.1. Effet de temps de contact	76
3.5. COMPARAISON DE LA PERFORMANCE DES REDUCTEURS TESTES POUR LA SYNTHESE DE RGO A BASE DE GRAPHITE.....	80
3.6. POUR L'OXYDE DE GRAPHENE A BASE DES NOYAUX DE DATTE	81
3.7. COMPARAISON DES REDUCTEURS POUR LA SYNTHESE DU RGO A BASE DE NOYAUX DE DATTES	85
3.8. COMPARAISON DE LA PERFORMANCE DES REDUCTEURS TESTENT POUR LA SYNTHESE DE RGO A BASE DE NOYAUX DE DATTES	86
3.9. CONCLUSION.	88
3.10. ETUDE DE LA CINETIQUE D'ADSORPTION.....	88
3.10.1. Modèle cinétique du pseudo premier ordre (modèle lagrangien).....	88
3.10.2. Modèle cinétique du pseudo deuxième ordre :.....	90
3.10.3. Modèle de la cinétique de la diffusion intra particulaire (IPD) :.....	92
3.10.4. Isotherme d'Elovich :.....	95

Résumé

Cette étude a pour objectif de valoriser des ressources carbonées locales, à savoir le graphite pur et les noyaux de dattes, afin de synthétiser des oxydes de graphène réduits (rGO) pour l'adsorption du colorant Safranine O, polluant modèle des eaux usées industrielles. Trois réducteurs ont été comparés : la soude caustique (NaOH), le zeste de citron (ZC) et l'extrait d'ail (AL). La réduction a été effectuée à température ambiante (24 °C) après optimisation de calcination du noyau de datte.

Des tests préliminaires ont montré que les noyaux calcinés à 700 °C et 950 °C sont tous deux efficaces, mais la température de 700 °C a été retenue car elle permet d'obtenir un bon rendement, une structure amorphe réactive et une consommation énergétique réduite.

Les essais d'adsorption ont révélé des capacités maximales comprises entre 4,1 et 5,3 mg/g, atteintes entre 45 et 120 minutes selon le matériau. Le zeste de citron a permis d'atteindre jusqu'à 4,97 mg/g, soit une efficacité comparable à celle de NaOH, tout en présentant de nombreux avantages : zéro toxicité, aucun traitement des effluents, faible coût et origine naturelle renouvelable. L'extrait d'ail présente une adsorption légèrement plus faible ($\approx 4,94$ mg/g) et une stabilité chimique moins favorable. L'ajustement des données expérimentales au modèle cinétique du pseudo-second ordre ($R^2 = 1$) indique une adsorption chimique rapide dominée par les interactions de surface. Les autres modèles (pseudo-premier ordre, Elovich, diffusion intraparticulaire) ne s'ajustent pas, ce qui confirme l'absence de limitation par la porosité. Les analyses FTIR confirment la présence de groupes fonctionnels oxygénés tels que O-H (~ 3400 cm⁻¹), C=O (~ 1700 cm⁻¹) et C-O-C (~ 1100 cm⁻¹), qui favorisent les interactions hydrogène et électrostatiques avec la Safranine O. Les matériaux réduits par zeste de citron présentent une surface riche en fonctions actives, comparable voire supérieure à celle obtenue par réduction chimique. En conclusion, l'extrait de zeste de citron s'impose comme le meilleur réducteur, combinant excellente performance d'adsorption, impact écologique positif, disponibilité locale et intégration dans une stratégie de développement durable. Il constitue ainsi une alternative prometteuse pour la synthèse de matériaux adsorbants appliqués au traitement des eaux colorées.

LES MOTS clés : Oxyde graphene, graphite, noyau de datte, réduction, adsorption, traitement des eaux, Valorisation des ressources carbonées réduction naturelle

المخلص

يهدف هذا البحث إلى تقييم الموارد الكربونية المحلية، وهي الغرافيت النقي ونوى التمر، من أجل تحضير أكسيد الغرافين

، والتي تُعد ملوثاً نموذجياً في المياه الصناعية المستعملة. تمت مقارنة ثلاثة عوامل اختزال: O واستعماله في امتصاص صبغة السافرنين (rGO) المختزل بعد تحديد درجة (24 °C) تم إجراء عملية الاختزال في درجة حرارة الغرفة (AL)، ومستخلص الثوم (ZC)، قشور الليمون (NaOH) هيدروكسيد الصوديوم. الحرارة المثلى لتكليس نوى التمر.

تم اعتمادها لما توفره من مردود جيد، وبنية غير متبلورة °C كان فعالاً، إلا أن درجة 700 °C و 950 °C أظهرت الاختبارات الأولية أن التكليس عند 700 °C، تفاعلية، إلى جانب تقليل استهلاك الطاقة.

كشفت تجارب الامتصاص عن ساعات قصوى تتراوح بين 4.1 و 5.3 مغ/غ، تم الوصول إليها خلال مدة زمنية من 45 إلى 120 دقيقة حسب نوع المادة ، مع توفير عدة NaOH المستعملة. سمح استخدام قشور الليمون بتحقيق قدرة امتصاص تصل إلى 4.97 مغ/غ، وهي قيمة قريبة من تلك المسجلة باستخدام مزايا: عدم السمية، عدم الحاجة إلى معالجة المخلفات، التكلفة المنخفضة، والأصل الطبيعي المتجدد. أما مستخلص الثوم فقد أظهر سعة امتصاص أقل بقليل (~ 4.94 مغ/غ) واستقرارًا كيميائيًا أقل.

أن الامتصاص يتم بسرعة عبر تفاعلات كيميائية سطحية. في المقابل، لم تتوافق ($R^2 = 1$) أظهر تطابق البيانات التجريبية مع نموذج الحركة من الرتبة الثانية. البيانات مع النماذج الأخرى (الرتبة الأولى، نموذج إلويفيتش، الانتشار داخل الجسيمات)، مما يدل على غياب تأثير القيود المسامية.

(~ 1100 سم⁻¹)، والتي C-O-C (~ 1700 سم⁻¹)، و C=O، (~ 3400 سم⁻¹) O-H وجود مجموعات وظيفية تحتوي على الأوكسجين مثل FTIR أكدت تحاليل وقد أظهرت المواد المختزلة باستخدام قشور الليمون سطحًا غنيًا بالمواقع النشطة، O. تعزز التفاعلات الهيدروجينية والكهروستاتيكية مع صبغة السافرنين يقارب أو يفوق نظيره الناتج عن الاختزال الكيميائي.

خلاصة: يُعد مستخلص قشور الليمون أفضل عامل اختزال من حيث الأداء، مع تأثير بيئي إيجابي، وتوافر محلي، وملاءمته لاستراتيجيات التنمية المستدامة. ويُشكل بذلك بديلاً واعداً في تحضير مواد ماصة لمعالجة المياه الملونة.

الكلمات المفتاحية : أكسيد الغرافين، الغرافيت، نواة التمر، الاختزال، الامتزاز، معالجة المياه، تقييم الموارد الكربونية، الاختزال الطبيعي