

Université Mohamed Khider – Biskra  
Faculté des Sciences et de la technologie  
Département : Génie civil et hydraulique  
Ref :.....



جامعة محمد خيضر بسكرة  
كلية العلوم و التكنولوجيا  
قسم: الهندسة المدنية والري  
المرجع:.....

Thèse présentée en vue de l'obtention  
du diplôme de

**Doctorat en : HYDRAULIQUE**

**Spécialité (Option) : Hydraulique Urbaine**

**Possibilité d'élimination des colorants par  
coagulation - floculation. Effet des paramètres  
réactionnels**

Présentée par :

**Goudjil Sarah**

Soutenue publiquement le : 22 / 11 / 2023

**Devant le jury composé de :**

Dr. Youcef Leila	Professeur	Président	Université de Biskra
Dr. GUERGAZI Saadia	Professeur	Rapporteur	Université de Biskra
Dr. MASMOUDI Toufik	MCA	Co-Rapporteur	Université de Biskra
Dr. Mimeche Leila	MCA	Examineur	Université de Biskra
Dr.Sekiou Fateh	MCA	Examineur	Université Oum El Bouaghi
Dr.Koussa Miloud	MCA	Examineur	Centre Universitaire de Mila

## Résumé

Les colorants représentent un élément très important dans l'industrie textile, cosmétique, papier, cuir, pharmaceutique, agroalimentaire et autres. Vu que, la production et l'utilisation des colorants résultent des rejets chargés provoquent des effets indésirables, sur la santé humaine, l'environnement et dans le but de protéger notre milieu, nous avons essayé d'étudier les performances du procédé de la coagulation-floculation, par deux coagulants souvent utilisés au traitement des eaux, qui sont le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique sur l'élimination des colorants synthétiques. Différents paramètres réactionnels ont été également vérifiés, tels que, la dose du coagulant, pH, teneur initiale des colorant et l'effet de adjuvants. Pour les colorants, notre choix est opté pour trois colorants de différentes charges (**Méthyle Violet (MV)**, **Rouge Congo (RC)** et **Vert Brillant(VB)**), dans des solutions synthétiques (système simple et binaire) et sur la décoloration de deux différents types d'eaux usées résiduaires. Il s'agit d'une eau résiduaire synthétique collectée au niveau du Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (**LARHYSS**), de l'Université de Biskra et une autre provienne d'un rejet d'une unité de production de peinture (Barika, W Batna).

En premier lieu, dans le système simple, les meilleurs rendements d'élimination ont été obtenus par le **RC** aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique. Alors que, le **MV** est le moins éliminé dont les rendements n'ont pas dépassé **35 %** pour les deux coagulants testés. Les rendements d'élimination augmentent avec l'augmentation des concentrations initiales des colorants. Le pH optimal du traitement a indiqué aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique que, l'élimination maximale du **MV** a été obtenue à pH acide (pH = 2) et basique (pH = 10). Le **VB** a été éliminé avec un taux d'abattement important aux pH égal à 8 et 10. Parallèlement aux **VB** et **MV**, les meilleures performances en terme d'élimination de la couleur pour le **RC** ont été atteintes à des pH compris entre 4 et 6. L'ajout des adjuvants (le Charbon actif en poudre, la Chaux et le Polymère) en présence des doses optimales de chaque coagulant améliore les rendements d'élimination encore mieux dont l'efficacité était maximale dans certaines doses d'adjuvants cependant, il faut prendre en considération l'effet indésirable de la chaux sur l'augmentation des pH des solutions traitées.

