

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
REPUBLICUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
جامعة الجيلالي بونعامة - خميس مليانة  
Université Djilali Bounaama - Khemis Miliana



Faculté des Sciences et de la Technologies  
Département des Sciences et Technique  
Filière : Science et Génie de l'Environnement  
Spécialité : Génie des Procédés de l'Environnement

Mémoire de fin d'études présenté pour l'obtention du diplôme de *Master*

**Etude paramétrique et cinétique de dégradation et minéralisation de  
l'amoxicilline par électrocoagulation. Application sur un rejet  
pharmaceutique réel (Saidal de Media)**

***Présenté par :***

- *Zitouni Fatima Zahra*
- *Bourergha Manel*

***Soutenu devant le jury :***

***Président : Mr M. Hamidi***

***Encadreur : Mr A. Sahmi***

***Co-encadreur : Mr S. Omeiri***

***Examineurs: Mr O.Larbi Bouamrane***

***Mr B. Mkhaneg***

**Année universitaire 2018/2019**

# Dédicace

*Je tiens à dédier ce modeste travail :*

- ◆ *A mes grands parents maternels et paternels, que Dieu les protège en son vaste paradis.*
  
- ◆ *A mes parents qui n'ont jamais cessé de croire en moi et me soutenir moralement et matériellement et pour tous les sacrifices qu'ils ont consentis pour mon éducation et mon bien-être.*
  
- ◆ *A mes sœurs Naima, Assia, Wahida, Ibtissem, Fadhila.*
  
- ◆ *A mes tantes et oncles maternels et paternels.*
  
- ◆ *A mes amies : Nesrine, Chahra, Malika, Hassna, Imen, Khansaa Khawla et Hana, ainsi que tous mes camarades de la promotion génie des procédés de l'environnement.*

**Zahra**

# Dédicace

*Je tiens à dédier ce modeste travail :*

- ◆ *A mes grands parents maternels et paternels, que Dieu les protège en son vaste paradis.*
  
- ◆ *A mes parents qui n'ont jamais cessé de croire en moi et me soutenir moralement et matériellement et pour tous les sacrifices qu'ils ont consentis pour mon éducation et mon bien-être.*
  
- ◆ *A ma sœur Hayat et mes deux frères Zouhir et Hichem*
  
- ◆ *A mes tantes et oncles maternels et paternels.*
  
- ◆ *A mes amies : Nesrine, Chahra, Malika, Hassna, Imen, Khansaa, Khawla et Hana, ainsi tous mes camarades de la promotion génie des procédés de l'environnement.*

*Manel*

# Remerciements



*Nous tenons tout d'abord à remercier **ALLAH** qui nous a donné la force et la patience d'accomplir ce modeste travail.*

*Nous tenons à exprimer notre très grande gratitude et profond respect à notre promoteur Mr Sahmi Abdelaziz, pour avoir dirigé ce travail, et pour l'aide précieuse*

*Qu'elle nous apporté, pour tous ses efforts, ses conseils judicieux et pour son attention toute particulière, tout au long de la préparation de ce travail.*

*Nous tenons à remercier Mr Larbi Bouamrane, Mr Hamidi Moussa, Mr Omeiri Said et Mr Mekhaneg Ben Youcef pour avoir accepté de faire partie du jury d'examination de notre travail.*

*Nous remercions de même, tous nos enseignants du département de génie des procédés, pour tout le savoir que nous avons acquis grâce à eux durant notre formation.*

*Nous tenons à remercier nos parents qui ont été plus que des pères, ils étaient des amis et des frères et toute notre famille*

*Nombreuses sont les personnes qui nous ont apporté de l'aide et leurs soutien, nous tenons à leurs présenter nos remerciements les plus sincères.*



## *Liste des Tableaux*

<b>Tableau I.1</b>	Propriétés physico-chimiques de composé pharmaceutique étudié	9
<b>Tableau II.1</b>	Exemples d'application du procédé d'électrocoagulation	19
<b>Tableaux IV.10</b>	Caractéristiques du rejet réel avant et après traitement	45

## *Liste des figures*

<b>Figure I.1</b>	Pollution de l'eau dans la nature	4
<b>Figure I.2</b>	Les antibiotiques	8
<b>Figure II.1</b>	Schémas du principe de l'électrocoagulation	14
<b>Figure III.1</b>	Dispositif expérimental de l'électrocoagulation	20
<b>Figure IV. 1</b>	Effet de la nature du matériau des électrodes sur la dégradation du polluant (d=1cm, 40 ppm, i=0.5A, pH normal).	27
<b>Figure IV.2</b>	Effet de la nature du matériau des électrodes sur l'abattement de la DCO et EESC. (d=1cm, 40 ppm, i=0.5A, pH normal)	28
<b>Figure IV.3</b>	Effet de la distance inter électrode sur la dégradation de l'amoxicilline. (Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> = 3.5mg/L, 40 ppm, pH=5.5, i= 0.5A).	29
<b>Figure IV.4</b>	Effet de la distance inter électrode sur l'EESC et l'abattement de la DCO. (Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> = 3.5g/L, 40ppm, pH=5.5, i= 0.5).	30
<b>Figure IV.5</b>	Effet de l'intensité du courant sur la dégradation de l'Amoxicilline	31
<b>Figure IV.6</b>	Effet de l'intensité du courant sur l'abattement de DCO et L'EESC.	32
<b>Figure IV.7</b>	Effet du pH initial sur la dégradation de l'amoxicilline (Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> = 3.5mg/L, 40 ppm, i= 0.7A).	33
<b>Figure IV.8</b>	Effet du pH initial sur l'abattement de la DCO et l'EESC (Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> = 3.5mg/L, 40 ppm, i= 0.7A).	34
<b>Figure IV.9</b>	Effet d'électrolyte sur la dégradation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm, i= 0.7A).	36
<b>Figure IV.10</b>	Effet d'électrolyte sur l'EESC et la minéralisation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm, i= 0.7A).	37
<b>Figure IV.11</b>	Effet de la concentration du Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> sur la dégradation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm, i= 0.7A).	38
<b>Figure IV.12</b>	Effet de la concentration du Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> sur l'EESC et la minéralisation de	39

l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm, i= 0.7A).

- Figure IV.13** Effet de la concentration initial du polluant sur l'efficacité du procédé (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 40
- Figure IV.14** Effet de la concentration initial du polluant sur l'EESC et la minéralisation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 41
- Figure IV.15** Effet de l'oxygène dissout sur l'efficacité du procédé (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 42
- Figure IV.16** Effet de l'oxygène dissout sur l'EESC et l'abattement de la DCO (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 43
- Figure IV.17** Effet des paramètres optimisés sur la dégradation du rejet réel (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 44
- Figure IV.18** Effet des paramètres optimisés sur l'EESC et l'abattement de la DCO du rejet réel (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 44
- Figure IV.19** Evolution des différents paramètres de pollution du rejet réel après 48min du traitement (pH7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 46
- Figure IV.20** Cinétique de minéralisation du rejet réel Evolution des différents paramètres de pollution du rejet réel après 48min du traitement (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A). 46
- Figure IV.21** Croissance des bactéries (Escherichia coli, klebsiella pneumoniae et Bacillus subtilis) en présence des effluents traités et non traités. (T(eau distillée), DV(disque vide), AVT (avant traitement), APT (après traitement)) 47

### Liste des abréviations

Abs	Absorbance
Al	Aluminium
C	Concentration (mg/l)
COT	Carbone Organique Totale (mg/l)
DBO <sub>5</sub>	Demande Biologique en Oxygène après 5 jours (mg/l)
DCO	Demande Chimique en Oxygène (mg/l)
d	densité
Ec	Electrocoagulation
EESC	Energie Electrique Spécifique Consommée (kw.h/kgd'O <sub>2</sub> )
Fe	Fer
I	Intensité de courant électrique (A)
MES	Matière En Suspension (mg/l)
pH	potentiel Hydrogène
R	Rendement
t	temps
UV	Spectroscopie UV-Visible
$\lambda$	longueur d'onde (nm)

---

# Table des matières

Liste des Tableaux	
Liste des Figures	
Liste des abréviations	
Introduction Générale.....	1
<b>Chapitre I Etude bibliographique</b>	
Introduction.....	3
I. La pollution de l'eau.....	3
I.1. Les sources de la pollution.....	3
I.1.1. La source urbaine .....	4
I.1.2. La source industrielle.....	4
I.1.3.La source agricole .....	5
I.1.4. La source naturelle .....	5
I.1.5. Source microbiologique .....	5
I.2.Les différents polluants.....	5
I.2.1.Les matières organiques.....	5
I.2.2. Les éléments minéraux.....	6
I.2.3.Les métaux lourds.....	6
I.2.4.Les matières pathogènes.....	6
I.2.5. Les substances toxiques (X endsidriques).....	6
I.2.6. Les hydrocarbures/organiques.....	6

I.2.7. Les résidus pharmaceutiques dans l'environnement.....	7
I.2.7.1. Risques environnementaux et sanitaires des résidus de médicaments.....	7
I.2.7.1.1. Les risques environnementaux.....	7
I.2.7.1.2. Les risques sanitaires.....	8
I.2.7.2. Les antibiotiques.....	8
I.2.7.2.1. L'Amoxicilline trihydratée.....	9
<b>Chapitre II Les procédés d'oxydations avancées</b>	
II. Les Procédés d'Oxydations Avancées (POAs).....	10
II.1. Les techniques membranaires.....	10
II.1.1. Les techniques membranaires à gradient de pression.....	11
II.2. les boues activées.....	11
II.3. L'adsorption.....	12
II.3.1. La physisorption.....	12
II.3.2. La chimisorption.....	12
II.4. La coagulation chimique.....	12
II.5. L'électrocoagulation (EC).....	13
II.5.1. Principe de l'électrocoagulation.....	13
II.5.2. Mécanismes réactionnels de l'électrocoagulation.....	14
II.5.3. Structure des électrodes employées.....	15
a. Géométrie des électrodes.....	15
b. Connexions électriques.....	16
II.5.4. Mécanisme d'électrocoagulation vis-à-vis de la matière organique.....	16
II.5.4.1. Phénomène chimique.....	16

II.5.4.2. Impact sur la matière organique.....	17
II.5.5. Applications industriels de l'électrocoagulation.....	17

### **Chapitre III Matériels et Méthodes**

III. Introduction.....	21
III.1. Dispositif expérimental.....	21
III. 1.1 Description du montage.....	21
III. 1.2. Mode opératoire.....	22
III.2. Matériels de mesure et d'analyse.....	22
III.2.1 Analyse par la spectrophotométrie UV-visible.....	23
III.2.2. Demande chimique en oxygène (DCO).....	23
III.2.3. Analyse par Mesure du carbone organique total (COT).....	23
III.2.4. Demande biologique en oxygène DBO .....	24
III.2.5. Mesure des MES .....	24
III.2.6. La turbidité.....	24
III.3. Testes microbiologiques.....	25

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

Introduction.....	26
IV.1. Influence de la nature du matériau d'électrode sur le procédé d'électrocoagulation.....	26
IV.2. Effet de la distance inter électrodes sur l'électrocoagulation.....	29
VI.3. Influence de l'intensité du courant sur le processus EC.....	31
IV.4. Effet du pH initial sur le procédé d'électrocoagulation.....	33

IV.5. Effet de la nature et la concentration de l'électrolyte sur le procédé EC .....	35
IV.5.1. Effet de la nature de l'électrolyte .....	35
IV.5.2. Effet de la concentration d'électrolyte sur le procédé d'EC.....	37
IV.5.3. Effet de la concentration initiale du polluant sur l'électrocoagulation.....	39
IV.6. Effet de l'oxygène dissout sur l'efficacité du procédé .....	42
IV.7. Application du procédé d'électrocoagulation sur un rejet réel .....	43
IV.8. Tests microbiologiques .....	47
Conclusion Générale .....	49
Références bibliographiques	
Annexes	

## ملخص

يعد التخثير الكهربائي طريقة كهروكيميائية غير خاصة تستخدم عادة لمعالجة المياه والمياه المستعملة

في هذا العمل، لقد أثبتنا أن التخلص من الملوثات عن طريق التخثير الكهربائي أمر ممكن، أيا كانت المعلمات التي تمت دراستها (طبيعة المادة المكونة للأقطاب، والمسافة بين القطب، وشدة التيار، ودرجة الحموضة الأولية، وطبيعة وتركيز بالكهرباء النتائج استنتاج أن تطبيق عملية التخثير الكهربائي لمعالجة الرفض الصيدلاني من شركة صيدال المدفع محملة بشدة بالمادة العضوية، يعطي تخفيضات مرضية للغاية. تم الحصول على أكثر من 98.93، 94.03، 63.40، 100 و 93.75٪ معدلات إزالة الطلب الكيميائي للاكسجين، الطلب البيولوجي للاكسجين، المواد المعلقة. و هذا على التوالي للتعكر، الكربون العضوي الاجمالي، من اجل شدة تياريساوي 0.7 امبير، درجة الحموضة =7، المسافة بين القطبين =2 سم، 3.5مغ/ل، و كذلك من اجل 48 دقيقة للتحليل الكهربائي، وفي هذه الظروف المثلى القيم النهائية للتعكر، الكربون العضوي الاجمالي، الطلب الكيميائي للاكسجين، الطلب البيولوجي للاكسجين، المواد المعلقة على التوالي 3.5، 0.26 NTUمغ/ل، 32.9مغ/ل، 0 مغ/ل و 8 مغ/ل. اظهر الاختبار الميكروبيولوجي للرفض الفعلي تثبيط البكتيريا (E.coli) و bacillus subtilis klebsiela Pneunioue، لكن تثبيط بكتيريا (E.coli) و klebsiela pneunioue اكبر من بكتيريا bacillus subtilis، و مع ذلك بعد العلاج لم يلاحظ أي منطقة مانعة و هذا ما يعكس اداء العملية.

لهذا الغرض، يمكن اعتبار عملية التخثير الكهربائي عملية مثالية لمعالجة التصريفات الدوائية و النفايات

**الكلمات المفتاحية:** التخثير الكهربائي، التخثر، الملوثات، الإلكترود

## Résumé

L'électrocoagulation (EC) est une méthode électrochimique non spécifique couramment utilisée pour le traitement de l'eau et des eaux usées.

Dans ce travail, nous avons démontré que l'élimination des polluants par électrocoagulation est possible, quels que soient les paramètres étudiés (nature du matériau constituant les électrodes, la distance inter-électrodes, intensité de courant, le pH initial, nature et concentration de l'électrolyte. Les résultats permettent de déduire que l'application du procédé d'électrocoagulation pour le

traitement de rejet pharmaceutique SAIDAL de Médéa fortement chargés en matières organiques, donne des abatements très satisfaisants. Plus de 98.93, 94.03, 63.40, 100 et de 93.75% de taux d'élimination ont été obtenus respectivement pour la turbidité, le COT, la DCO, DBO et les MES. Et ce pour une intensité de courant de 0.7A, à pH =7, une distance inter-électrode de 2 cm, 3.5 mg/L en Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> et pour 48 min d'électrolyse. A ces conditions optimales, les valeurs finales de la turbidité, du COT, la DCO, DBO et des MES sont respectivement 0.26 NTU, 3.5 mg/L et 32.9 mgd'O<sub>2</sub>/L, 0 mg/l, 8 mg/l. Le test microbiologique du rejet réel a mis en évidence l'inhibition des bactéries E (coli), bacillus subtilis et Klebsiela pneuniouice. Toutefois l'inhibition d'E. (Coli) et Klebsiela pneuniouice étant plus importante que celle de bacillus subtilis. Cependant, après traitement on n'observe aucune zone inhibée, ce qui traduit la performance du procédé. À cet effet, le procédé d'électrocoagulation peut être considéré comme un procédé idéal de traitement des rejets pharmaceutique et des effluents liquides.

**Mot clés :** électrocoagulation, coagulant, polluants, électrode

## **Abstract**

Electrocoagulation (EC) is a non-specific electrochemical method commonly used for the treatment of water and wastewater.

In this work, we have demonstrated that the elimination of pollutants by electrocoagulation is possible; whatever the parameters studied (nature of the material constituting the electrodes, the inter-electrode distance, current intensity, the initial pH, nature and concentration of the electrolyte. The results make it possible to deduce that the application of the electrocoagulation process for the treatment of SAIDAL pharmaceutical rejections of Médéa heavily loaded with organic matter, gives very satisfactory abatements. More than 98.93, 94.03, 63.40, 100 and 93.75% removal rates were obtained respectively for turbidity, TOC, COD, BOD and SS. And this for a current intensity of 0.7A at pH 7, an inter-electrode distance of 2 cm, 3.5 mg / L in Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> and for 48 min of electrolysis. At these optimal conditions, the final values of turbidity, TOC, COD, BOD and SS are respectively 0.26 NTU, 3.5 mg / L and 32.9 mg O<sub>2</sub> / L, 0 mg / l, 8 mg / l. The microbiological test of the actual rejection demonstrated the inhibition of E (coli) bacteria, bacillus subtilis and Klebsiela pneuniouice. However, the inhibition of E. coli and Klebsiela pneuniouice is greater than that of bacillus subtilis. However, after treatment no inhibited zone is observed, which reflects the performance of the process.

For this purpose, the electrocoagulation process can be considered as an ideal process for the treatment of pharmaceutical discharges and liquid effluents.

**Key words:** electrocoagulation, coagulant, pollutants, electrode

# Introduction général

## **Introduction général**

## Introduction

la pollution de l'environnement et plus spécialement, celui de l'eau est devenu un sujet d'une cruciale importance à cause de sa raréfaction fortement ressentie, surtout dans les pays en voie de développement. L'homme est le principal responsable de la pollution du fait de l'extension croissante de l'agriculture, l'urbanisation et l'industrialisation.

Parmi les polluants organiques persistants (POPs), souvent peu ou non biodégradables, les produits pharmaceutiques constituent une des principales préoccupations environnementale de la communauté scientifique. Ces dernières décennies, plus de 80 molécules pharmaceutiques, ou leurs métabolites, ont été détectés dans les milieux aquatiques [1, 2] Pour plusieurs de ces médicaments le risque environnemental sur la flore et la faune aquatique est important, de par leurs effets cumulatifs et synergiques avec d'autres polluants [3]. La problématique environnementale concernant les médicaments est liée à leurs rapides développements et à leurs effets sur l'être vivant même en faibles quantités. En effet, ces molécules sont nécessairement absorbables, hydrosolubles ou liposolubles et plus ou moins persistantes dans l'organisme [4]. Certaines de ces substances se retrouvent dans l'eau potable car elles ne sont pas ou très peu éliminées par les techniques de traitements conventionnels (traitements physico-chimiques et biologiques). De plus, ces technologies de traitements des eaux, bien que très maîtrisées, sont génératrices d'autres problématiques secondaires, telles que l'utilisation supplémentaire des réactifs chimiques, la génération de sous-produits ou la production de boues dont la gestion est problématique.

Des techniques de traitement des eaux usées sont connues, elles incluent une gamme de procédés biologiques et physico-chimiques qui exigent l'addition de produits chimiques.

La coagulation chimique et les traitements biologiques sont des techniques toujours fortement utilisées dans le traitement de divers types d'effluents municipaux et industriels. Par contre certains inconvénients sont induits par l'utilisation de sels métalliques comme l'acidification de l'eau traitée, les étapes de traitement plus lentes, les quantités de coagulant plus élevées et la quantité importante de boues à disposer. Dans le cas des traitements biologiques, c'est plutôt la lenteur du traitement et l'obligation de prétraiter les eaux afin de diminuer la charge organique.

Une alternative intéressante à ces procédés serait donc de former *in situ* un agent coagulant qui permettrait d'éliminer l'ajout de produits chimiques tout en agissant directement sur l'eau brute, même si celle-ci est fortement chargée. La technique qui présente ces deux avantages se nomme l'électrocoagulation. Cette méthode de traitement semble également avoir des propriétés de désinfection et elle permet une diminution des odeurs reliées aux effluents industriels, deux caractéristiques intéressantes pour l'industrie. Bien que l'électrocoagulation soit rentable par

## Introduction général

---

rapport aux méthodes chimiques de traitement des eaux, la difficulté majeure qui limite le développement de cette technique est le manque d'études de génie chimique destinées à son application, de la conception des équipements aux modèles de procédés liés à cette technologie. Devant de telles situations, les recherches scientifiques dans ce domaine devront apporter davantage d'explications sur les phénomènes complexes qui gouvernent les réacteurs chimiques, sièges de l'électrocoagulation.

A cet effet, la présente étude est subdivisée en quatre principaux chapitres :

- Le premier chapitre, consistant en une synthèse bibliographique des produits pharmaceutiques et leurs dangers sur l'environnement et la santé et plus particulièrement, la molécule sélectionnée et largement utilisée en Algérie : l'amoxicilline.
- Le chapitre II. porte sur les divers procédés conventionnels et avancés de traitement de ces effluents en générale et l'électrocoagulation en particulier.
- Le chapitre III, décrit le dispositif expérimentale, les produits, les techniques d'analyses, ainsi que le matériel et les protocoles utilisés.
- Le chapitre IV, présente l'ensemble des résultats obtenus expérimentalement. Un intérêt particulier a été consacré à l'influence des paramètres opératoires sur l'efficacité du procédé d'électrocoagulation (EC). Aussi, des tests de bio toxicité ont été réalisés afin de déterminer l'élimination de la toxicité.