En deuxième lieu, dans le système binaire, l'efficacité d'élimination des colorants (**MV-VB**) diminue en comparaison avec celle dans le système simple, alors que leur élimination augmente en présence du colorant anionique **RC** dans les systèmes (**MV-RC**) et (**VB-RC**). Tandis que l'élimination du **RC** diminue en présence de **MV** et **VB**. L'élimination de **MV-VB** augmente avec l'augmentation des teneurs initiales, cette dernière engendre une diminution des rendements dans le système **VB-RC**. Dans ce système binaire, le pH optimal du traitement est obtenu pour les milieux acides dont les pH allant de 2 à 4 et pour des pH proche de la neutralité (pH entre 5.3 (pH du milieu) et 6). Suite à l'ensemble de nos résultats, l'application de la modélisation a été effectuée par l'utilisation du logiciel statistique Design Expert (**RSM**) dont les modèles empiriques ont été significatifs. L'amélioration des résultats est possible en les optimisant par ce logiciel.

En troisième lieu, l'application du procédé de la coagulation-floculation aux eaux résiduaires pour l'élimination du **RC**, **MV** et **VB** contenus dans ces eaux, a permis d'aboutir à une efficacité de traitement supérieure à **50%**, aussi bien pour le sulfate d'aluminium que celui pour le chlorure ferrique. Le pH optimal du traitement des eaux résiduaires spécifiquement pour le **MV** et le **VB** est compris entre 6 et 8,28 et que **RC** est très bien éliminé dans les différents milieux de pH. L'ajout des adjuvants a amélioré les rendements d'élimination/décoloration qui ont atteint **99%**. Les taux d'abattements de la **DCO** et la turbidité des eaux résiduaires ont varié selon les paramètres réactionnels étudiés.

**Mots clés :** Coagulation-Floculation, Colorants, Sulfate d'aluminium, Chlorure ferrique, Adjuvants, Système simple, Système binaire, Eaux résiduaires, Design Expert (RSM).

## Abstract

Dyes are a very important element in the textile, cosmetics, paper, leather, pharmaceutical, food and other industries. Knowing that, the production and use of dyes result charged waste cause undesirable effects on human health and the environment. In order to protect our environment, we have tried to study the performance of the coagulation-flocculation process, by two coagulants often used in water treatment, which are aluminium sulphate and ferric chloride on the elimination of synthetic dyes. Different reaction parameters were also checked, such as the dose of coagulant, initial pH, initial dye concentration and the effect of coagulants aid. For the dyes, our choice is opted for three dyes of different charges (**Methyl Violet (MV)**, **Congo Red (RC)** and **Brilliant Green (VB)**), in synthetic solutions (simple and binary systems) and on the discoloration of two different types of wastewater. The synthetic wastewater was collected in the Research Laboratory in Subterranean and Surface Hydraulics (**LARHYSS**), University of Biskra and another comes from a discharge of a paint production unit located in Barika, Wilaya of Batna.

First, in the simple system, the best removal efficiencies were obtained by **RC** for both aluminium sulphate and ferric chloride. Whereas, the **MV** is the least eliminated whose yields did not exceed 35% for the two coagulants tested. Removal efficiencies increase with increasing initial dye concentrations. Optimum treatment pH indicated for both aluminium sulphate and ferric chloride that maximum **MV** removal was obtained at acidic (pH = 2) and basic (pH = 10) pH. **VB** had a significant abatement rate at pH equal to 8 and 10. Along with **VB** and **MV**, the best performance in terms of colour elimination for **RC** was achieved at pH between 4 and 6. The addition of coagulants aid (powder activated carbon, lime and polymer) in the presence of optimal doses of each coagulant improves the elimination yields even better, the effectiveness of which was maximum in some doses of coagulants aid, however, it is necessary take into account the harmful effect of lime on the increase of the pH of the treated solutions.

Secondly, in the binary system, the dye removal efficiency (**MV-VB**) decreases in comparison with that in the simple system, while their removal increases in the presence of the anionic dye **RC** in the systems (**MV-RC**) and (**VB-RC**). While the elimination of **RC** decreases in the presence of **MV** and **VB**. The elimination of **MV-VB** increases with the increase in the initial dye concentration, the latter leads to a decrease in yields in the **VB-RC** system. In this binary system, the optimum pH of the treatment is obtained for acidic media whose pH ranges from 2 to 4 and for pH close to neutrality (pH between 5.3 (pH of the medium) and 6). Following all of our results, the application of the modelling was carried out using the statistical software Design Expert (**RSM**) whose empirical models were significant. The improvement of the results is possible by optimizing them with this software.