# Chapitre I

## Chapitre I

# Etude bibliographique

## Introduction

L'homme a toujours eu comme souci de préserver et aussi accroître ses ressources en eau dont la pollution est fondamentalement causée par le développement considérable de ses activités humaines et industrielles. Ce problème ne se traite plus à l'échelle locale ou régionale mais il est devenu de dimension mondiale [5]. Par conséquent il est peut être utile de discuter, ne serait-ce brièvement, les différents types et sources de pollution de l'eau rencontrés assez fréquemment.

## I. La pollution de l'eau

La pollution est une modification défavorable du milieu naturel qui apparaît en totalité ou en partie, à travers des effets directs ou indirects altérant les critères de répartition des flux d'énergie, des niveaux de radiation, de la constitution physicochimique du milieu naturel et de l'abondance des espèces vivantes. Par exemple, la pollution aquatique est une altération de sa qualité et de sa nature qui rend son utilisation dangereuse et perturbe l'écosystème aquatique. Elle peut concerner aussi bien les eaux superficielles que souterraines.

Ces modifications peuvent affecter l'homme directement ou au travers des ressources en produits agricoles, en eau, et autres produits biologiques. Elles peuvent aussi l'affecter en altérant les objets physiques qu'il détient, les possibilités régénératrices du milieu ou encore en enlaidissant la nature. La pollution de l'eau est due essentiellement aux activités humaines ainsi qu'aux phénomènes naturels. Elle a des effets multiples qui touchent aussi bien la santé publique que les organismes aquatiques, ainsi que la flore et la faune terrestre [6].

### I.1. Les sources de la pollution

L'eau dans la nature et à fortiori celle qui est employée à des usages industriels et domestiques n'est jamais pure, de par les impuretés qu'elle peut renfermer sous les 3 états : Solides, liquides ou gazeux et qui peuvent être caractérisées par la taille qu'elles prennent en milieux aqueux.



**Figure I.1 :** Pollution de l'eau dans la nature

## I.1.1. La source urbaine

L'origine des eaux résiduaires urbaines est principalement domestique où les populations génèrent les (3/4) des eaux usées. Ces effluents sont un mélange d'eaux contenant des déjections humaines telles que les urines, fèces, eaux de toilette et de nettoyage des sols et des aliments (eaux ménagères). Les eaux usées urbaines peuvent aussi contenir des eaux résiduaires d'origine industrielle, mais normalement, ces dernières doivent avoir subi un prétraitement pour atteindre des caractéristiques comparables à celles des eaux usées domestiques pour permettre un traitement en commun [7].

## I.1.2. La source industrielle

Elle constitue les déchets liquides obtenus lors de l'extraction et de la transformation de matières premières en produits industriels. Les eaux résiduaires proviennent principalement de l'eau consommée dans de nombreuses opérations de fabrication par voie humide, comme par exemple : la précipitation, le lavage, le nettoyage des appareils, les ateliers, les filtrations, les distillations, etc. [8] Les effluents industriels peuvent causer des pollutions organiques (industries agroalimentaires, papèteries), chimiques (tanneries, usines textiles...) ou physiques (réchauffement par les centrales thermiques, matières en suspension des mines ou de la sidérurgie). Ils sont responsables de l'altération des conditions de clarté et d'oxygénation de l'eau, pouvant aussi causer l'accumulation de certains éléments dans la chaîne alimentaire (métaux, pesticide, radioactivité). La pollution peut aussi être due à l'infiltration de produits toxiques mal entreposés, à des fuites dans les réservoirs ou à des accidents lors du transport de matières dangereuses menant à des concentrations dans les eaux qui peuvent aisément atteindre 1g/L [9].

## I.1.3. La source agricole

La pollution d'origine agricole provient surtout des engrais et pesticides épandus dans le sol sur de très grandes surfaces à proximité ou pas de cours d'eau [9]. Ce type de pollution s'est intensifié depuis que l'agriculture est entrée dans un stade d'industrialisation assez avancé. La concentration des élevages entraîne un excédent de déjections animales qui finissent par enrichir les cours d'eau et les nappes souterraines en dérivés azotés, encourageant ainsi une source de pollution bactériologique. L'utilisation massive des engrais chimiques (nitrates et phosphates) altèrent aussi la qualité des nappes souterraines vers lesquelles ils sont entraînés.

## **I.1.4. La source naturelle**

Ce phénomène se retrouve pour toute eau en contact avec l'atmosphère car celle-ci contient du gaz carbonique  $\text{CO}_2$  qui est soluble dans l'eau pour donner de l'acide carbonique de formule  $\text{H}_2\text{CO}_3$ . On comprend ainsi qu'une concentration de  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère conduit à une acidification de l'eau à son contact. Ainsi, même avant l'existence des pluies acides d'origine anthropique, les pluies naturelles étaient légèrement acides, ceci étant toujours le cas dans des zones protégées telles que les forêts amazoniennes [9].

## **I.1.5. Source microbiologique**

La qualité microbiologique de l'eau peut aussi être à l'origine de problèmes, qu'ils soient aigus ou chroniques. Des accidents peuvent avoir lieu lors d'une mauvaise désinfection des canalisations, donnant une eau de mauvaise qualité microbiologique qui peut être un facteur de risque de plusieurs pathologies, surtout digestives [10].

## **I.2. Les différents polluants**

Les impuretés peuvent être identifiées suivant qu'elles soient vivantes ou inertes, minérales ou organiques, solides ou dissoutes. Parmi les principaux polluants on peut distinguer le groupe suivant :

### **I.2.1. Les matières organiques**

Elles constituent, de loin, la première cause de pollution des ressources en eaux. Ces matières organiques (déjections animales et humaines, graisse...) sont issues des effluents domestiques, mais également des rejets industriels agro-alimentaires, en particulier [11].

### **I.2.2. Les éléments minéraux**

Ils regroupent essentiellement les produits azotés ainsi que les produits phosphorés. Ces matières proviennent principalement des activités agricoles. La pollution minérale des eaux peut provoquer le dérèglement de la croissance végétale ou des troubles physiologiques chez les animaux [11].

### **I.2.3. Les métaux lourds**

Les plus fréquemment rencontrés mais qui sont aussi les plus dangereux, sont le mercure, le cuivre, le cadmium, le chrome, le plomb, et le zinc. Ils ont la particularité de s'accumuler dans les organismes vivants ainsi que dans la chaîne trophique [11].

## **I.2.4. Les matières pathogènes**

Elles sont constituées de virus ou de bactéries entraînant souvent une inhibition des mécanismes biologiques. La pollution microbiologique se développe conjointement à la pollution organique, par une prolifération de germes d'origine humaine ou animale dont certains sont pathogènes [11].

## **I.2.5. Les substances toxiques (Xendsidriques)**

Ce sont des composés chimiques de synthèse, issus des activités industrielles et agricoles. Les conséquences souvent dramatiques de la pollution chimique sur les écosystèmes, varient suivant la concentration des composés chimiques dans les rejets, à certaines périodes de l'année (herbicides) [11].

## **I.2.6. Les hydrocarbures/organiques**

Ce sont des composés organiques constitués de carbone et d'hydrogène. Ils se rencontrent essentiellement dans le pétrole et les fractions pétrolières qui sont des mélanges complexes d'hydrocarbures et de quelques produits oxygénés, azotés et soufrés.

Ces composés chimiques sont des substances peu solubles dans l'eau et difficilement biodégradables. Leur densité inférieure à celle de l'eau les fait surnager et leur vitesse de propagation dans le sol est 5 à 7 fois supérieure à celle de l'eau. Ils constituent donc un redoutable danger pour les nappes phréatiques.

Les principales sources de cette pollution sont liées à l'extraction, au transport et à l'utilisation de cette source d'énergie. En effet ces opérations entraînent des risques de pollution (accidentelle et chronique) pour l'environnement marin et terrestre pouvant influencer l'équilibre écologique et parfois entraîner la destruction de l'écosystème.

A ces hydrocarbures déversés en mer, s'ajoute une grande proportion de rejets continentaux apportés par les fleuves et les cours d'eau.

Dans les raffineries, les opérations de dessalage, de distillation du brut, de craquage et d'hydrotraitement contribuent à la contamination des eaux, en produisant des débits importants d'eaux usées à des concentrations élevées de contaminants [11].

## **I.2.7. Les résidus pharmaceutiques dans l'environnement**

La mise en évidence de médicaments dans les eaux revient aux 19<sup>ème</sup> siècle avec concentrations de 28.79 µg L<sup>-1</sup> d'acide salicylique et 7.09 µg L<sup>-1</sup> d'acide chloridrique dans les eaux de la station d'épuration de «Big Blue River» à Kansas City dans le Missouri, ce qui

représentait respectivement 8.64 kg et 2.13 kg de ces médicaments déversés chaque jour dans la rivière [12].

## **I.2.7.1. Risques environnementaux et sanitaires des résidus de médicaments**

Ils sont encore mal compris, notamment faute de données sur la cinétique de ces molécules (possible sorption, plus ou moins provisoire sur des matières en suspension, dans les sédiments ou bioaccumulation plus ou moins importante dans certains organismes) et sur les effets éco toxicologiques sur certaines molécules mères et sur de nombreux sous-produits de dégradation, mais la littérature cite deux grandes catégories de risque [13].

### **I.2.7.1.1. Les risques environnementaux**

Les médicaments ou résidus dispersés dans l'environnement peuvent avoir divers types de répercussions nuisibles et significatives sur l'environnement et les services écosystémiques. Ce risque est évalué en tenant compte de la probabilité d'occurrence dans l'espace et dans le temps d'un événement (aléa) et du niveau de danger. Des synergies entre aléas peuvent survenir (effet cocktail).

Un cas particulier est celui des effluents hospitaliers ou issus du traitement de des déchets hospitaliers, car ceux-ci peuvent à la fois contenir de puissants biocides, des souches d'organismes antibio résistantes, ou des produits non biodégradables, par exemple des métaux toxiques ou radioactifs utilisés en chimiothérapie contre le cancer ou comme agents de contrastes ou pour certains modes d'imagerie médicale. Les traitements chélateurs sont aussi des sources de métaux lourds.

Certains médicaments ou résidus ne sont pas stoppés par la barrière placentaire, ou passent dans le lait maternel (humain ou animal).

Dans la nature, les nécrophages jouent un rôle sanitaire essentiel en éliminant les cadavres, ce qui limite la diffusion de nombreux pathogènes, mais ils se contaminent aussi en mangeant les cadavres (le diclofénac a ainsi presque fait disparaître plusieurs espèces de vautours en Inde, Afrique et Asie). Le cadavre d'un nécrophage devient alors à son tour une source de contaminant [13].

### **I.2.7.1.2. Les risques sanitaires**

Ils désignent un risque local ou global, immédiat ou différé dans l'espace ou dans le temps, plus ou moins probable, auquel la santé publique ou celle d'espèces animale d'intérêt commercial est exposée.

Par l'identification et l'analyse des risques liés à un phénomène (contamination par des résidus de médicaments en l'occurrence...) on cherche à mieux prévoir l'impact d'un risque sanitaire sur la santé publique.

Les risques liés à l'eau semblent les plus importants car des eaux de ruissellement aux apports en mer, l'eau peut transporter sur de longues distances certains résidus. Des résidus de médicament vétérinaire peuvent aussi être trouvés dans la viande, ou le poisson et passer dans le tube digestif humain puis être en partie ensuite retrouvés dans l'environnement [13].

## I.2.7.2. Les antibiotiques

Le terme antibiotique, du grec anti, signifiant «contre» et bios, «vie» a été créé à la fin du 19<sup>ème</sup> siècle. Il désignait initialement toute substance faisant preuve «d'antagonisme», en faible concentration, envers les organismes vivants en général [14]. Ce sont des substances d'origine synthétique, semi-synthétique ou naturelle produite par des bactéries (ex : Ampicilline synthétisée par la bactérie du genre listeria) ou par des champignons (ex : la Pénicilline qui est synthétisée par *Penicillium notatum*) [15] Ils sont utilisés contre les infections causées par des bactéries. L'antibiotique a la propriété de tuer les bactéries (bactéricide) ou d'empêcher leur prolifération (bactériostatique) [15].



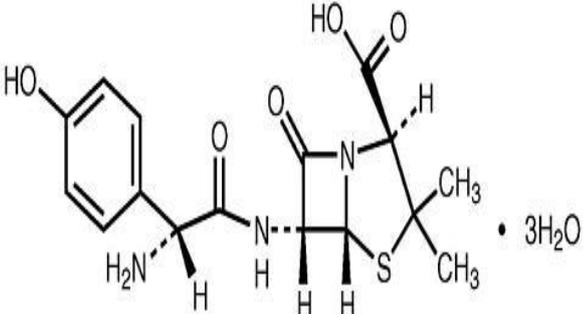
**Figure I.2 :** Les antibiotiques

### I.2.7.2.1. L'Amoxicilline trihydratée

« Acide (2S,5R,6R)-6--[[ (2R)-2-amino-2-(4-hydroxyphényl-acétyl)amino]-3,3-diméthyl-7-oxo-4-thia-1-azabicyclo[3.2.0]-heptane-2 carboxylique trihydraté ». C'est une

molécule semi-synthétique de formule chimique « $C_{16}H_{19}N_3O_5S,3H_2O$  » et de masse molaire 365,4 g/mol, appartenant à la classe des pénicillines. C'est une molécule à large spectre d'action sur des infections causées par des bactéries à Gram négatif et positif, d'origine humaine et animale [16].

**Tableau I.1** : Propriétés physico-chimiques de composé pharmaceutique étudié [16]

Composé pharmaceutique étudiée	Structure Chimique
<p><b>Classe thérapeutique</b> : Antibiotique bêta-lactamine</p> <p style="text-align: center;">Aminopénicilline</p> <p><b>Propriétés Chimique</b></p> <p><b>Formule brute</b> <math>C_{16}H_{19}N_3O_5S</math> [isomère]</p> <p><b>Masse molaire</b> 365.4 g/mol</p> <p><b>PKa</b> 2.8</p> <p><b>Propriétés physiques</b> :</p> <p><b>Caractères</b> :</p> <p><b>Aspect</b> : poudre cristalline, blanche ou sensiblement blanche.</p> <p><b>Solubilité</b> : peu soluble dans l'eau, très peu soluble dans l'éthanol à 96 pour cent, pratiquement insoluble dans les huiles grasses. L'amoxicilline trihydratée se dissout dans les acides dilués et dans les solutions diluées d'hydroxyde alcalins</p>	<div style="text-align: center;">  </div> <p style="text-align: center;"><b>Amoxicilline trihydratée</b></p>



# Chapitre II

## Les procédés d'oxydations avancées

## II. Les Procédés d'Oxydation Avancées (POAs)

L'effet des polluants sur la santé humaine et leur impact écologique ainsi que les législations sur la qualité de l'eau devenues de plus en plus strictes ces dernières années [17], ont conduit au développement de nouvelles techniques de traitement de l'eau telle que les Procédés d'Oxydation Avancées (POAs).

Ces techniques sont définies comme des alternatives très intéressantes pour la dégradation des polluants organiques non biodégradables par les procédés biologiques de traitements. Ces POAs sont basés sur la génération et l'utilisation d'un puissant oxydant, le radical hydroxyl ( $\bullet\text{OH}$ ) [18]. Ce radical hydroxyl peut être produit par des procédés photochimiques et non Photochimiques. Les POAs sont très efficaces pour la dégradation des polluants organiques récalcitrants. Ils sont complémentaires aux techniques habituelles de floculation, précipitation, adsorption sur charbon active ou osmose inverse. Cependant, dans le cas de fortes concentrations en carbone organique totale [19], ou dans le cas des rejets dont la demande chimique en oxygène est supérieure à 5 g/L ( $\text{DCO} > 5 \text{ g/L}$ ) [20], il devient peu intéressant d'utiliser ces POAs. L'oxydation par voie humide, ou l'incinération de l'effluent pour une charge organique très importante, seront donc privilégiées.

Les POAs présentent plusieurs avantages :

- Ils permettent de transformer des polluants réfractaires en produits biodégradables qui peuvent être traités par la suite par des méthodes de traitements biologiques moins coûteuses.
- Ils assurent une minéralisation complète de la majorité des polluants en  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$ .
- Ils consomment moins d'énergie que d'autres méthodes telle que l'incinération.
- Ils évitent l'emploi de désinfectants et d'oxydants comme le chlore dont les résidus peuvent avoir des effets néfastes sur la santé

### II.1. Les techniques membranaires

La membrane est définie comme une couche mince semi-perméable qui joue le rôle d'une barrière sélective, sous l'effet d'une force motrice, elle permet l'arrêt ou le passage de substances dissoutes.

Le résultat d'une opération de filtration membranaire est la séparation du fluide à traiter en deux parties de concentrations différentes : Le retentât qui contient les molécules ou particules retenues par la membrane ; Le perméat qui contient les molécules qui traversent la membrane. Les procédés de séparation membranaire regroupent un grand nombre de techniques permettant de

réaliser des séparations en phase liquide ou gazeuse sous l'action de diverses forces de transfert. Celle-ci peut être un gradient de potentiel électrique (électrodialyse), un gradient de concentration (pervaporation, dialyse) ou un gradient de pression (nano filtration, osmose inverse).

### II.1.1. Les techniques membranaires à gradient de pression

Elles reposent sur une différence de pression totale de part et d'autre de la membrane, appelée pression transmembranaire.

La microfiltration, l'ultrafiltration et nanofiltration mettent en jeu des membranes possédant une structure poreuses tandis que les membranes d'osmose inverse sont des matériaux denses.

La nanofiltration Pour traiter des espèces de taille inférieure à 2 nm (sucre, colorant, sels,...) elle se situe à la transition entre l'osmose inverse et l'ultrafiltration tant au niveau du seuil de coupure (200 à 1000 Dalton) qu'au niveau de la pression transmembranaire (5 à 25 bar). Les membranes de nanofiltration possèdent également une sélectivité spécifique vis à vis des espèces ioniques, une rétention plus faible des Co-ions monovalents que des Co-ions divalents et une forte rétention globale pour les sels minéraux à faible concentration [21].

Pour l'osmose inverse, Ce procédé permet de filtrer des solutions contenant des espèces de très faible masse molaire et ne laisse passer que le solvant et qui arrête tous les sels. Il utilise des membranes denses. La séparation solvant – soluté se fait par un mécanisme de solubilisation-diffusion, La pression appliquée doit être supérieure à la pression osmotique exercée en amont de la membrane par la solution filtrée pour observer un flux de permet à travers la membrane. Les pressions appliquées varient de 20 à 80 bars [22].

## II.2. les boues activées

Le procédé à boues activées a été découvert en 1914 à Manchester et repose sur la constatation suivante : une eau d'égout aérée permet le développement rapide d'une flore bactérienne capable de dégrader des matières organiques polluantes. Dans les conditions idéales d'aération, les micro-organismes d'une eau usée se développent et s'agglomèrent en flocs. Au repos, ces derniers se séparent très bien de la phase liquide par décantation. Le principe du procédé à boues activées consiste donc à provoquer le développement d'un flocc bactérien dans un bassin alimenté en eau usée à traiter (bassin d'aération). Afin d'éviter la décantation des flocc dans ce bassin, un brassage vigoureux est nécessaire. La prolifération des micro-organismes nécessite aussi une oxygénation suffisante [23].

### II.3. L'adsorption

Le procédé d'adsorption, un phénomène de surface, est l'une des méthodes les plus largement utilisées pour l'élimination des polluants. Simple, peu coûteux (par rapport à d'autres procédés de séparation), et sans formation de boue, ce procédé fournit une alternative intéressante pour le traitement des eaux contaminées, en particulier si l'agent d'adsorption est bon marché et ne nécessite pas d'étapes de prétraitement supplémentaires avant son application [24]. D'une manière générale, l'adsorption est un procédé de séparation par lequel certains composants d'une phase sont fixés à la surface d'un adsorbant solide par des liaisons chimiques ou physiques. L'adsorption peut être classée comme physique ou chimique en fonction de la nature des forces mises en jeu [25].

Selon les forces intervenant entre les molécules de l'adsorbat et la surface d'adsorption [26], on distingue :

#### II.3.1. La physisorption

C'est un phénomène réversible dû principalement aux forces de Van Der Waal et aux liaisons hydrogènes entre les molécules d'adsorbat et les atomes de la surface de l'adsorbant. La physisorption est caractérisée par :

- ✓ La rapidité de l'établissement de l'équilibre entre la phase adsorbée et la phase fluide.
- ✓ La réduction de la capacité d'adsorption avec l'élévation de la température.
- ✓ La réversibilité est relativement facile.

#### II.3.2. La chimisorption

Ce type d'adsorption résulte des forces de liaison de nature chimique, ionique, covalente ou par transfert de charge [27]. Elle est caractérisée par la rupture et la création de liaisons chimiques en surface entre le réactif et les sites actifs de l'adsorbant [26], L'équilibre d'adsorption est atteint très lentement entre la phase adsorbée et le milieu fluide.

### II.4. La coagulation chimique

La coagulation chimique consiste à ajouter des sels de métaux trivalents ou d'autres substances chimiques dans les dispersions aqueuses afin d'assembler en agrégats plus gros les particules dispersées dans l'effluent. Ces agrégats peuvent être ensuite éliminés par décantation, filtration ou sédimentation. Une large gamme de coagulants est utilisée :

- ✓ Les coagulants minéraux tels que  $\text{FeCl}_3$ ,  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ ,  $\text{AlCl}_3$ ,  $\text{FeSO}_4$ ,  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{MgO}$ .

- ✓ Les coagulants organiques comme les polyacrylamides qui forment des polymères qui entraînent toutes les entités en suspension dans l'eau pour former des floccs.

La coagulation chimique impose des étapes plus lentes et des quantités de coagulants importantes.

## II.5. L'électrocoagulation (EC)

L'électrocoagulation est une technique de traitement développé avant le 20ème siècle.

Au début, Un pilote a été construit à Londres en 1889 pour traiter de l'eau de mer par électrolyse, [28, 29]. En 1940 ont permis l'introduction du fer et l'aluminium pour la première fois pour le traitement des eaux usées et de comprendre le principe de la dissolution chimique et le fonctionnement des hydroxydes produits ainsi que la coagulation et la floculation pour la purification de l'eau.

L'efficacité de l'électrocoagulation a été démontrée sur divers polluants. Elle est efficace dans le traitement des métaux lourds (Pb et Cd), des anions ( $\text{CN}^-$  et  $\text{PO}_4^{3-}$ ), les non métaux (le phosphore, les composés organiques, DBO, MES, les minéraux et colorants organiques) [30].

De plus l'EC présente des avantages :

- L'électrocoagulation requiert un équipement simple et elle est facile à opérer avec une latitude opérationnelle suffisante pour manier la plupart de problèmes rencontrés en fonctionnement. Les opérations d'exploitation/maintenance sont réduites et simples : installation automatisée, le fonctionnement 24H/24H est rendu possible.
- L'eau épurée par électrocoagulation donne une eau limpide, incolore, et inodore.
- L'EC est une technique à faible production de boue [31]. Ces derniers ont obtenu des boues plus denses et moins hydrophiles. Cela rend la décantation et la flottation plus aisée et diminue le volume des boues. Ces travaux ont montré une réduction du temps et des coûts de traitement des boues.
- Le processus d'électrocoagulation a l'avantage d'enlever les plus fines particules colloïdales, parce que le champ électrique appliqué les met en plus rapide mouvement, en conséquence facilitant la coagulation [32, 33] ont prouvé l'efficacité du procédé d'électrocoagulation pour des polluants colloïdaux très fins. Avec d'autres procédés tel que la coagulation chimique, ces polluants imposent des étapes de traitement plus lentes et des quantités de coagulant plus élevées.
- Le processus d'électrocoagulation évite l'usage de produits chimiques, même s'il semble nécessaire d'augmenter légèrement la salinité de l'effluent à traiter pour accroître sa conductivité électrique. Plusieurs études ont montré l'efficacité de l'EC sans aucune

variation de conductivité initiale du rejet à traiter, ce qui évite d'autres formes de traitement en aval. Les travaux [34], ont confirmé cet avantage.

- Les bulles de gaz produites durant l'électrolyse peuvent transporter le polluant vers le haut de la solution où il peut être facilement concentré, collecté et éliminé.
- Les processus électrolytiques dans la cellule d'électrocoagulation sont électriquement contrôlés sans déplacement de pièces, nécessitant ainsi moins de maintenance.
- L'EC permet un abattement important de virus et d'autres microorganismes par rapport à la CC, vraisemblablement lié au fait du champ électrique, Dans le cas d'élimination partielle de virus par microfiltration, un prétraitement par l'EC permet d'avoir une efficacité relative déjà aux faibles concentrations de fer dissous comparé à la CC [35]. En utilisant des électrodes en titane, [36] ont confirmés cet effet bactéricide sans la formation de dérivés hypochloreux ou d'autres dérivés du chlore.
- La biodégradabilité des effluents traités par électrocoagulation est améliorée [33]. Ce perfectionnement est dû à la non-toxicité de la forme d'aluminium utilisée et à la faible salinité du milieu.
- L'électrocoagulation offre la possibilité de traiter des effluents par oxydation et réduction de plusieurs composés dissous tels que les nitrites, les sulfures, les cyanures, les sulfites, les chromates et les ions fluorures.
- Le temps de traitement semble être plus contrôlable et réduit en EC qu'en CC. L'utilisation de l'électrocoagulation permet de réduire le temps de traitement : ce procédé permet un grand gain en compacité des installations et une possibilité d'automatisation [7].

### II.5.1. Principe de l'électrocoagulation

L'électrocoagulation est une méthode de traitement des eaux basées sur le principe de la dissolution électrochimique d'un métal sacrificiel. Il s'agit, d'imposer un courant (ou potentiel) entre deux électrodes (Fer ou Aluminium en général) immergées dans un électrolyte contenu dans

un réacteur pour générer, in situ, des ions ( $\text{Fe}^{2+}$  ;  $\text{Fe}^{3+}$  ;  $\text{Al}^{3+}$ ) susceptibles de produire un coagulant en solution et de provoquer une coagulation-floculation des polluants que l'on souhaite éliminer.

Au cours du traitement, plusieurs processus électrochimiques, physicochimiques et chimiques peuvent être observés :

- l'électrophorèse (déplacement de particules chargées sous l'effet du champ électrique).
- la réduction cathodique et chimique des composés organiques et inorganiques ainsi que la formation de dépôts métalliques à la cathode.
- les interactions chimiques entre les ions  $\text{Fe}^{+2}$  (ou  $\text{Al}^{+3}$ ) générés par dissolution anodique, et les anions présents dans les eaux usées (sulfures, phosphates, etc.), lesquelles entraînent la formation de composés insolubles.
- la flottation de particules solides et d'impuretés dissoutes dues à la présence de bulles de gaz d'hydrogène ( $\text{H}_2$ ) générées à la cathode.
- l'adsorption des polluants à la surface des hydroxydes ferreux (ou des hydroxydes d'aluminium), lesquels possèdent une forte capacité d'adsorption [37].

Actuellement, l'électrocoagulation est considérée comme un procédé complexe avec une multitude de mécanismes synergiques concourant au traitement de la pollution. Divers auteurs ont pu identifier trois catégories de mécanismes en électrocoagulation.

-les phénomènes électrochimiques,- la coagulation et la floculation - l'hydrodynamique [38, 39].

En électrocoagulation, les anodes et les cathodes utilisées peuvent avoir différentes configurations. Elles peuvent se présenter sous forme de plaques, de boules, de sphères à lit fluidisé, de fil, de tige et de tube.

Ces électrodes peuvent être constituées de divers métaux qui sont choisis de manière à optimiser le procédé de traitement. Les deux métaux communément utilisés sont le fer et l'aluminium [40].

Enfin, Le procédé d'électrocoagulation peut être utilisé seul ou en série avec d'autres procédés dans une chaîne de traitement des eaux.

## II.5.2. Mécanismes réactionnels de l'électrocoagulation

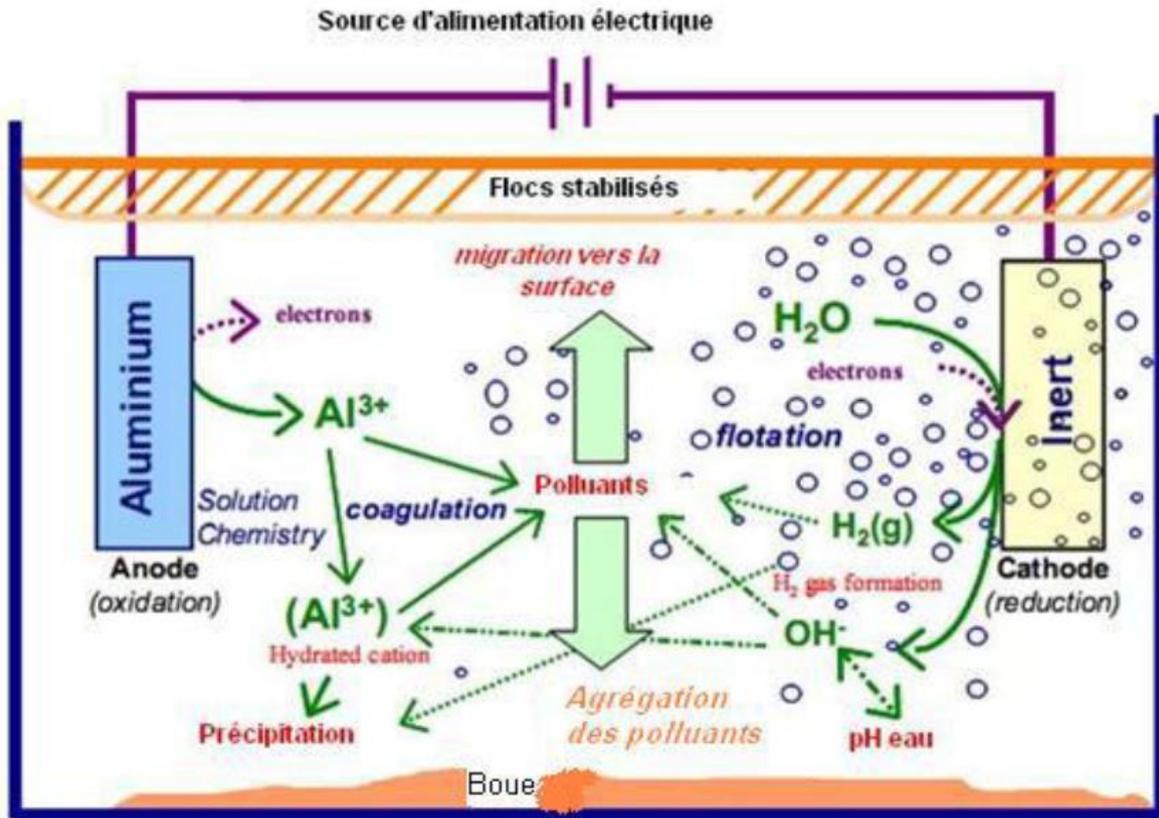


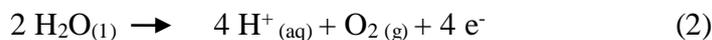
Figure II. 1 : Schémas du principe de l'électrocoagulation [11].

Les principales réactions à l'intérieur de la cellule sont des réactions électrochimiques. Dans le cas où l'anode est constituée d'un alliage d'aluminium, les réactions principales aux électrodes sont :

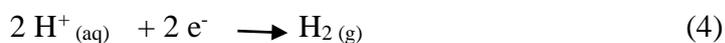
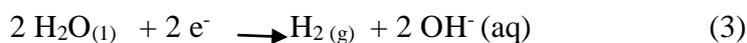
A l'anode, lieu d'oxydation, le métal va passer de l'état solide à l'état ionique selon la réaction 1.



Et dans le cas de potentiels très positifs, il peut y avoir formation d'oxygène selon l'équation 2.



A la cathode, les réactions pouvant avoir lieu dépendent du pH de la solution à traiter. A des pH neutres ou basiques, l'hydrogène est produit selon la réaction 3, alors qu'en milieu acide, l'équation 4 décrit le mieux l'évolution de l'hydrogène à la cathode.



Les cations métalliques issus de la solubilisation de l'anode, forment des complexes avec les ions hydroxydes. L'espèce majoritaire dépend du pH du milieu. Ces complexes jouent le rôle de

coagulant. Ils s'adsorbent sur les particules et annulent ainsi les charges colloïdales ce qui conduit à déstabiliser l'émulsion. Ce rôle est similaire à celui des coagulants chimiques dans les traitements chimiques classiques. La différence réside donc dans la source des réactifs qui est chimique pour les procédés classiques et électrochimiques pour l'électrocoagulation.

une multitude de complexes anioniques et cationiques peuvent se former [41] :

Les monocomplexes:  $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_4^-$

Les polycomplexes:  $\text{Al}_2(\text{OH})_2^{4+}$ ,  $\text{Al}_2(\text{OH})_5^+$ ,  $\text{Al}_6(\text{OH})_{15}^{3+}$ ,  $\text{Al}_{13}(\text{OH})_{34}^{5+}$

Les espèces amorphes et très peu solubles telles que  $\text{Al}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$

### II.5.3. Structure des électrodes employées

#### a. Géométrie des électrodes

La cellule électrochimique la plus simple est constituée d'électrodes planes verticales, pleines ou encore en métal déployé. Cette dernière configuration permet une meilleure turbulence dans le milieu. La turbulence est aussi améliorée par injection d'air ou par un lit fluidisé (petites particules de remplissage isolantes), en plus du pompage de l'électrolyte [42]. L'utilisation d'une cellule à électrodes concentrique est aussi possible et est généralement appliquée à la récupération de métaux précieux à petite échelle. Le métal est alors récupéré par simple grattage. Une autre possibilité est l'utilisation d'une cathode rotative. Ce système permet une élimination efficace des métaux, mais de tels systèmes provoquent des dépôts de poudre métallique plutôt qu'un réel placage. Des chercheurs ont remarqué que l'utilisation de cathodes poreuses permettait de diminuer au tiers les coûts de traitement pour un taux de destruction de 95%, à  $250 \text{ mA/cm}^2$  [43].

#### b. Connexions électriques

Différents types de connexion peuvent être utilisées dans les cellules électrochimique [44]. Les électrodes peuvent être monopolaire branchées en série ou en parallèle, ou encore bipolaires branchées en série. L'arrangement en série nécessite une plus forte tension de cellule dû à la plus grande résistance que doit traverser le courant. Toutefois, le même courant traverse toutes les électrodes. En arrangement parallèle, le courant est divisé entre les différentes séries d'électrodes. Le potentiel de cellule pour la circulation d'un courant donné correspond donc à la résistance d'un seul couple d'électrodes.

En pratique, les arrangements en série sont préférables puisqu'ils permettent d'utiliser un plus faible courant et une forte différence de potentiel. En effet, il est plus économique de convertir le courant alternatif du réseau en forte tension et faible courant qu'en faible tension et fort courant. De plus, de forts courants occasionnent de forts champs magnétiques, néfastes dans l'environnement du travail [45].

### II.5.4. Mécanisme d'électrocoagulation vis-à-vis de la matière organique

L'oxydation électrochimique des matières organiques présentes dans les eaux résiduaires constitue un phénomène complexe, du fait de la richesse du milieu en diverses substances et des multiples réactions pouvant se produire simultanément au cours de l'opération.

#### II.5.4.1. Phénomène chimique

Lors du procédé d'électrocoagulation, le coagulant est produit in situ par oxydation électrolytique du matériau de l'anode [38, 46], conduisant à l'élimination des matières organiques.

D'autres chercheurs résument ce processus comme suit [47]:

- ✓ La formation des coagulants par l'oxydation électrolytique de métaux sacrificiels.
- ✓ La déstabilisation des contaminants, des polluants, des matières en suspension et la cassure des émulsions.
- ✓ L'agrégation des phases déstabilisées pour former les floes.

Cette dernière étape peut être résumée par les sous étapes suivantes :

- Présence forte de la double couche diffuse autour des espèces chargées obtenues grâce aux interactions des ions métalliques provenant de la dissolution de l'anode sacrificielle :
- Neutralisation des espèces ioniques présentes dans l'eau par les cations.
- Formation de floes comme le résultat de l'agglomération des particules et des colloïdes autour de l'espèce coagulée [48].

Les mécanismes d'élimination des substances organiques dissoutes via précipitation et/ou adsorption sur floes sont évoqués par divers auteurs [49]. Cependant il n'est pas toujours évident de déterminer le mécanisme impliqué [50].

#### II.5.4.2. Impact sur la matière organique

Afin de mieux comprendre la réactivité de la MO en électrocoagulation, de nombreux auteurs ont cherché à définir les impacts du phénomène chimique et du processus électrolytique sur divers composés organiques. Ainsi que :

- [51], signale que le type d'électrode est déterminant dans le type de transformation subi par la MO.
- [52], rapportent que la matière organique peut avoir des effets sur le comportement électrochimique des électrodes notamment sur leur potentiel et par conséquent sur les réactions d'oxydoréduction susceptibles d'exister.
- [53, 54], précisent aussi l'importance d'une élévation de température sur la rapidité de dégradation des composés organiques.

### II.5.5. Applications industriels de l'électrocoagulation

Actuellement, les avantages du processus d'électrocoagulation le placent parmi les processus les plus prometteurs dans différents domaines du traitement. Ses domaines d'applications sont très vastes et l'amélioration des procédés électrochimiques a réduit la plupart des inconvénients qui ont freiné l'utilisation de l'électrocoagulation. L'électrocoagulation a le potentiel d'être le choix économique et environnemental distinct pour le traitement de l'eau usagée et d'autres issues relatives de gestion de l'eau [11].

L'électrocoagulation a été appliquée avec succès dans le traitement de plusieurs types de pollutions. Le tableau II.1, présente certaines de ces applications.

**Tableau II.1** : Exemples d'application du procédé d'électrocoagulation [11].

Effluents traités	Efficacité	Références
Eaux riches en substances humiques.	Décoloration de l'ordre de 95%	Vik et al (1984).
Eaux résiduaires urbaines.	Abattement de la turbidité de 89%, et de MES 60%.	Pouet et al (1992).
Suspension de kaolite et doetonite.	Abattement de la turbidité entre 20 et 60%.	Szynkarezuk et al (1994).
Eaux colorées et eaux de rivière.	Efficacité de l'ordre de 90% pour la décoloration.	Jiang et al (2002).
Effluent réel réactif de bain.	Décoloration de 20 à 100% et un DCO >75%.	Arslan-Alaton et al (2008)
Traitement de solution contenant des ions indium(III)	Rendement d'élimination 78%	Chou et al (2009)
la séparation solide/liquide	Abattement de la turbidité de 95%	Abuzaid et al, 2002
l'eau usée municipale	Abattement de la turbidité de 90%, 85% de MES et 70% de DCO.	Pouet et Grasmick, 1995

l'eau usagée réfractaire avec le contenu élevé de pétrole et de graisse	96% de la DCO et plus de 99% d'huile et de graisse ont été éliminés	Xu et Zhu, 2004
rejet polluée par colloïde	Abattement de 80% de turbidité	Canizares et al, 2005
l'émulsion de latex et la silice dans l'eau désionisée	la réduction de la DCO s'étendant de 92% à 97%	Khemis et al, 2006
Huiles minérales	Abattement de DCO $\geq 80\%$ .	Tanguy et al (2001).
Lixiviat	Abattement de DCO $\geq 80\%$ .	Tanguy et al (2001).
Eaux encrées	Décoloration de l'ordre de 40%.	Tanguy et al (2001).
Bain photographique.	Abattement de DCO $\geq 80\%$ et coloration 30%.	Tanguy et al (2001).
Eaux phénolées.	Abattement de DCO et COT $\geq 30\%$ .	Tanguy et al (2001).
Effluents Cosmétiques.	Abattement de DCO $\geq 40\%$ .	Tanguy et al (2001).
Effluents pharmaceutiques	Abattement de DCO, COT, MES $\geq 80\%$ .	Tanguy et al (2001).

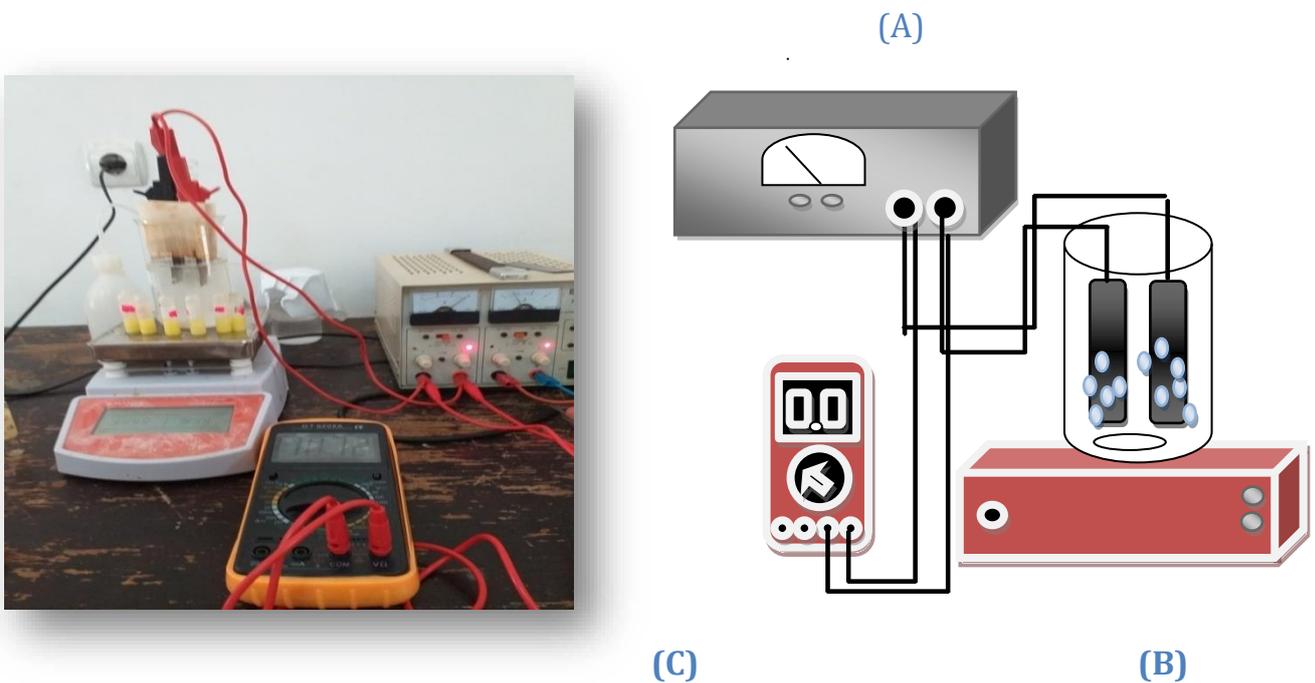


# Chapitre III

## Matériels et méthode

### III.1. Dispositif expérimental

L'installation expérimentale est constituée d'un pilote à fonctionnement en batch, dont le réacteur électrochimique est muni de deux électrodes planes et parallèles. Celle-ci est constituée d'un certain nombre d'éléments assemblés selon la figure III.1



**Figure III.1** : Dispositif expérimental de l'électrocoagulation (A) générateur, (B) Agitateur, (C) multimètre

#### III. 1.1 Description du montage

L'électrolyse est réalisée dans une cellule électrochimique à un seul compartiment de capacité maximale 250 ml relié à un générateur de courant et mené d'une agitation.