Thirdly, the application of the coagulation-flocculation process to treat two types of wastewater as well as the elimination of **RC**, **MV** and **VB** found in the wastewater tested is globally higher than **50%**, both for aluminium sulphate and that for ferric chloride. The optimum pH for wastewater treatment as well as for **MV** and **VB** is between 6 and 8.28 and that **RC** is very well eliminated in the different initial pH. The addition of coagulants aid improves the removal/decolourization yields which have reached **99%**. The **COD** reduction rates and the turbidity of the waste waters were influenced and reduced by the parameters studied.

**Keywords:** Coagulation-Flocculation, Dyes, Aluminium sulphate, Ferric chloride, coagulants aid, Simple system, Binary system, Wastewater, Design Expert (RSM).

## ملخص:

تعتبر الملونات عنصرًا مهمًا جدًا في صناعة النسيج ومستحضرات التجميل والورق والجلود، والصيدلة، والصناعات الغذائية، وغيرها. نظرًا لأن إنتاج واستخدام الملونات يؤدي إلى إنتاج مياه مشحونة تسبب آثارًا غير مرغوب فيها على الصحة البشرية والبيئة، ومن أجل حماية بيئتنا، حاولنا دراسة أداء عملية التخثر -التكاثف باستخدام مركبين تخثرين يستخدمان عادة في معالجة المياه وهما كبريتات الألومنيوم وكلوريد الحديد في إزالة الملونات الاصطناعية. تم أيضًا التحقق من مختلف المعلمات التفاعلية، مثل جرعة مركب التخثر، درجة الحموضة، التركيز الأولي للملونات وتأثير المواد المساعدة. بالنسبة للملونات، تم اختيار ثلاثة أصباغ بشحنات مختلفة (ميثيل بنفسجي (MV)، أحمر كونغو (RC) وأخضر لامع (VB)) في محاليل اصطناعية (نظام بسيط وثنائي) وفي تبييض إزالة الألوان من نوعين مختلفين من مياه الصرف الصناعي. تمثل إحدى هذه المياه الصرف الاصطناعي التي تم جمعها من مختبر البحوث في الري الجوفي والسطحي (LARHYSS) بجامعة بسكرة، والأخرى كان مصدرها وحدة إنتاج الدهانات الكائن مقرها في باريكة، ولاية باتنة.

في المجمع، في النظام البسيط، تم الحصول على أعلى كفاءة لإزالة RC سواء بواسطة كبريتات الألومنيوم أو كلوريد الحديد. بينما أقل نسبة إزالة كانت لـ MV حيث لم تتجاوز 35%. لكلا مركبين التخثرين المختبرين. تزداد كفاءة الإزالة مع زيادة التراكيز الأولية للملونات. أظهرت دراسة درجة الحموضة المثلى للمعالجة أن أعلى إزالة لـ MV تم الحصول عليها في الوسط الحمضي (pH = 2) والقاعدي (pH = 10) على حد سواء لكبريتات الألومنيوم وكلوريد الحديد. أظهر الـ VB معدل إزالة مهم عند pH قيمته 8 و 10. جنبًا إلى جنب مع الـ VB والـ MV، تم الحصول على أفضل أداء في إزالة اللون لـ RC عند pH ما بين 4 و 6. يحسن إضافة المواد المساعدة (الفحم النشط المسحوق، الجير والبوليمر) مع وجود الجرعات المثلى لكل مركب تخثري من كفاءة الإزالة بشكل أفضل، على الرغم من نسبة الإزالة المسجلة إلا أنه يجب الانتباه إلى التأثير السلبي للجير على زيادة قيم الحموضة في المحاليل المعالجة.