- Le courant appliqué entre les deux électrodes est imposé par un générateur de courant modèle DC SRABILIZED power supply ((Model HQ POWER PS-23003A).
- Le voltage est mesuré à l'aide d'un multimètre de type DT 9205A DIGITAL MULTIMETER

- Le pH est contrôlé à l'aide d'un pH mètre de type BASIC 20 Model 601 stirring type électrode frame.
- La cellule est couverte d'une plaque de polystyrène qui contient des trous porteurs d'électrodes. Le compartiment est relié à un multimètre pour fixer le potentiel et un pH mètre pour régler le pH de la solution.

### III. 1.2. Mode opératoire

Tous les essais d'électrocoagulation ont été réalisés à partir de protocole suivant :

Avant chaque essai, on mélange dans une fiole jaugé de 1L, 3,5 mg de Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (sulfate de sodium) avec 40 ppm de l'antibiotique (amoxicilline) puis on ajoute l'eau distillé jusqu'à le trait de jaugé, est homogénéisé grâce à une grande plaque agitatrice. Préalablement au démarrage de l'essai, une quantité de 250 ml de cette eau est introduite dans la cellule d'électrocoagulation.

Les électrodes sont plongées dans la cellule d'électrocoagulation fraîchement remplie la solution. Lorsque fixées au montage, elles sont reliées à l'inverseur de polarité qui est, à son tour, relié au bloc d'alimentation (Générateur de courant électrique : HQ\_POWER<sup>TM</sup> PS 23003A stabilisé en courant continu qui peut être réglé à l'ampérage de 0,5 A. D'autre part le passage du courant dans les électrodes, s'enclenchent divers mécanismes physicochimiques.

Durant ce processus, le contenu de la cellule d'électrocoagulation est homogénéisé à l'aide d'un agitateur avec barreau magnétique, ce qui favorise le contact entre les polluants et les coagulantes boues produites par électrocoagulation.

### III.2. Matériels de mesure et d'analyse

La cinétique de dégradation et minéralisation de l'amoxicilline a été suivie par spectrophotométrie UV-visible, DCO et COT.

Afin de réaliser des analyses reproductibles, il est nécessaire de ne pas bloquer l'agitation au moment du prélèvement des échantillons, pour éviter la condensation de coagulant dans le réacteur.

#### III.2.1 Analyse par la spectrophotométrie UV-visible

La spectrophotométrie UV-visible est une technique d'analyse et de caractérisation très simple et indispensable pour visualiser les zones d'absorption des molécules. Elle est basée sur la mesure de la densité optique d'un milieu à une longueur d'onde donnée. Un spectre d'absorption est obtenu lorsque les variations de la densité optique sont représentées en fonction des longueurs

d'onde. La lumière monochromatique incidente d'intensité  $I_0$  traverse alors l'échantillon, et sort avec une intensité  $I$  de lumière transmis ( $I < I_0$ ) :

$$D_{o\lambda} = \log \frac{I_0}{I} = \epsilon_{\lambda} l c \quad \text{III.5}$$

Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un spectrophotomètre «thermo gynesys 10UV ». Les mesures d'absorbance ont été appliquées aux solutions prélevées dans des conditions opératoires bien définies [55].

### III.2.2. Demande chimique en oxygène (DCO)

La valeur de DCO caractérise la quantité de substances chimiquement oxydables présentes en solution. C'est un paramètre indicateur de pollution. Il s'agit de la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder les composés organiques et minéraux (chimiquement oxydables) présents dans la solution.

La détermination est effectuée selon la norme Française NF T 90 101. Le principe est basé sur un dosage en retour du dichromate de potassium, par une méthode spectrophotométrique ( $\lambda = 620$  nm). L'oxydation est menée en milieu acide en présence  $Ag_2SO_4$  et de  $HgSO_4$  qui permet de précipiter les ions chlorures qui sont susceptibles de fausser la mesure.

L'oxydation de la matière est effectuée pendant 2 h dans un four à  $150 \text{ }^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$  Le dichromate en excès n'ayant pas réagi est dosé par spectrophotométrie au moyen d'un DCO-mètre de marque "AQUALYTIC" dont la gamme de mesure s'étend de 0 à 1500 mg d' $O_2$ /L [55].

### III.2.3. Analyse par Mesure du carbone organique total (COT)

Le carbone organique total (COT) représente la matière organique carbonée totale existante dans une solution, COT constitue un paramètre important qui définit la qualité d'une eau, et son degré de pollution. A la différence des techniques de spectroscopie, l'analyse du COT est non spécifique et indique la teneur en composé organique sans aucune indication sur la nature de ces derniers et sans différenciation. Ce critère est de ce fait utilisé pour la surveillance du réseau d'eau purifié ou ultra pure dans le milieu pharmaceutique ou pour l'analyse des eaux potables, d'eaux de rivière, ou même d'eaux de rejet. Sa détermination se fait par un COT mètre, chimique. KIT. Celui que nous avons utilisé est un TOCVCSH (Shimadzu) avec une fourchette de mesure comprise entre 4  $\mu\text{g/L}$  et 25  $\text{g/L}$  de carbone avec les quites de 0 à 300  $\text{mg/L}$  [55].

### III.2.4. Demande biologique en oxygène DBO

La demande biologique en oxygène DBO est un paramètre qui exprime la quantité d'oxygène que les bactéries vont consommer pour décomposer la matière organique contenue dans l'effluent. Elle est généralement mesurée en 5 jours (DBO<sub>5</sub>). Nous avons utilisé la méthode manométrique à l'aide d'un appareil de marque : VELP<sub>(p)</sub> SCIENTIFICA. Les résultats sont exprimés (g O<sub>2</sub>/L) [11].

### III.2.5. Mesure des MES

Pour la mesure des matières en suspension (MES), on filtre 25 ml de l'échantillon avec un filtre de 0,45 µm, on place le filtre dans une coupelle que l'on laisse sécher pendant 2 heures dans une étuve à 105 °C puis refroidie dans un dessiccateur pendant 20 minutes. La concentration des matières en suspension (MES) s'exprime par :

Avec M1 la masse de l'ensemble de la coupelle et du filtre propre (en g) et M2 correspond à la masse de la coupelle du filtre et des matières en suspension après séchage. Les filtres et les coupelles sont placés à l'étuve 2 h puis refroidie dans un dessiccateur avant leur utilisation de sorte que le poids M1 corresponde bien au poids sec [11].

### III.2.6. La turbidité

La turbidité est l'effet optique qui traduit le caractère trouble de l'eau. Elle est due à la présence de diverses matières (minérales ou organiques) en suspension finement divisées. Elle se mesure en faisant passer un faisceau lumineux à travers l'échantillon à tester. L'appareil utilisé pour la mesure de ce paramètre est de type (WTW TURB 355T) comportant une diode à infrarouge de longueur d'onde 890 nm et un détecteur de lumière réfléchi. L'étalonnage de l'appareil a été effectué au moyen de solution de silice. Dans le cas où les échantillons présentent une turbidité en dehors de la gamme de mesure (0 à 1000 NTU), des dilutions appropriées s'imposent [11].

## IV. 3. Tests microbiologiques

Ces biotests sont réalisés sur trois types de bactéries : bacillus subtilis, Escherichia coli et klebsiella pneumoniae. Ils sont utilisés pour l'antibiogramme des souches bactériennes et pour l'évaluation de l'activité antibactérienne.

Ces bactéries sont mises en culture séparément dans des boîtes de Pétri contenant un milieu solide (gélose Mueller-Hinton 'G.M.H'). Dans chacune de ces boîtes sont disposés des disques de

papier imprégnés soit d'eau distillée, soit de rejet traité, soit de rejet non traité. S'il y a inhibition de la croissance des bactéries, un halo blanc (zone d'inhibition) sera observé autour du disque de papier. Le diamètre de cette zone sera d'autant plus grand que l'inhibition sera plus importante.

Après 24 heures d'incubation dans une étuve thermostatée à 37° C, les boîtes sont examinées.

# Chapitre IV

## Résultats et discussion

**Introduction**

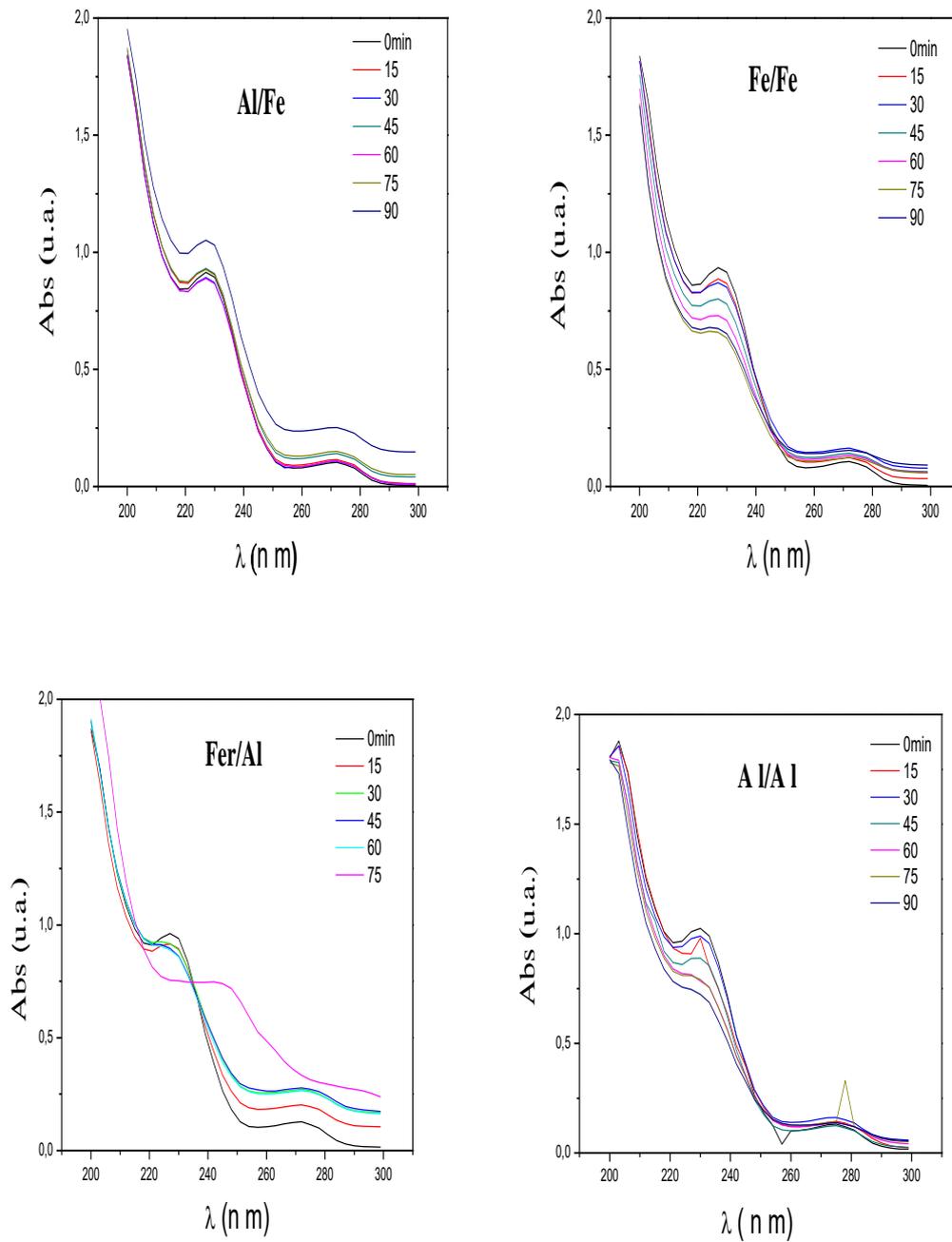
Nous nous intéressons dans ce chapitre, à travers des essais en batch, d'évaluer l'influence de certains paramètres sur le procédé d'électrocoagulation appliqué au rejet pharmaceutique synthétique. Les paramètres considérés sont le matériau des électrodes, la distance inter-électrodes, l'intensité de courant, la nature et la dose en l'électrolyte et en médicament « Amoxicilline ». L'efficacité du traitement mis en œuvre a été suivie par la mesure de la Spectroscopie UV-visible, du COT, de la DCO, de la DBO<sub>5</sub>, de l'énergie électrique spécifiquement consommé ainsi que du pH et de la Turbidité.

**IV.1. Influence de la nature du matériau d'électrode sur le procédé d'électrocoagulation**

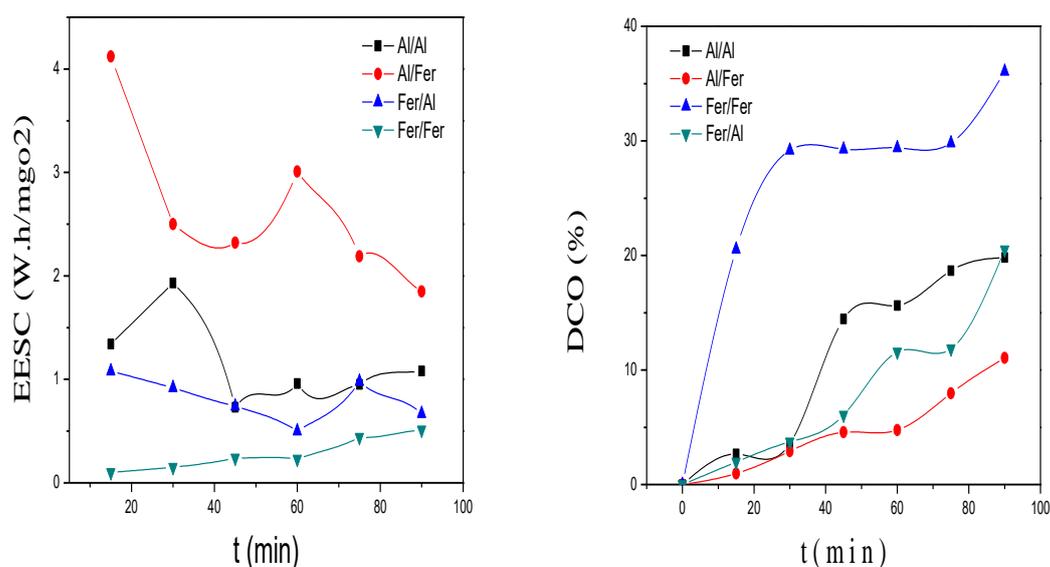
Pour examiner l'influence de la nature des matériaux des électrodes, nous avons opéré au moyen de deux paires d'électrodes mono polaires en aluminium et en fer en mesurant la DCO, la spectroscopie UV-visible et l'EESC finale d'un rejet synthétique (40 ppm d'amoxicilline) après 90 minutes d'électrolyse. Pour 0.5A et une concentration en électrolyte (Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) de 3,5 g/L, les résultats sont représentés sur le tableau VI. 1. (Voir annexe)

$$\blacktriangleright \text{EESC} = \frac{V.I.t}{\text{DCOi\_DCOf}}$$

$$\blacktriangleright \% \text{ DCO} = \frac{\text{DCOi} * \text{DCOf}}{\text{DCOi}}$$



**Figure IV. 1 :** Effet de la nature du matériau des électrodes sur la dégradation du polluant ( $d=1\text{ cm}$ ,  $40\text{ ppm}$ ,  $i=0.5\text{ A}$ ,  $\text{pH normal}$ ).



**Figure IV.2** : Effet de la nature du matériau des électrodes sur l'abattement de la DCO et EESC. ( $d=1\text{cm}$ ,  $40\text{ ppm}$ ,  $i=0.5\text{A}$ ,  $\text{pH normal}$ ).

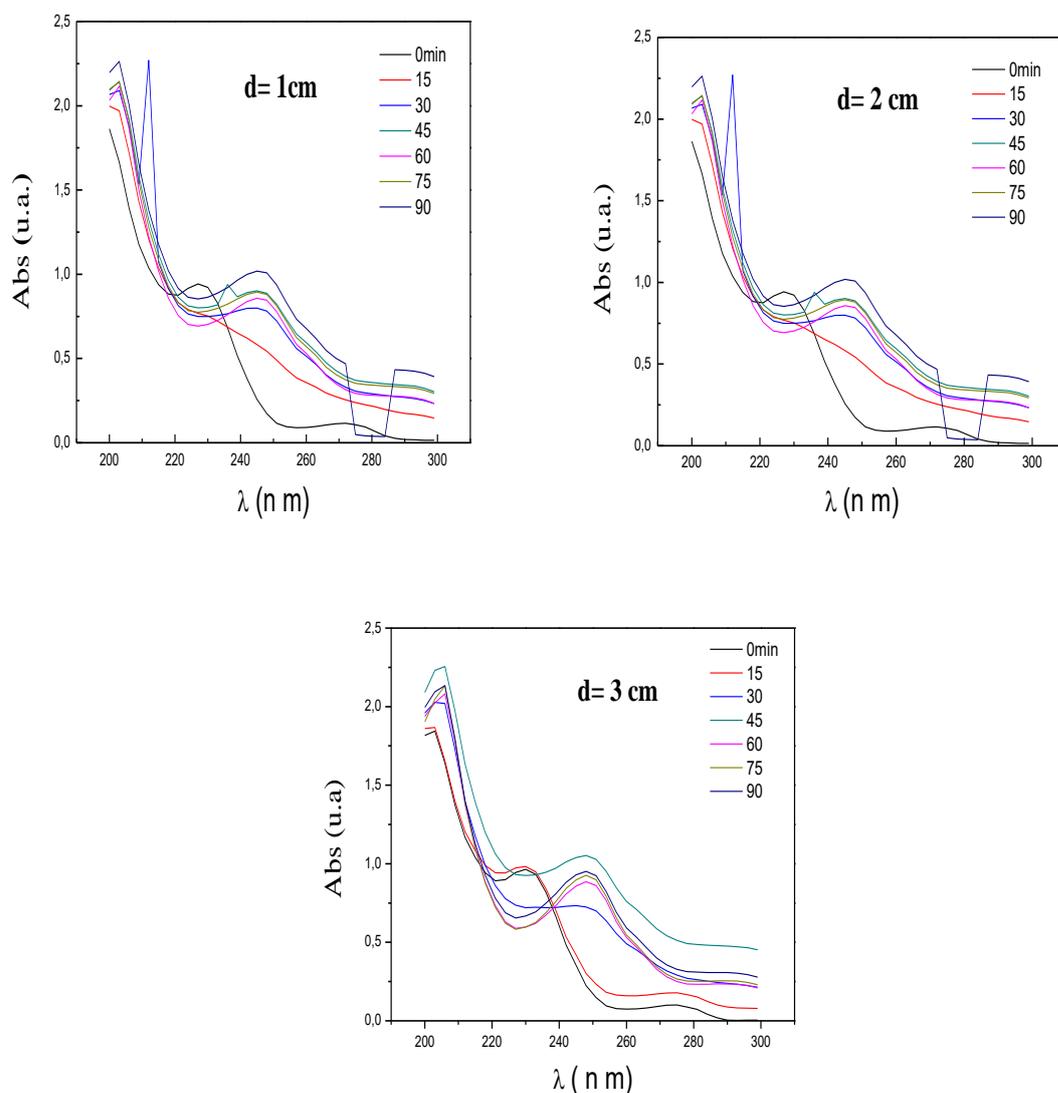
Pour les couples d'électrodes Al /Al et Al/Fe, c'est-à-dire quand la cathode est en fer, l'abattement est plus faible. Ceci traduit que la dissolution cathodique est possible uniquement pour l'aluminium et que la dissolution des électrodes est entièrement anodique. De plus, les deux représentations ont la même allure et sont presque juxtaposées tout au long du procédé de traitement. Tandis que pour les électrodes Fe/Fe, l'allure est également remarquable avec une cinétique d'élimination plus rapide et un taux d'abattement plus significatif avec EESC la plus faible. Nous observons que selon l'agencement des électrodes, les capacités de minéralisation du procédé EC sont dans l'ordre décroissant Fe/Fe, Fe/Al, Al/Al et Al/Fe et valent respectivement 36.06, 20.49, 19.82, 11.06 % pour la DCO.

Par ailleurs, lorsque des électrodes en fer sont utilisées, nous avons constaté un dépôt et une coloration de la solution marron jaune (rouille) qui caractérise les ions  $\text{Fe}^{+3}$  (en solution) et aux hydroxydes ferrique (dépôt solide). Ce résultat a été également observé par Nafaa et al. (2004) [56]. L'importante DCO résiduelle observée a été attribuée par au fait que l'hydroxyde de fer ( $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ) décante plus difficilement. En effet, ces microparticules d'hydroxyde de fer, de par leur très petite taille et leur faible capacité de gonflement en milieu aqueux, ont tendance à rester en suspension [51].

De ce fait, les électrodes en fer étant les plus performantes, seront utilisées dans la suite de l'étude expérimentale.

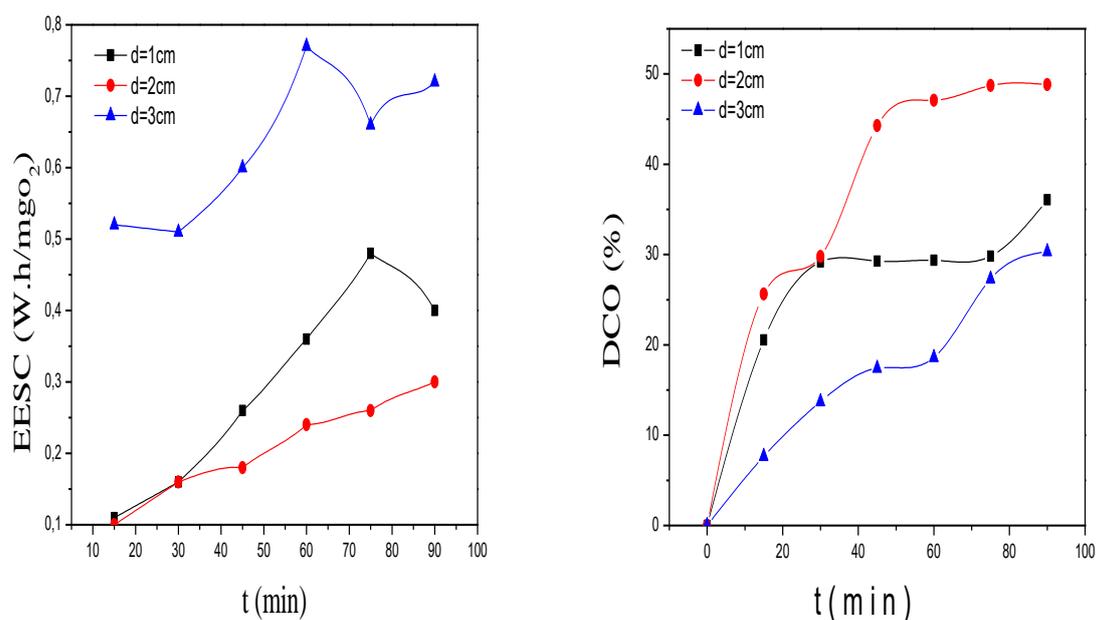
## IV.2. Effet de la distance inter électrodes sur l'électrocoagulation

Entre les électrodes influe sur le voltage nécessaire au passage du courant dans le milieu à traiter. Une étude entreprise démontre que plus l'espacement entre les électrodes est grand plus la consommation énergétique est importante [57]. Ont déterminé, que plus l'espacement entre les électrodes est faible, meilleur est l'élimination du polluant [58, 59]. Toutefois, une faible distance inter électrode peut accroître fortement la densité de courant et induire un court-circuit. Ces auteurs privilégient donc un espacement entre les électrodes de l'ordre de 1 et 2 cm. A cet effet, nous avons testé trois distances inter électrodes, en l'occurrence 1, 2 et 3 cm ; l'intensité du courant étant fixée à 0.5 A, le pH initial de la solution à 5.5 (pH naturel de l'échantillon), et la concentration de l'électrolyte ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) égale à 3.5 g/L. Les résultats obtenus sont illustrés sur le tableau IV.2. (Voir annexe)



**Figure IV.3 :** Effet de la distance inter électrode sur la dégradation de l'amoxicilline.

( $\text{Na}_2\text{SO}_4 = 3.5\text{mg/L}$ , 40 ppm, pH=5.5,  $I = 0.5\text{A}$ ).



**Figure IV.4 :** Effet de la distance inter électrode sur l'EESC et l'abattement de la DCO.  
( $\text{Na}_2\text{SO}_4 = 3.5\text{g/L}$ , 40ppm,  $\text{pH}=5.5$ ,  $i = 0.5$ ).

Nous observons que plus la distance inter électrode est faible (2cm), meilleur est l'élimination de la DCO (49 %) de même pour la dégradation. En effet quand cette distance diminue, la résistance diminue, ce qui a pour conséquence une augmentation du rendement faradique, c'est-à-dire une plus grande dissolution du fer (coagulant), donc une meilleure élimination de la MO. Par ailleurs, quand la distance inter électrode est faible, les particules et les coagulants ont plus de chance d'entrer en collision, donc une meilleure efficacité d'élimination. Ces résultats sont en accord avec les résultats trouvés par Kamaraj et al. (2014) [59], pour l'élimination de strontium et césium avec des abattements de 84 et 86% respectivement au bout de 40 min d'électrolyse et une distance inter-électrode de 2cm. D'autre part, l'EESC est plus faible pour  $d = 2\text{cm}$  et croît avec l'augmentation de la distance inter électrode. Cette augmentation peut être expliquée par les mêmes phénomènes présentés précédemment, la consommation énergétique étant directement liée à la résistance du milieu, donc au potentiel d'électrode.

De ce fait, 2 cm peut être considérée comme distance inter électrode optimal du traitement, elle sera utilisée pour la suite des expériences.

## VI.3. Influence de l'intensité du courant sur le processus EC

La densité de courant est un paramètre critique en électrocoagulation, étant donné qu'il est le seul pouvant être contrôlé directement. Lorsque la densité de courant augmente, le temps de traitement diminue en raison de la forte dissolution des électrodes [60]. Il en résulte donc davantage une déstabilisation des particules du polluant. Par ailleurs, le taux de production des bulles d'hydrogène augmente et leur taille diminue lorsque la densité de courant électrique appliquée est élevée, tous ces effets sont bénéfiques pour une élimination efficace du polluant par flottation [61].

Dans la présente étude, nous avons examiné l'effet de ce paramètre sur l'électrocoagulation. Pour cela, trois intensités de courant ont été examinées, en l'occurrence 0.3, 0.5, 0.7 et 0.9 A pour 48 minutes d'électrolyse, les résultats sont représentés sur le tableau VI. 3. (Voir annexe)

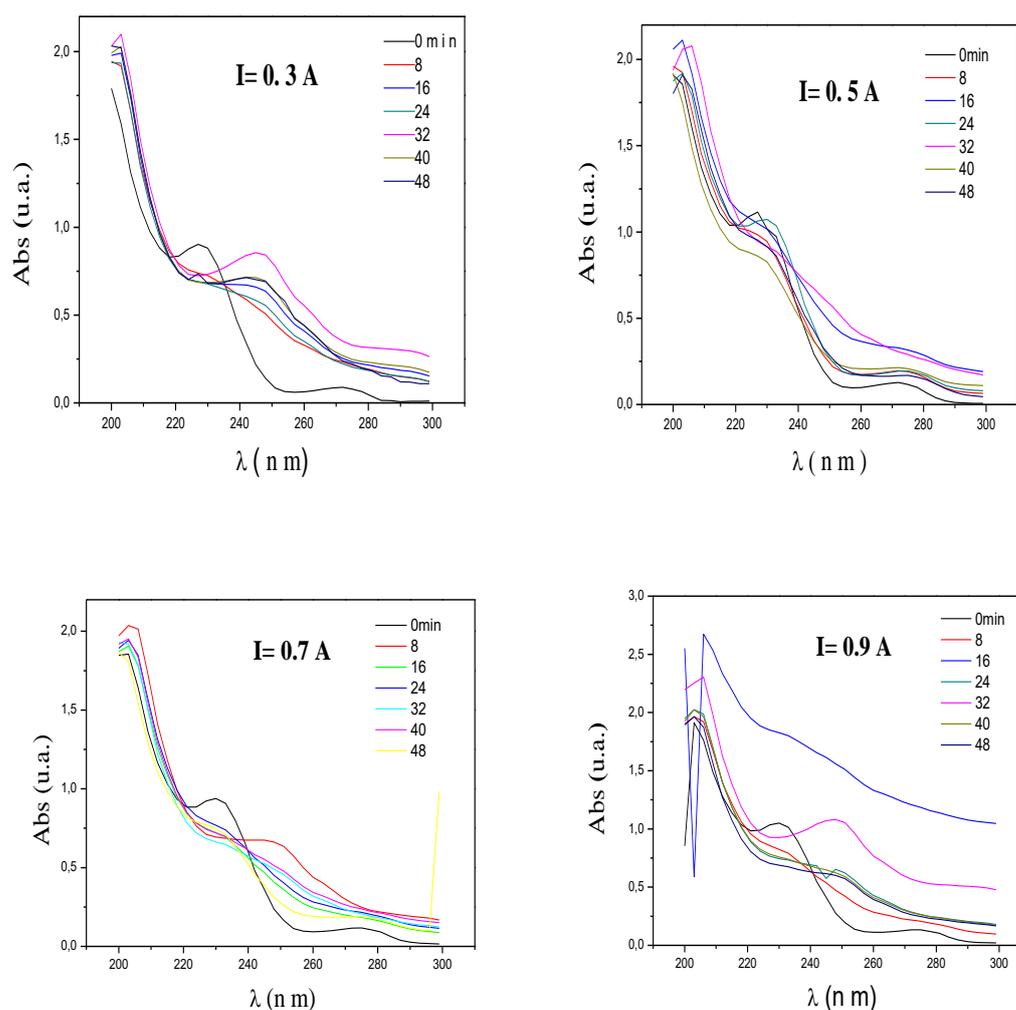
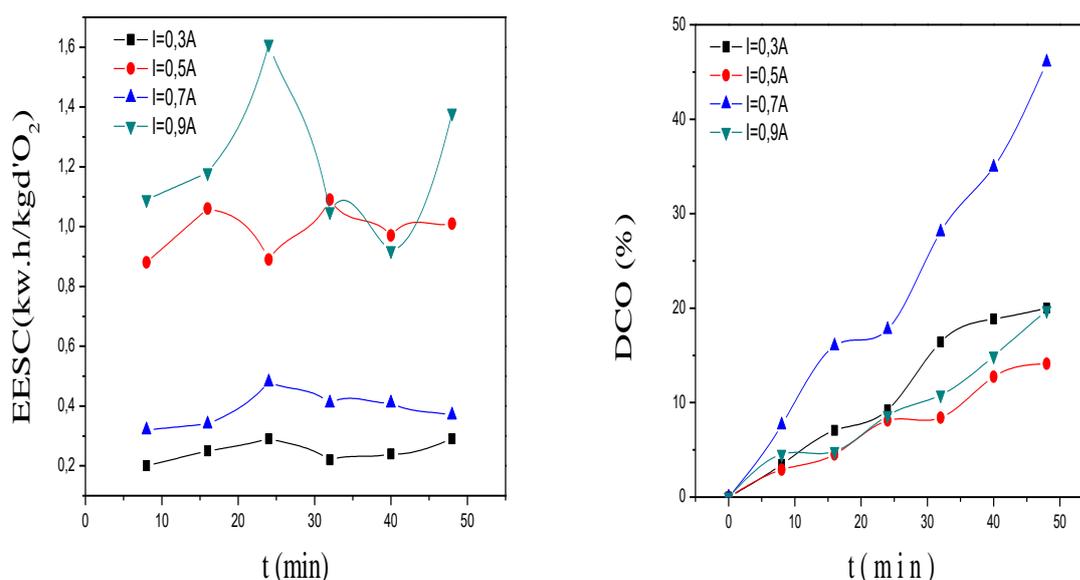


Figure VI.5. Effet de l'intensité du courant sur la dégradation de l'Amoxicilline.



**Figure VI.6.** Effet de l'intensité du courant sur l'abattement de DCO et L'EESC.

Les résultats de la figure VI.6, montre que le taux d'élimination de la DCO augmente avec l'augmentation de l'intensité de courant. Cette augmentation est due a la formation des complexes d'hydroxydes qui jouent un rôle important dans la coagulation des polluants qui décantent ou flottent en surface [62], On remarque que pour une intensité de courant égale a 0.7 A et un temps  $t = 48\text{min}$ , le taux de minéralisation est au maximum 47 % avec une EESC relativement faible ( $0.37 \text{ Kw.h/kgd'o}_2$ ). Ce résultat suggère que l'augmentation de l'intensité de courant entraîne une augmentation de l'efficacité du procédé. Cette croissance du rendement d'élimination est influencée par la densité de courant, qui ne détermine pas seulement la quantité de coagulant généré *in situ*, mais aussi la quantité de bulles de gaz produites [54]. Ceci peut aussi s'expliquer par le fait que la quantité des ions  $\text{Fe}^{2+}$  générée par la dissolution de l'anode augmente avec la densité de courant (loi de Faraday). Ceci implique que lors de la phase active, le processus d'élimination de la matière organique (MO) est exclusivement contrôlé par le phénomène de coagulation, ce dernier étant proportionnel à la quantité de coagulant ( $\text{Fe}^{3+}$ ) dans le milieu. Il a été établi expérimentalement que, pour un temps donné, l'efficacité d'élimination augmente avec l'augmentation de la densité de courant. La quantité d'ions  $\text{Fe}^{2+}$  et  $\text{Fe}^{3+}$  est élevée, ce qui entraîne une quantité élevée de précipités d'hydroxydes, qui favorisera la déstabilisation des polluants [63, 40].

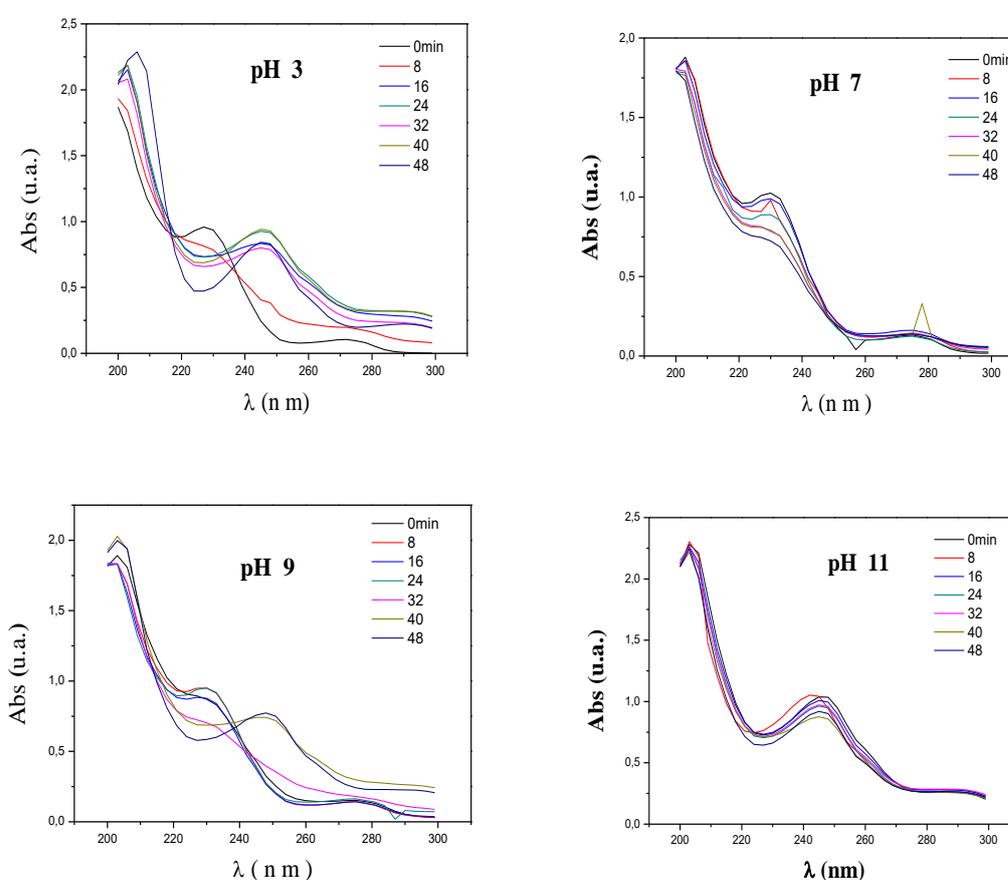
Par ailleurs, nous observons, qu'au cours du temps, pour une intensité de 0.9 A, la tension de cellule augmente puis se stabilise. Cette augmentation nous l'attribuons au dépôt d'une couche de polluant sur les électrodes, qui a pour conséquence une augmentation de la

résistance, et de là, une diminution du transfert de charges et de matières entre les électrodes et le sein du milieu. Le courant électrique est un facteur important dans la performance du processus de l'électrocoagulation et il est préférable de diminuer le voltage de la cellule plutôt que de diminuer le courant (loi d'Ohm). Pour minimiser l'énergie consommée (énergie consommée  $W = U i t$ ), et diminuer la tension, il faut considérer des petites distances entre les électrodes afin de maintenir les mêmes intensités de courant.

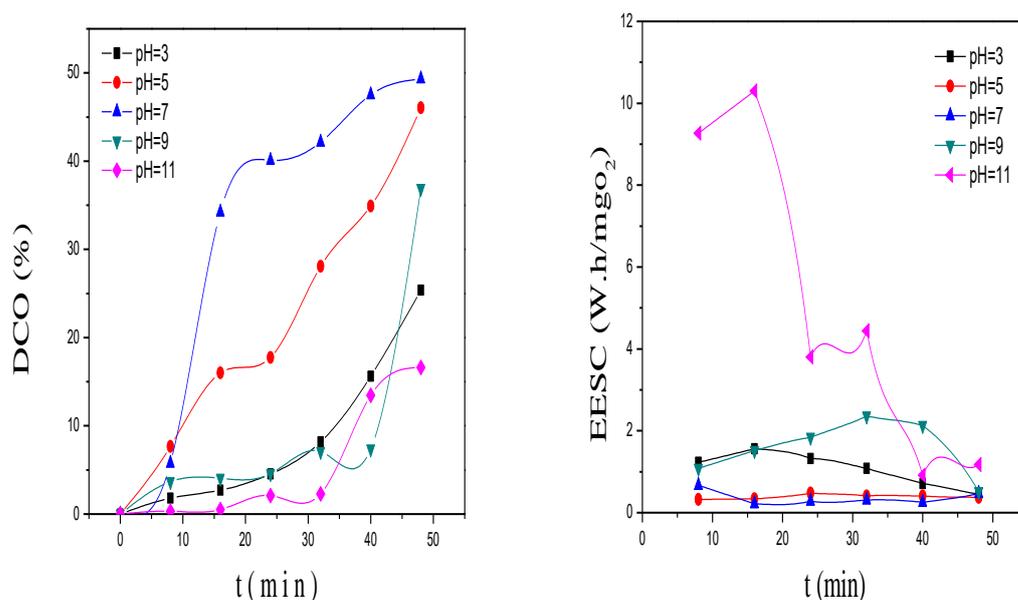
De ce fait, 0.7 A pourrait être prise comme l'intensité de courant optimale.

#### IV.4. Effet du pH initial sur le procédé d'électrocoagulation

Plusieurs études ont mentionné que le pH initial est un paramètre déterminant dans la performance du procédé d'électrocoagulation [64]. Afin d'étudier l'effet du pH initial sur la dégradation et la minéralisation de l'amoxicilline, nous avons effectué une série d'essais avec cinq valeurs de pH à savoir : 3, 7, 9, 11 et 5.5 (pH naturel de la solution). Le pH a été ajusté avec des solutions d'hydroxyde de sodium et d'acide chlorhydrique (NaOH et HCl). L'intensité de courant a été fixée à 0.7A pendant 48 minutes d'électrolyse. Les résultats sont représentés dans le tableau IV. 4. (Voir annexe)



**Figure IV.7 :** Effet du pH initial sur la dégradation de l'amoxicilline ( $\text{Na}_2\text{SO}_4 = 3.5\text{mg/L}$ , 40 ppm,  $i = 0.7\text{A}$ ).



**Figure IV.8 :** Effet du pH initial sur l'abattement de la DCO et l'EESC ( $\text{Na}_2\text{SO}_4 = 3.5\text{mg/L}$ , 40 ppm,  $i = 0.7\text{A}$ ).

Cette expérience a montré que pour les pH initiaux acides ou neutre, ce dernier croît au cours du traitement, alors que pour les pH basiques, la valeur de ce paramètre diminue. On attribue l'augmentation de pH à l'évolution d'hydrogène à la cathode [65]. Cependant, on explique cette augmentation du pH par le dégagement du  $\text{CO}_2$  de l'eau usagée dû aux bulles  $\text{H}_2$ . En outre, la dissolution chimique du fer consomme les ions  $\text{H}^+$  et provoque l'augmentation de pH. En revanche, en milieu alcalin, les formes ioniques des hydroxydes de fer prédominent, ce qui a pour conséquence la réduction de l'efficacité du traitement par électrocoagulation. Aussi, les ions  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  présents dans le liquide, peuvent co-précipiter (en même temps que  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ) sous forme d'hydroxydes et de là, engendrer une diminution du pH [66].

Les figures IV.7 et 8, montrent aussi, que l'ajustement du pH initial permet d'augmenter l'efficacité du procédé. Il est observé qu'au bout de 48 min, un taux d'abattement maximal de DCO, de l'ordre de 50%, est obtenu pour un pH neutre. D'autre part, l'efficacité du traitement commence à diminuer à partir de pH 7. Ceci peut être expliqué par le fait qu'à  $\text{pH} > 7$ , les floccs de l'hydroxyde de fer sont moins réactifs et la floculation est moins efficace, avec la formation des floccs de petite taille, ce qui provoque la formation d'un dépôt sur l'anode (encrassement de l'anode) et augmentation de la chute ohmique. Ce résultat

est en accord avec l'étude d'Ait Ouassa et al, (2014) [67], pour la dégradation de la tétracycline.

#### IV.5. Effet de la nature et la concentration de l'électrolyte sur le procédé EC

##### IV.5.1. Effet de la nature de l'électrolyte

Dans les procédés électrochimiques qui consistent en des réactions de transfert d'ions hétérogènes, la conductivité de la solution à traiter est un paramètre important. La conductivité de la solution affecte le rendement de courant, la tension appliquée, et la consommation d'énergie électrique dans des systèmes électrolytiques, parce que le courant traversant le circuit est une fonction de la conductivité sous une certaine tension appliquée. La méthode la plus couramment utilisée pour résoudre ce problème est d'ajouter une petite quantité d'électrolyte, ce qui augmente la conductivité électrique de la solution et réduit ainsi la consommation d'énergie pendant l'électrocoagulation [68].

L'effet du type et de la concentration de l'électrolyte sur l'efficacité du procédé EC a été largement étudié [69, 70, 71, 72]. Dans le cas de l'utilisation d'électrodes en fer, plusieurs types d'électrolytes ont été utilisés, tels que NaCl [73]. Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> [74].

Dans la présente étude, nous avons examiné 3 types d'électrolytes ayant le même cation Na<sup>+</sup>, en l'occurrence, NaCl, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, NaNO<sub>3</sub> ainsi que H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> et NaOH. Les expériences ont été effectuées dans les conditions optimales d'intensité de courant et de pH, préalablement établies ci-dessus (0.7 A et pH 7) et pour les mêmes concentrations molaires en anion Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Les résultats sont représentés sur le tableau IV. 5. (Voir annexe)

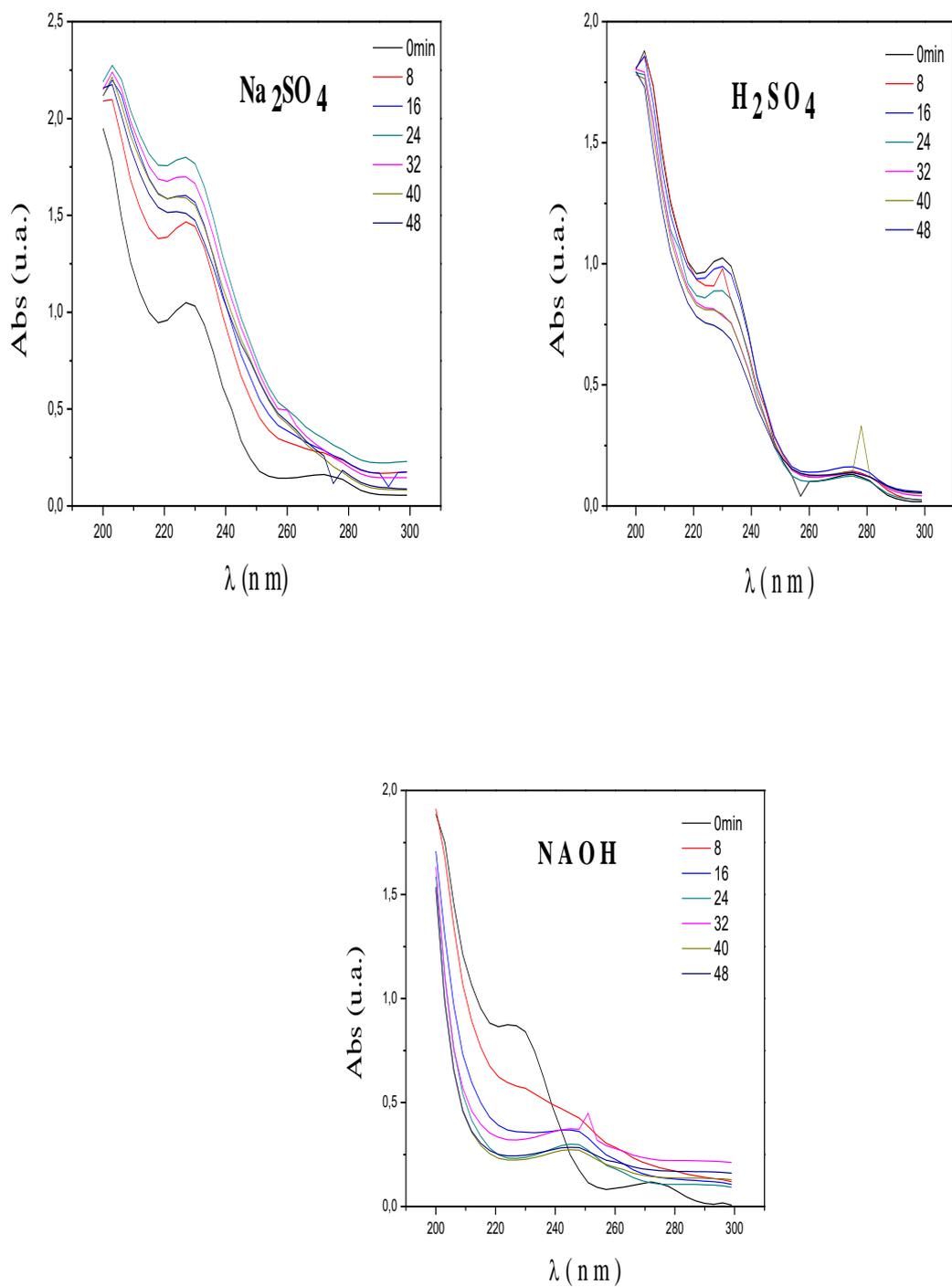
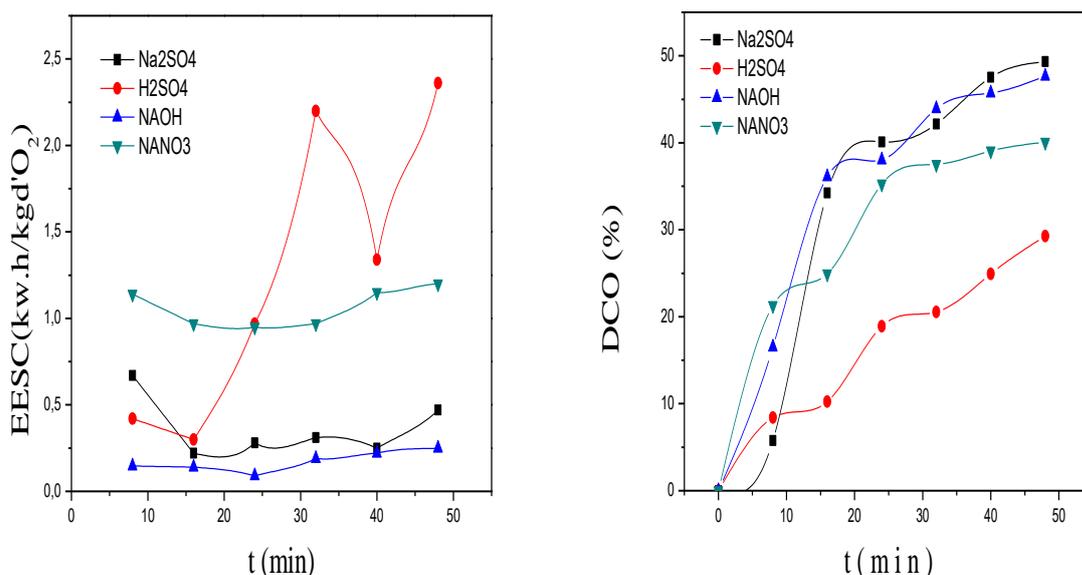


Figure IV.9 : Effet d'électrolyte sur la dégradation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm,  $i = 0.7\text{A}$ ).

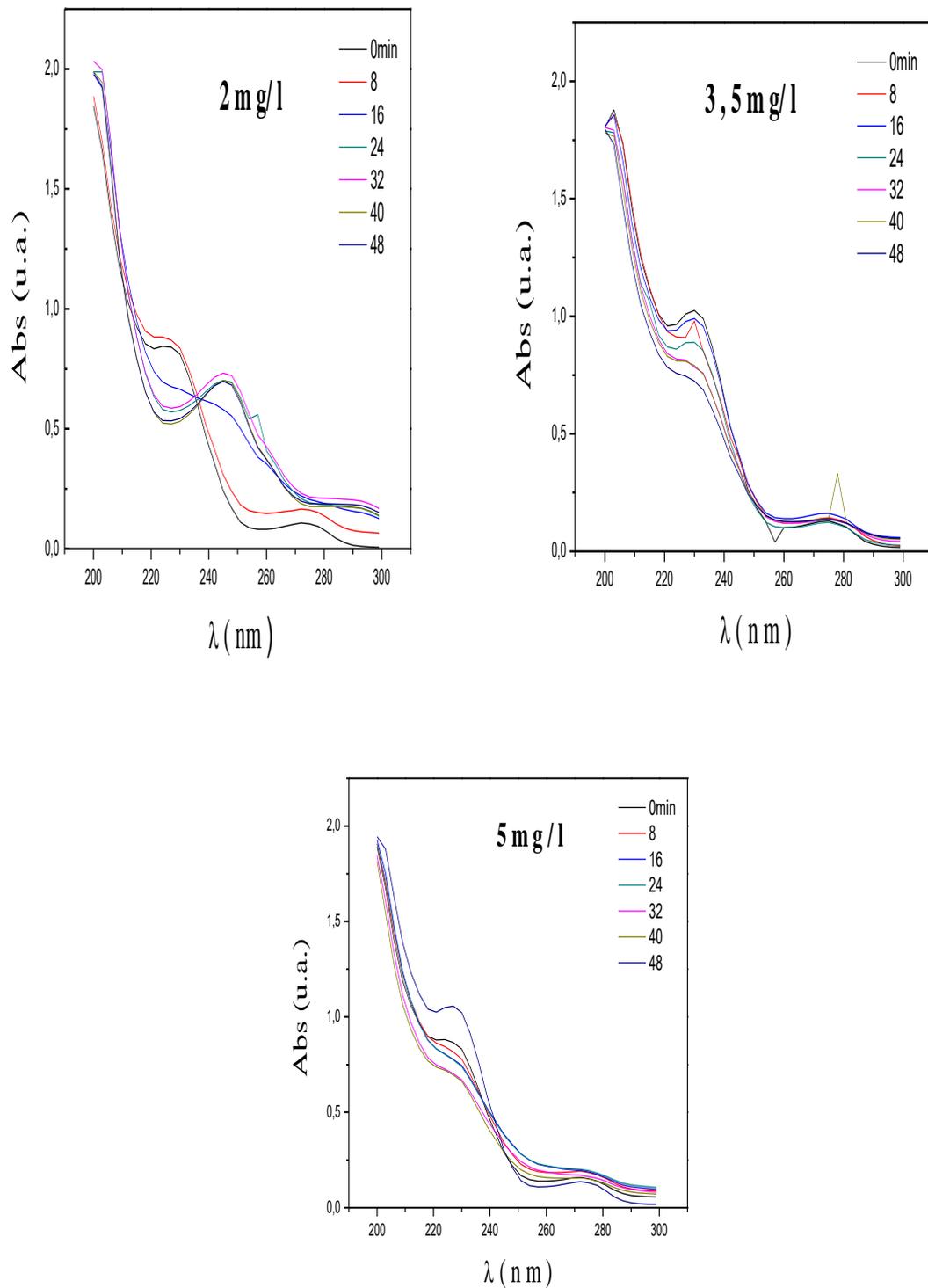


**Figure IV.10 :** Effet d'électrolyte sur l'EESC et la minéralisation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm,  $i = 0.7A$ ).

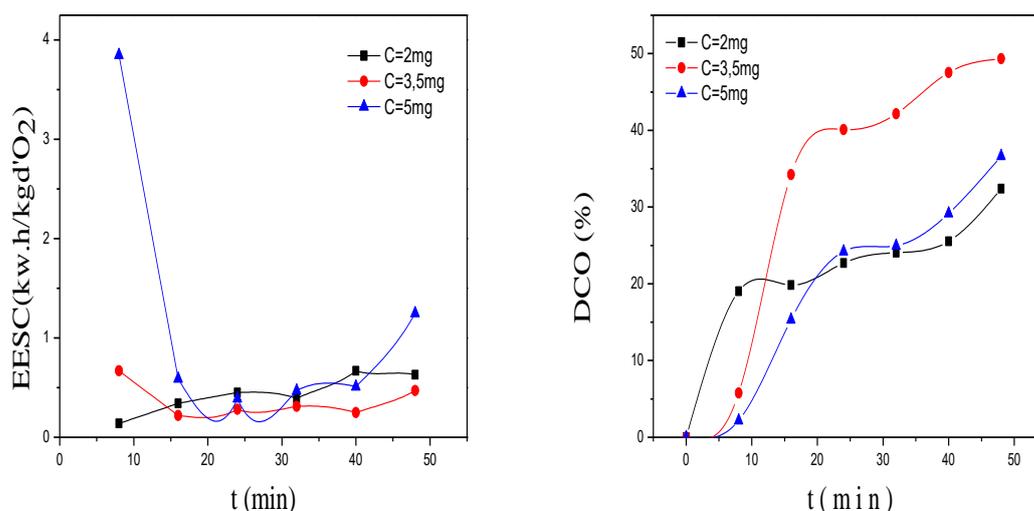
L'utilisation de Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> conduit un bon résultat d'élimination que, NaNO<sub>3</sub>, NaOH et H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Au bout de 48 min d'électrolyse l'abattement de la DCO atteignent 50% pour Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> avec EESC la plus faible, 47.60% pour NaOH et seulement 40.07% pour le NaNO<sub>3</sub> et 29.28%. Ces résultats sont conformes à ceux obtenus par (Thiam, 2014) [75], pour le traitement des solutions de Tartrazine. L'utilisation de NaCl a révélée l'inefficacité de ce dernier à dégrader l'amoxicilline. Des études récentes (SAUR *et al.* 1996 ; HOSNY *et al.* 1996) montrent que la présence de NaCl diminue la taille des bulles de gaz, spécialement l'hydrogène. En effet, le chlorure de sodium augmente la tension superficielle, ce qui rigidifie l'interface gaz liquide et, par conséquent, limite la coalescence des bulles de gaz (OLIVEIRA *et al.*, 1999). La vitesse ascensionnelle des petites bulles est plus faible que celle des bulles plus larges (BRANDON *et al.*, 1985).

#### IV.5.2. Effet de la concentration d'électrolyte sur le procédé d'EC

Dans cette étude, le sulfate de sodium, a été utilisé comme électrolyte pour augmenter la conductivité de la solution aqueuse. L'influence du sel a été étudiée en faisant varier sa concentration (g/L) dans un litre de solution ; les autres paramètres ont été maintenus constants. On a utilisé une intensité de courant de 0.7A à pH neutre. L'effet des diverses concentrations d'électrolyte sur la dégradation et minéralisation du polluant est présenté sur le tableau IV.6. (voir annexe ) et les figures ci-dessous :



**Figure IV.11 :** Effet de la concentration du  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  sur la dégradation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm,  $i = 0.7\text{\AA}$ ).



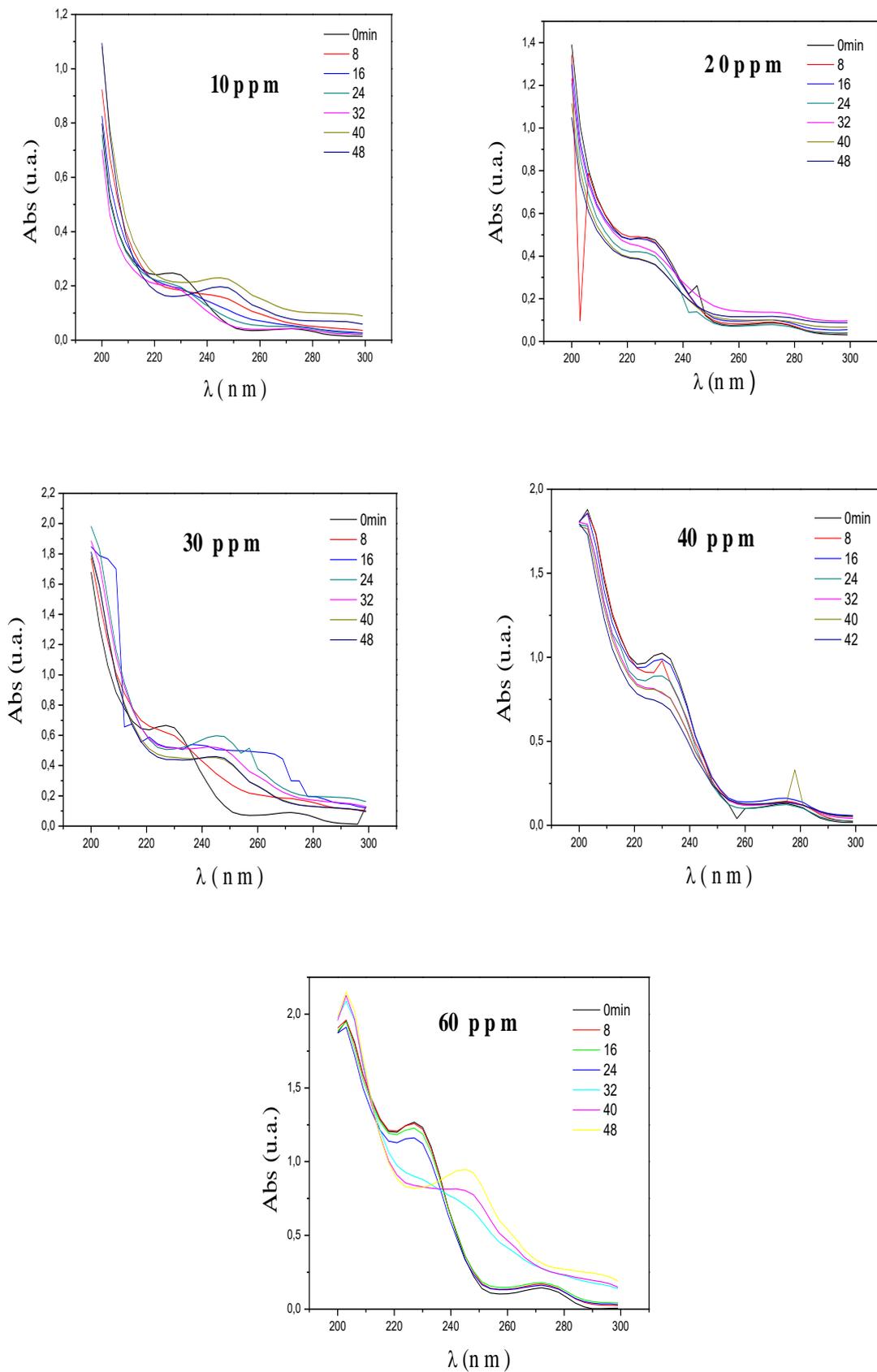
**Figure IV.12 :** Effet de la concentration du  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  sur l'EESC et la minéralisation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm,  $i= 0.7\text{A}$ ).

Nous observons d'après les résultats obtenus, qu'entre 2 et 3,5 g/L, l'EESC décroît de manière significative de 0.63 à 0, 47 kWh/kg, avec une importante augmentation de l'élimination de la DCO de 32% à 50%. En revanche, pour des concentrations en sel comprises entre 3,5 et 5 g/L, la diminution de l'EESC est peu significative de 0.47 à 0, 44 kWh/kg, mais l'efficacité d'élimination décroît. De ce fait, pour les conditions considérées, en l'occurrence, 0.7 A, pH 7 et 48 minutes d'électrolyse, nous pouvons considérer 3,5 g/L, comme la concentration optimale en  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ .

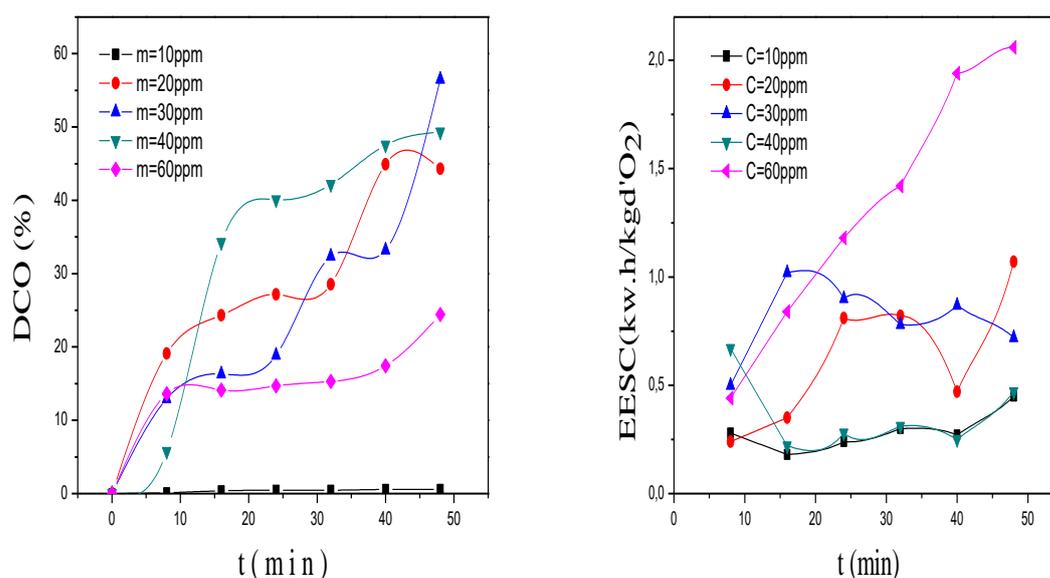
#### IV.5.3. Effet de la concentration initiale du polluant sur l'électrocoagulation

Les eaux usées issues des usines pharmaceutiques chargées en substance médicamenteuse, même après le traitement, contiennent d'importantes et variables quantités de médicaments et de leurs métabolites actifs. Ces molécules, dont l'amoxicilline, se retrouvent ainsi à la surface du sol, des eaux de surface, et par la suite dans les eaux potable. Ainsi, dans les rejets à traiter, la concentration de ces molécules est variable.

Pour étudier l'influence de la concentration initiale de l'Amoxicilline sur son élimination par EC, une série d'expériences a été menée avec des concentrations de 10, 20, 30, 40 et 60mg/l. les autres paramètres ont été maintenus constants.  $D=2\text{cm}$  ;  $I=0.7\text{A}$  ;  $\text{pH}=7$  ;  $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 3.5\text{mg/l}$ . les résultats sont représentés dans le tableau suivant IV. 6. (voir annexe)



**Figure IV.13 :** Effet de la concentration initial du polluant sur l'efficacité du procédé (pH 7, 40 ppm,  $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 3.5 \text{ mg/l}$ ,  $i = 0.7\text{A}$ ).

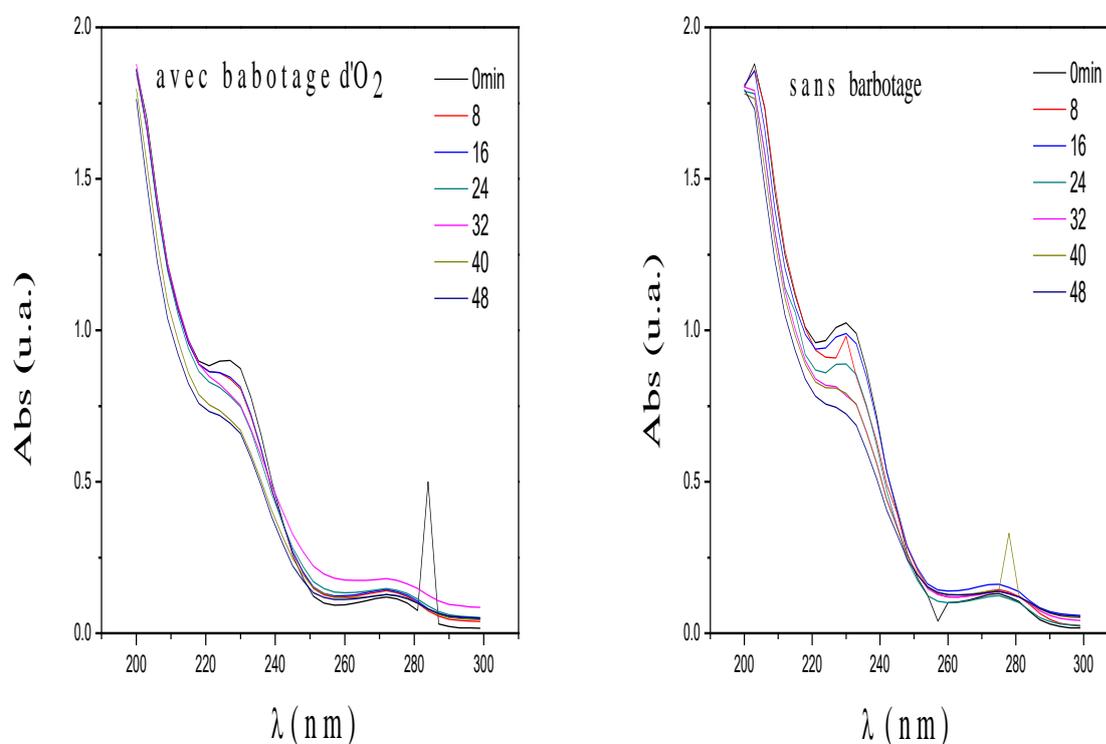


**Figure IV.14 :** Effet de la concentration initial du polluant sur l'EESC et la minéralisation de l'amoxicilline (pH 7, 40 ppm,  $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 3.5 \text{ mg/l}$ ,  $i = 0.7A$ ).

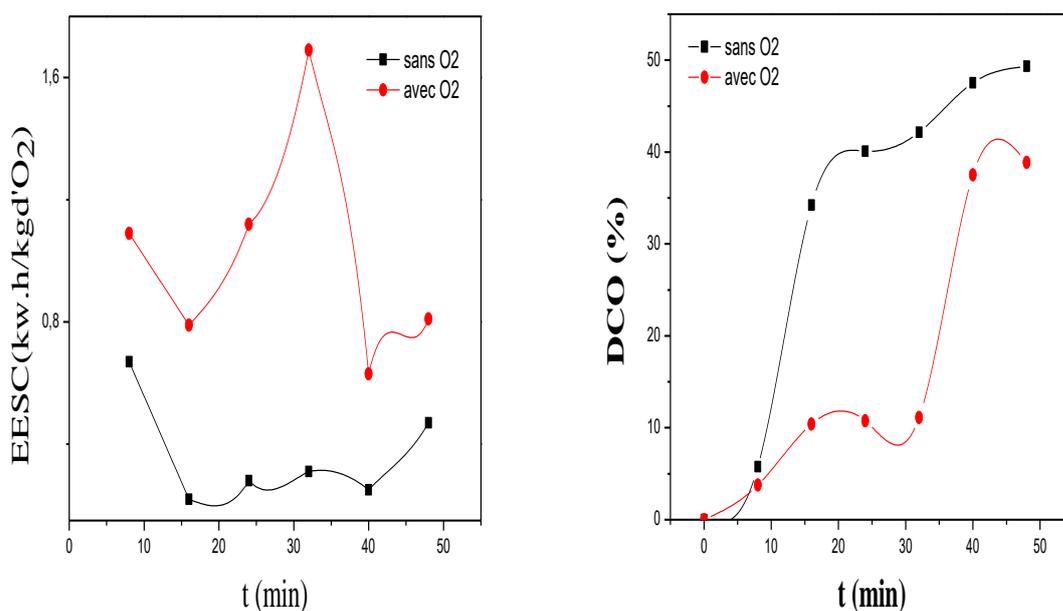
La figure IV. 13-14, montrent une rapide dégradation et élimination du polluant à 40 ppm, avec 50% de minéralisation et un cout énergétique le plus faible de 0.47 kw.h/kgd'O<sub>2</sub>. Les résultats montrent aussi que les rendements de dégradation et de minéralisation diminuent avec l'augmentation de la concentration du polluant. Ceci s'explique par le fait que pour des conditions opératoires données, la quantité d'entités oxydantes, notamment les hydroxydes de fer, peut être considérée « inchangée ». En revanche, plus la concentration en polluant est élevée, plus elle nécessitera de plus grandes quantités d'oxydants pour sa dégradation. De plus, la vitesse de dégradation des intermédiaires pouvant être plus faible que celle de l'Amoxicilline, et comme la concentration des sous-produits augmente avec la concentration initiale du polluant, ceci se traduit par une diminution de la vitesse de dégradation et donc du temps nécessaire à la minéralisation. Ceci se traduit bien par les résultats obtenus qui montrent des taux de minéralisation plus faibles que ceux de la dégradation [76], lors de l'oxydation de fortes concentrations de composés organiques, l'anode peut être saturée et diminuer l'adsorption des espèces, et ainsi inhiber la libération des électrons. De ce fait, l'oxydation directe sur la surface de l'anode et la production de coagulant sont inhibés. Par ailleurs les molécules organiques qui peuvent adhérer à la surface sont plus susceptibles d'être oxydées. Ce résultat est en accord avec ceux que nous obtenons, puisque l'énergie consommée croît avec l'augmentation de la concentration en Amoxicilline [77].

## IV. 6. Effet de l'oxygène dissout sur l'efficacité du procédé

Pour étudier l'influence de l'oxygène dissout sur les cinétiques de dégradation et de minéralisation de l'Amoxicilline par l'EC, nous avons mené une expérience avec les mêmes conditions expérimentales que précédemment avec en plus un barbotage d'O<sub>2</sub> à l'aide d'une pompe utilisée dans les aquariums et qui permet le pompage de l'air à différentes débits. Un faible débit est utilisé pour ne pas trop perturber la solution et favoriser le contact coagulant/polluant. Les résultats sont regroupés dans la Tableau IV. 7. (voir annexe)



**Figure IV.15 :** Effet de l'oxygène dissout sur l'efficacité du procédé (pH 7, 40 ppm, [Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]= 3.5 mg/l, i= 0.7A).



**Figure IV.16 :** Effet de l'oxygène dissout sur l'EESC et l'abattement de la DCO (pH 7, 40 ppm,  $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 3.5 \text{ mg/l}$ ,  $i = 0.7\text{A}$ ).

Les figures IV. 15 et 16 montrent que le barbotage de l'air comprimé n'a pas vraiment affecté la cinétique de la réaction, et le rendement obtenu après le barbotage d'oxygène est relativement faible (39%) comparant ces chiffres avec le rendement obtenu en absence d'oxygène (50%).

Non seulement le rendement est faible, mais le coût énergétique est presque deux fois plus grand par rapport aux expériences menés dans les mêmes conditions sans barbotage préalable (0.4 kw.h/kg d'O<sub>2</sub>).

#### IV. 7. Application du procédé d'électrocoagulation sur un rejet réel

La dernière partie de cette étude a consisté à appliquer les conditions optimisées déterminées précédemment sur un rejet réel (pharmaceutique).

On dissout 3.5mg/l de sulfate de sodium dans un litre de la solution à traiter (la solution contient un rejet pharmaceutique de composition inconnue). Les résultats sont représentés sur le tableau. (Voir annexe)

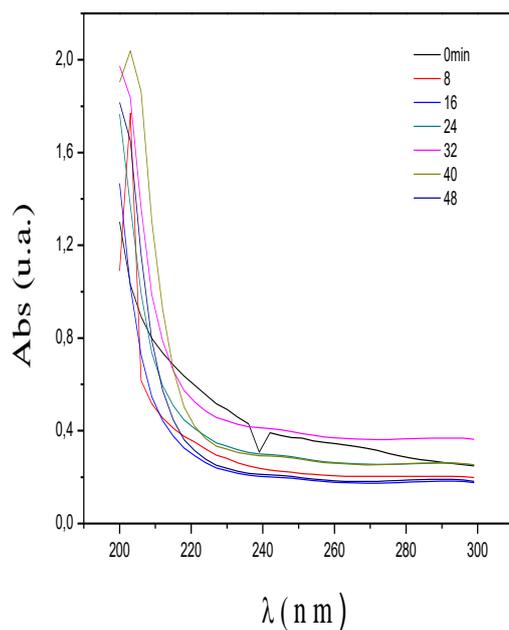


Figure IV.17 : Effet des paramètres optimisés sur la dégradation du rejet réel (pH 7, 40 ppm,  $[Na_2SO_4]= 3.5$  mg/l,  $i= 0.7A$ )

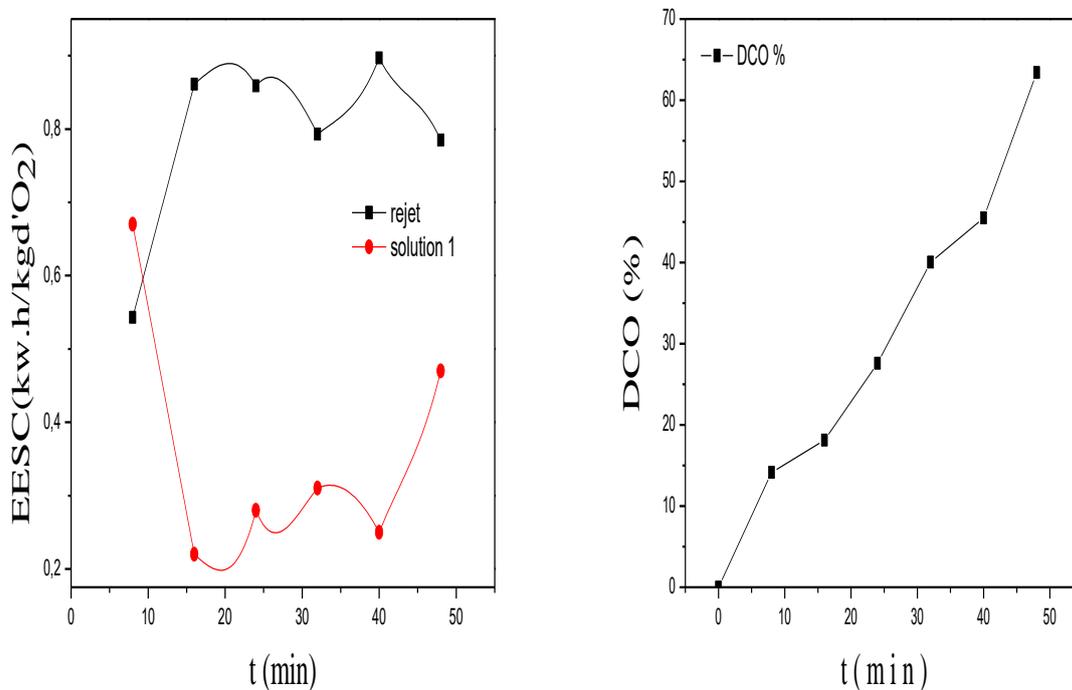


Figure IV.18 : Effet des paramètres optimisés sur l'EESC et l'abattement de la DCO du rejet réel (pH 7, 40 ppm,  $[Na_2SO_4]= 3.5$  mg/l,  $i= 0.7A$ ).

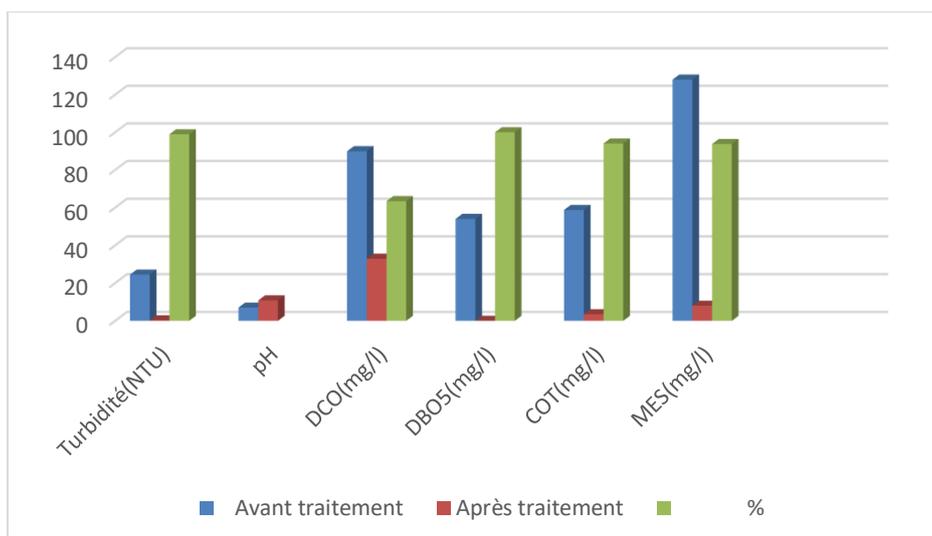
Les valeurs de l'EESC et de la DCO obtenus montrent que le procédé électrochimique de traitement était efficace et les conditions prise (0.7 A, pH=7 et 3.5 g/l en Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) ont dégradé efficacement le rejet traité.

Par rapport à l'amoxicilline, nous constatons une augmentation significative dans le rendement avec une valeur de 64% versus 50% pour l'amoxicilline.

Nous constatons aussi que les consommations d'énergie par masse de DCO éliminée, croient considérablement avec le temps. De ce fait, EESC =0.78 kw.h/kgd'O<sub>2</sub> DCO éliminée peut être considérée comme énergie optimale au traitement, avec des taux d'abattement de DCO élevé.

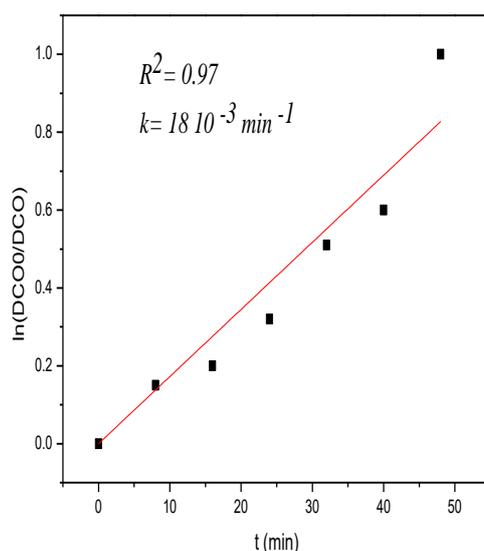
**Tableaux IV. 10.** Caractéristiques du rejet réel avant et après traitement

Initial		Final	Rendement
Turbidité (NTU)	24,48	0,26	98,93
pH	7	10,82	
COT (mg/l)	58,7	3,5	94,03
DBO <sub>5</sub> (mg/l)	54	0	100
MES (mg/l)	128	8	93,75



**Figure IV.19 :** Evolution des différents paramètres de pollution du rejet réel après 48min du traitement (pH 7, 40 ppm,  $[Na_2SO_4]= 3.5 \text{ mg/l}$ ,  $i= 0.7A$ ).

Les résultats d’analyses effectuées sur le rejet réel avant et après traitement montrent que pratiquement tous les paramètres mesurés sont largement en dessous des normes algériennes. En outre, l’électrocoagulation est très performante pour l’élimination des rejets industriels chargés en substances pharmaceutiques récalcitrantes et les matières en suspensions, avec une cinétique très rapide. Les résultats obtenus sont présentés dans le graph ci-dessus figure (IV.20).



**Figure. 20.** Cinétique de minéralisation du rejet réel

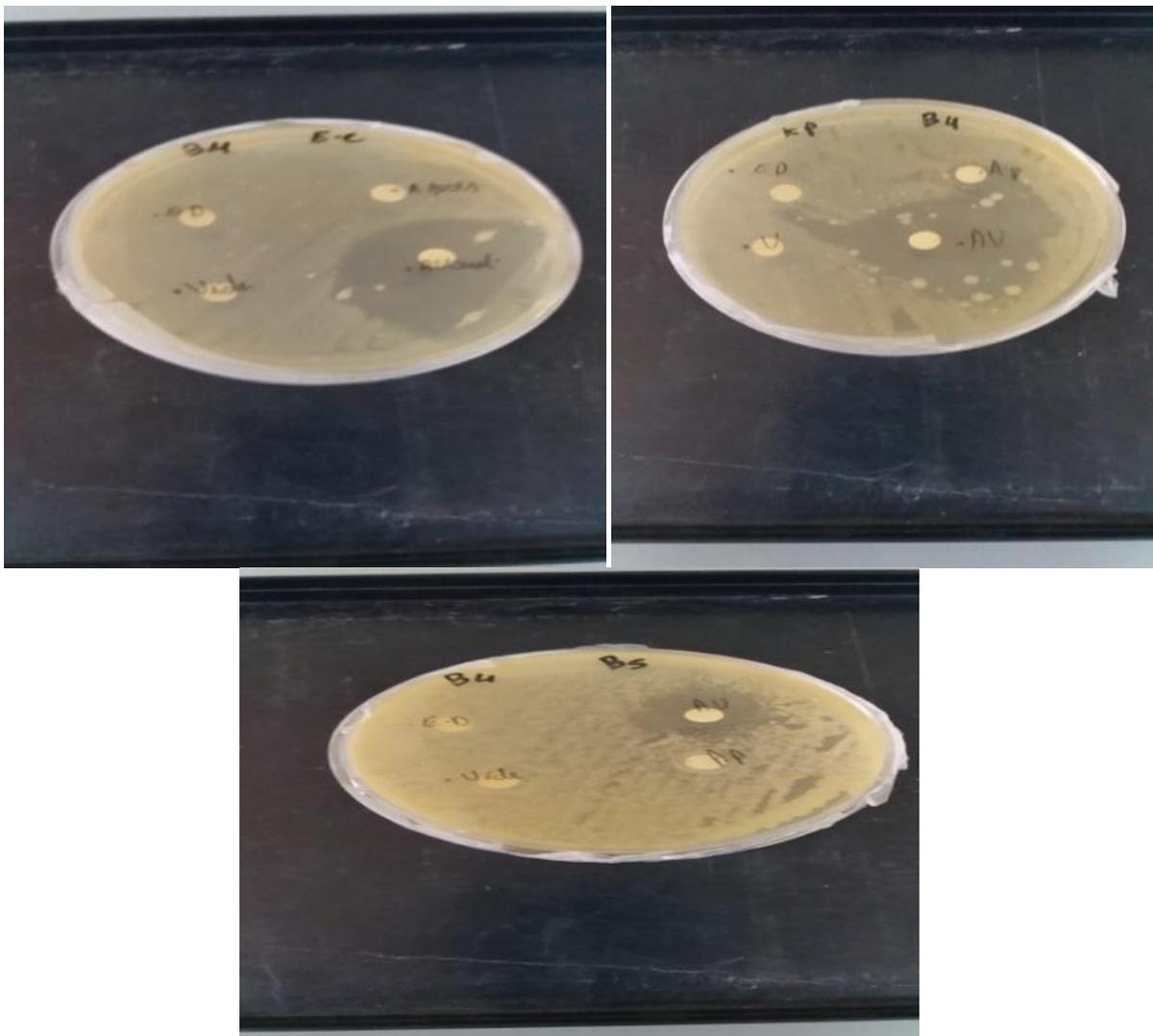
D'après Figure VI. 20, la minéralisation est pseudo-premier ordre avec constante cinétique de l'ordre de  $18 \cdot 10^{-3} \text{ min}^{-1}$  et un coefficient de corrélation de 0.97. Il est possible aussi de déterminer  $t_{(1/2)}$  de la réaction étudiée suivant l'équation IV. 5 :

$$t_{\frac{1}{2}} = \frac{\text{Ln}2}{k} \quad \text{Équation IV.6}$$

Le temps de demi-vie  $t_{1/2}$  est le temps nécessaire pour minéraliser 50 % de la matière organique. Dans notre cas, il est estimé à environ 38.5 min.

#### IV. 8. Tests microbiologiques

La croissance est montrée sur la figure IV. 21 :



**Figure IV. 21.** Croissance des bactéries (*Escherichia coli*, *klebsiella pneumoniae* et *Bacillus subtilis*) en présence des effluents traités et non traités. (T (eau distillée), DV (disque vide), AVT (avant traitement), APT (après traitement)).

Nous observons d'après la figure IV.21, que le rejet avant traitement a fortement inhibé la croissance des trois bactéries *Escherichia coli*, *Bacillus subtilis* et *Klebsiela pneumoniae*.

La zone d'inhibition de *E. coli* est *Klebsiela pneumoniae* sont plus importante que celle de *Bacillus subtilis*, ce qui signifie que la bactérie *Bacillus subtilis* résiste mieux à la toxicité du rejet que les bactéries d'*E. Colie* et *Klebsiela pneumoniae*. Cependant, comme pour le témoin, pour le rejet traité nous n'observons aucune zone d'inhibition. Cela signifie que le rejet traité ne contient aucune substance toxique pouvant inhiber la croissance. Ce résultat traduit encore une fois l'efficacité du procédé d'EC pour le traitement du rejet pharmaceutique Ces résultats sont conformes à ceux obtenus par Sahmi et al [55].

Conclusion général  
**Conclusion général**

### Conclusion générale

Avec le développement rapide de l'industrie moderne, la pollution de l'environnement est devenue de plus en plus dangereuse en raison des déchets industriels, en particulier de l'industrie pharmaceutique, qui nuisent à l'environnement et à la santé humaine.

A la lumière des résultats obtenus, nous pouvons conclure que les effluents de Sidal constituent une contrainte environnementale qui se manifeste par un rejet en polluants récalcitrants. De par leur simplicité d'installation, leur coût moins élevé, la possibilité d'un contrôle automatique et l'élimination des problèmes de manutention des réactifs, l'application des procédés électrochimiques dans le traitement des rejets pharmaceutiques sont devenus plus avantageux. Ces derniers accordent une place de choix aux composés aromatiques et hydrophobes.

Au cours de ce travail, nous avons démontré que l'élimination de substance pharmaceutique (Amoxicilline) par électrocoagulation est possible. Quels que soient les paramètres étudiés (intensité de courant, nature du matériau constituant l'électrode, le pH initial, la concentration et la nature de l'électrolyte, la distance inter-électrodes), l'abattement de la DCO, MES, DBO<sub>5</sub>, du COT et de la turbidité, au cours du temps, ont des allures similaires et augmentent régulièrement avec le temps.

L'électrocoagulation de l'effluent réel (rejet Sidal de Médéa) a permis d'obtenir une élimination de l'ordre de 99, 95, 100, 94 et 64 % respectivement de la turbidité, du COT, du DBO<sub>5</sub>, MES et de la DCO, et qui correspondent à des valeurs finales de 0.26 NTU, 3.5 mg/L, 0 mg/L, 8 mg/L et 32 mg/L (valeurs inférieures aux normes de rejet) avec une consommation d'EESC = 780 kw.h/m<sup>3</sup> et de densité de 0.046 A/cm. Quant au test microbiologique, celui-ci traduit la performance du procédé.

Enfin, cette étude a montré l'intérêt et l'avantage de l'électrocoagulation pour le traitement des rejets industriels concentrés en substances pharmaceutiques avec des taux d'abattement significatifs des paramètres de pollution. Néanmoins, ce travail est loin d'être achevé et il serait intéressant d'approfondir la recherche dans ce domaine. L'électrocoagulation qui semble être une technique très séduisante par sa facilité d'emploi nécessite d'être exploitée pour d'autres applications en considérant d'autres types d'électrodes. Le courant électrique continu est généralement utilisé pour les procédés électrochimiques mais l'utilisation du courant alternatif peut être très avantageux économiquement. Des modèles mathématiques de ces processus doivent être trouvés afin d'automatiser ces systèmes si l'on souhaite leur application en milieu industriel.

## Perspective

- ✓ Utilisation du gaz  $H_2$  dégagé ou court d'électrocoagulation pour la production d'électricité .
- ✓ Recherche des nouveaux techniques par couplage l'électrocoagulation avec des autre méthodes pour amélioré le rendement.
- ✓ Utilisation des autres électrodes.

# Références bibliographiques

## Références bibliographiques

## Références bibliographiques

---

- [1] Pépin JM, mai 2006 :« Impacts écotoxicologiques 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>.
- [2] Gielen D et al, Bennaceur K, Tam C, 2008 : « IEA Petrochemical Scenarios for 2030-2050 : Energy Technology perspectives», International Technology Agency, Paris, France.
- [3] Hilton MJ et al, Thomas KV, Ashton D, 2003: « Targeted monitoring programme for pharmaceuticals in the aquatic environment ». R&D Technical Report P6-012/06/TR, UK Environment Agency, Bristol, UK.
- [4] Halling-Sørensen B, Nielsen N, Lanzky PF, Ingerslev F, Holten-Lützhøft, Jørgensen SE (1998) *Chemosphere*, 36:357-393.
- [5] Bensaid J, Contribution à la dépollution des eaux usées par électrocoagulation et par adsorption sur des hydroxydes d'aluminium, Thèse de Doctorat d'état (2009), Université Mohammed 5-Agdal, Maroc.
- [6] Tixier, C., Singer, H., Oellers, S., ET Muller, S., 2003. Occurrence and fate of carbamazepine, clofibric acid, diclofenac, ibuprofen, ketoprofen and naproxen in surface waters. *Environment Science Technology*.
- [7] Bennajah M, traitement des rejets industriels liquide par électrocoagulation/électroflottation en réacteur airlift, Thèse de Doctorat d'état (2007), Institut National Polytechnique de Toulouse.
- [8] Meinck F, Stooff H, Kohlschutter H, Les eaux résiduaires industrielles, 2ème édition MASSON (1977).
- [9] Goubakha N, décontamination des eaux contenant les colorants textiles et les adjuvants par des matériaux naturels et synthétique, Mémoire de magister(2011), Université Mouloud Mammeri, Tizi-Ouzou.
- [10] Martineau G.-P, Maladies d'élevage des porcs, France agricole éditions, (1997).
- [11] Sahmi. A, Application du procédé d'électrocoagulation pour le traitement des rejets liquides des raffineries de pétrole. N0 d'ordre:06/201-M/GP
- [12] Molander L., Agerstrand M., Ruden C., 2009. WikiPharma – A freely available, easily accessible, interactive and comprehensive database for environmental effect data for pharmaceuticals. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 55, pp 367-371.

## Références bibliographiques

---

- [13] Montague P., 1998. Drugs in the water. Rachel's. Environment1Health Weekly # 614. Disponible. <http://www.monitor.net/rachel/614.html>, 05/04/2001.
- [14] Gaudy, C., Buxeraud, J. (2005). Antibiotiques : pharmacologie et thérapeutique. Paris Gregg Colin. 269p.
- [15] Guindo, A. (2008). *Etude prospective de la prescription et de la consommation des antibiotiques dans le centre de santé de référence de la commune III district de Bamako*. Travail de diplôme en vue de l'obtention du diplôme doctorat, Médecine de pharmacie, Université de Bamako, 45p.
- [16] (Pharmacopée européenne, 2013).
- [17] C. Sichel, J. Blanco, S. Malato, P. Fernández-Ibáñez, Effects of experimental Conditions on *E. coli* survival during solar photocatalytic water disinfection, Journal of Photochemistry and photobiology A: Chemistry 189 (2007) 239-246.
- [18] W.H. Glaze, Drinking water treatment with ozone, Environmental Science & Technology 21 (1987) 224-230.
- [19] K. Azrague, S. W. Osterhus, J. G. Biomorgi, Degradation of PCBA by catalytic ozonation in natural water, Water Science and Technology 59 (2009) 1209-1217.
- [20] R. Andreozzi, V. Caprio, A. Insola, R. Marotta, Advanced oxidation processes (AOP) for water purification and recovery, Catalysis today 53 (1999) 51-59.
- [21] Chaufer B., Rabiller-Baudry M., Guihard L., Daufin G. (1996), Rétention of ions in nanofiltration at various ionic strength .Desalination 104 37-46.
- [22] Wijmans J.G., Baker R.W. (1995). The solution-diffusion model : a review J.Membr. Sci. 107 1-21.
- [23] Dhaouadi H, (2008), Traitement des eaux usées urbaines, les procédés biologiques d'épuration. Thèse, Université Virtuelle de Tunis, 34 p.
- [24] J.Vandegans, A.M.Kersabiec et M.Hoenig. 1997 « spectroscopie d'absorption atomique » techniques de l'ingénieur, p2825

## Références bibliographiques

---

- [25] M.K.Sahu, S.Mandal, S.Saswati, P.Badhai, R.K.Patel, 2013 «Removal of Pb(II) from aqueous solution by acid activated red mud», *Journal of Environmental Chemical Engineering* 1, p1315–1324
- [26] K.Bellir, M.B.Lehocine et A.H.Meniai, 2013 «Zinc removal from aqueous solutions by adsorption onto bentonite», *Desalination and Water Treatment*, p5035- 5048
- [27] B.Guo, F.Deng, Y.Zhao, X.Luo, S.Luo, C.Au, 2013 «Magnetic ion-imprinted and– SH functionalized polymer for selective removal of Pb(II) from aqueous samples», *Applied Surface Science*, p1-39
- [28] Harries. JT, US patent n°937210(19 Institut national de la recherche scientifique, centre eau, terre et environnement, université du québec 490, rue de la couronne, Québec. (QC) 1909).
- [29] Matteson. M.J, Dobson. R.L, Glenn. R.W, Kukunoor. N.S, Clayfield. E.J, Electrocoagulation and separation of aqueous suspensions of ultrafine particles, *Colloids and Surfaces, Physicochemical and Engineering Aspects*. 104 (1995), 101-109.
- [30] Moreno, H. A., Cocke, D. L., Gomes J.A.G., Morkovsky, P., Parga, J.R., Peterson, E. E., Garcia, C. (2007). Electrochemistry behind electrocoagulation using iron electrodes. *ECS Transactions*. 6. 1-15.
- [31] Larue, O., Vorobiev, E., Vu, C., Durand, B. (2003). Electrocoagulation and coagulation by iron of latex particles in aqueous suspensions. *Sep. Purif. Technol.* 31, 177– 192.
- [32] Kannan, N., Karthikeyan, G., Tamilselvan, N. (2006). Comparison of treatment potential of electrocoagulation of distillery effluent with and without activated Areca catechu nut carbon, *Journal of Hazardous Materials B* 137, 1803-1809.
- [33] Persin, F., Rumeau, M. (1989). Le traitement électrochimique des eaux et des effluents, *tribune de l'eau*, 42, 539, 45-56.
- [34] Essadki, A.H., Bennajah, M., Gourich, B., Ch. Vial, Azzi, M., Delmas, H. (2007). Electrocoagulation/electroflotation in an external-loop airlift reactor-Application to the decolorization of textile dye wastewater: a case study, *Chemical Engineering process*. In press April.
- [35] Zhu, B., Clifford, D.A., Chellam, S. (2005). Comparison of electrocoagulation and chemical coagulation pre-treatment for enhanced virus removal using microfiltration, *Water Research* 39. 3098-3108.

## Références bibliographiques

---

- [36] PATERMARAKIS and FOUNTOUKIDIS E (1990) Disinfection of water by electrochem electromagnetic fields khimiya i tehnologiya Vody, 5, 3, 248 – 251
- [37] Bureau, M-A. (2004). Stabilisation et traitement électrochimique des boues d'épuration municipales et industrielles. Thèse pour l'obtention d'un grade de maitre en science. Université du Québec Institut national de la recherche scientifique Eau. Terre et Environnement. Pp.107.
- [38] Holt, P.K., Barton, G.W., Wark, M., Mitchell, C.A. (2002). A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, Colloids Surface. A 221. 248-223.
- [39] Martinez, F. (2007). Tratamiento de aguas residuales industriales mediante electrocoagulation y coagulation conventional. Memoria al grade de doctor oningenerate química. p258
- [40] Kobya, M., Bayramoglu, M. (2003). Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminium electrodes, Journal of Hazardous Materials B 100. 163-178
- [41] Murugananthan, M., Bhaskar, R., Prabhaskar, S. (2004). Separation of pollutants from tannery effluents by electroflotation. Separation and Purification Technology. 69-75.
- [42] Scott, K., Jachuck, R.J., Hall, D. (2001). Cross flow micro-filtration of water-in-oil Emulsion using corrugated membranes. Sep. Purif. Technol, 22-23 431-441.
- [43] Merzouk B., Gourich B., Madani K., Vial Ch., Sekki A., Removal of a disperse red dye from synthetic wastewater by chemical coagulation and continuous electrocoagulation: A comparative study, Desalination, 272 (2011) 246-253.
- [44] Pretorius, W. et al. / Water South Africa, 17(2) (1991) 133-138.
- [45] K. Rajeshwar et al. / Journal of Applied Electrochemistry, 24(11) (1994) 1077-1091.
- [46] Casqueira, R G., Torem, M L., Kohler, H M. (2006). The removal of zinc from liquid streams by electroflotation. Minerals Engineering. 1388 – 1392.
- [47] Mollah, M.Y.A., Schennach, R., Parga, J.R., Cocke, D.L. (2001). Electrocoagulation – science and application. Journal of Hazardous Materials B 84, 29-41.

## Références bibliographiques

---

- [48] Zongo, I. (2009). Etude expérimentale et théorique du procédé d'EC: Application au traitement de deux effluents textiles et d'un effluent simulé de tannerie. Thèse de doctorat. Institut national polytechnique de Lorraine.INP : NANCY. P.224.
- [49] Tsouri C., DePaoli D W., Shor J T., Hu M Z-C., Ying T-Y. (2001). Electrocoagulation for magnetic seeding of colloidal particles. *Colloids Surface;a: Physicochemical Engineering Aspects* 177: 223-233.
- [50] Jiang, J Q., Graham, N., André, C., Kelsall, G. H., Brandon, N. (2002). Laboratory study of electro-coagulation-flotation for water treatment. *Water resource*.36 : 4064- 4078.
- [51] Chen, C. M., Lu, C-H., Chang, C-H., Yang, Y-M., Mua, J-R. (2000). Influence of pH on the Stability of Oil-in-Water Emulsions Stabilized by a Splittable Surfactant, *Colloids Surf. A: Physicochem.* 19 65-76.
- [52] Ciorba, G., Radovan, C., Vlaincu, I., Pitulice, L. (2000). Correlation between organic component and electrode material: consequences on removal of surfactants from wastewater. *Electrochemical Acta* 303-297, (3-2) 46.
- [53] Murphy, O.J., Hitchens, D.G., Kaba, L., Verostko, C.E. (1992). Direct electrochemical oxidation of organic for wastewater treatment. *Water Resource* 26 (4). 443-451.
- [54] Johansson, I., Pavasars, I., Borén, H., Allard, B. (2000). Analysis of water leachable organic components in incineration residues. *Journal of Environment. An. Ch.*, 78, 305-313.
- [55] Sahmi, A. Dégradation et minéralisation d'une molécule organique phénolique par la technique de l'électrophotocatalyse. N0 d'ordre: 02/201-D/GP.
- [56] Nafaa, A., Lotfi, M. (2004). Decolourization and removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by electrocoagulation, *Chemical Engineering and Processing*, 43, 1281-1287.
- [57] Feng Qi-yan, LI Xiang-dong, Cheng Yu-jie, Meng Lei, Meng Qing-jun. (2007). Removal of Humic Acid from Groundwater by Electrocoagulation, *J China Univ Mining & Technology*, 17, 513 – 515.
- [58] Modirshahla, N., Behnajady, M.A., Kooshaiian, S. (2007). Investigation of the effect of different electrode connections on the removal efficiency of Tartrazine from aqueous solutions by electrocoagulation, *Dyes and Pigments*, 74, 249-257.

- [59] Kamaraj, R., Vasudevan, S. 2014. Evaluation of electrocoagulation process for the removal of strontium and cesium from aqueous solution, *Chemical Engineering Research and Design* (2014),<http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.03.021>
- [60] Holt, P.K., Barton, G.W., Mitchell, C.A. 2005. The future of electrocoagulation as a localised water treatment technology. *Chemosphere*, 355-367
- [61] Wang C-T, Chou W-L, Kuo Y-M. 2009. Removal of COD from laundry wastewater by electrocoagulation-electroflotation. *J.Haz.Mat.* 164: 81-86.
- [62] Ahlawat, R., Srivastava, V.C., Mall, I.D., Sinha, S. (2008). Investigation of the electrocoagulation treatment of cotton blue dye solution using aluminum electrodes, *Clean.* 36: 863-869.
- [63] Khemis, M., Leclerc, J.P., Tanguy, G., Valentin, G., Lopicque, F. (2006). Treatment of industrial liquid wastes by electrocoagulation. Experimental investigations and an interpretation model, *Chem. Eng. Sci*, 61, 3602 - 3609.
- [64] Do, J.S., Chen, M.L. (1994). Decolorization of dye-containing solutions by electrocoagulation, *J. Appl. Electrochem.* 24 785–790.
- [65] Vik, E. A., Carlson, D. A., Eikum, A. S., Gjessing, E. T. (1984). Electrocoagulation of potable water, *Water. Res.*, 18 (11), 1355-1360.
- [66] Chen, G. (2004). Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology* 38. 41-11.
- [67] Ait Ouaisa, Y., Chabani, M., Amrane, A., Bensmaili, A. (2014). Removal of tetracycline by electrocoagulation: Kinetic and isotherm modeling through adsorption, *Journal of Environmental Chemical Engineering* 2 177–184
- [68] Wei-Lung Chou, Chih-Ta Wang, Kai-Yu Huang. (2009). Effect of operating parameters on indium (III) ion removal by iron electrocoagulation and evaluation of specific energy consumption. *Journal of Hazardous Materials* 167 467–474.
- [69] Daneshvar, N., Khataee, A.R., Ghadim, A.R.A., Rasoulifard, M.H. (2007). Decolorization of C.I. Acide yellow 23 solution by electrocoagulation process: Investigation

## Références bibliographiques

---

of operational parameters and evaluation of specific electrical energy consumption (SEEC), *Journal of Hazardous Materials* 148, 566-572.

[70] Alaton- Arslan. I, Kabdasli. I, Hanbaba. D, Kuybu. E, Electrocoagulation of a real reactive dyebath effluent using aluminum and stainless steel electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, 150 (2008), 166–173.

[71] Heidmann, I., Calmano, W. (2007).Removal of Cr (VI) from model wastewaters by electrocoagulation with Fe electrodes, *Separation. Purification. Technology.* 61, 15–21.

[72] Heidmann, I., Calmano, (2008). Removal of Zn (II), Cu(II), Ni(II), Ag(I) and Cr(VI) present in aqueous solutions by aluminium electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, 152, 934–941

[73] Kabdas. I, Arslan. T, Ölmez-Hanc. T, Arslan-Alaton. I, Tünay. O, Complexing agent and heavy metal removals from metal plating effluent by electrocoagulation with stainless steel electrodes *Journal of Hazardous Materials*, 165 (2009), 838–845.

[74] Tezcan. U, , Koparal, A. S, Ogutveren.U. B, Hybrid processes for the treatment of cattle-slaughterhouse wastewater using aluminum and iron electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, 164 (2009), 580–586.

[75] Thiam, A., Zhou, M., Brillas, E., Sires, I. (2014). Two-step mineralization of Tartrazine solutions: Study of parameters and by-products during the coupling of electrocoagulation with electrochemical advanced oxidation processes, *Applied Catalysis B: Environmental* 150– 151 116– 125

[76] Arana J., Martinez Nieto JL, Herrere Melian JA, Dona Rodriguez JM, Gonzalez Diaz O, Perez Pena J, Bergasa O, Alvarez C, Mendez J (2004) *Chemosphere*, 55:893-904.

[77] Krysa J, Keppert M, Jirkovsky J, Stengl V, Subrt J (2004) *Materials Chemistry and Physics*,86:333-339.

## Références bibliographiques

---