في النظام الثنائي، تتخفف كفاءة إزالة الأصباغ (MV-VB) بالمقارنة مع النظام البسيط، بينما تزيد إزالتها في حضور الصبغ الأنثوني RC في النظم (MV-RC) و (VB-RC). بينما تتخفف إزالة RC في وجود MV و VB. تزداد إزالة MV-VB مع زيادة التراكيز الأولية، وتؤدي هذه الزيادة في تقليل الكفاءة في نظام VB-RC. في هذا النظام الثنائي، يتم الحصول على درجة الحموضة المثلى للمعالجة في الوسط الحامضي بتراكيز الحموضة من 2 إلى 4 وكذلك في الوسط المحايد (pH بين 5.3 و 6). استنادًا إلى جميع نتائجنا، تم تنفيذ نمذجة باستخدام برنامج Expert Design (RSM).

يعطي تطبيق عملية التخثر - التكاثف في معالجة مياه الصرف الصناعي وإزالة RC و MV و VB الموجودة في المياه الصرف الصناعي نسبة عمومية تفوق 50%، سواء باستخدام كبريتات الألومنيوم أو كلوريد الحديد. درجة الحموضة المثلى لمعالجة مياه الصرف الصناعي وـ MV و VB تتراوح بين 6 و 8.28، في حين يتم إزالة RC بشكل جيد جدًا في الظروف المختلفة لدرجات الحموضة. يحسن إضافة المواد المساعدة كفاءة إزالة/معالجة هذه المياه وتصل إلى 99%. تأثرت نسبة انخفاض الطلب الكيميائي للأوكسجين (DCO) والعاكرة لمياه الصرف الصناعي وتتنخفض بواسطة المعلمات المدروسة.

**الكلمات المفتاحية:** التخثر - التكاثف، الملونات، كبريتات الألومنيوم، كلوريد الحديد، المواد المساعدة، النظام البسيط، النظام الثنائي، مياه الصرف الصناعي، Expert Design (RSM).

# Remerciements

Je tiens à exprimer mes chaleureux remerciements à ma Directrice de thèse, Professeur **GUERGAZI Saadia**, Professeur à l'université de Biskra et directrice du laboratoire **LARHYSS**, d'avoir accepté de m'encadrer tout au long la réalisation de ce travail et qui m'a fait partager l'expérience et le savoir de sa longue carrière dans notre domaine d'étude. Qu'elle soit aussi remerciée pour la confiance qu'elle a fait en moi, pour ses conseils, son orientation ainsi que sa disponibilité permanente à chaque fois que je sollicite son aide.

Je tiens à remercier également Monsieur **MASMOUDI Toufik**, Maître de conférences 'A' à l'université de Biskra, de l'honneur qu'il m'a fait en acceptant d'être un Co-directeur de thèse.

Mes remerciements s'adressent également aux membres du jury. Je remercie vivement **Mme. YUCEF Leila**, Professeur à l'université de Biskra, qu'elle veuille accepter l'expression de mes sincères reconnaissances et ma gratitude pour l'honneur qu'elle me fait en acceptant de présider le jury de soutenance de cette thèse, notamment pour son aide, sa disponibilité et sa gentillesse au laboratoire.

J'adresse mes sincères remerciements à **Mr. SEKIOU Fateh**, Maître de conférences 'A' à l'université d'Oum El-Bouaghi pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de mobiliser le temps et les compétences pour juger mon travail et de participer au jury de soutenance de ma thèse, en qualité d'examineur.

Mes vifs remerciements sont adressés aussi à **Mr. Koussa Miloud**, Maître de conférences 'A' au centre universitaire de Mila pour l'honneur pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de mobiliser le temps et leur compétences pour juger mon travail au tant qu'un examinateur.

Je tiens à remercier vivement **Mme. MIMECHE Leila**, Maître de conférences 'A' à l'université de Biskra pour l'honneur qu'elle me fait en acceptant de juger ce travail et participer au jury de soutenance de cette thèse comme une examinatrice.

Mes vifs remerciements s'adressent aux professeurs **ALGHUITI. A.A.S**, **RADIN. M.S** et **MADUN. A** de l'université d'UTHM-Malaisie pour l'accueil la gentillesse et l'aide qu'ils m'ont offre pendant mon stage de courte durée et pour l'aide précieuse par **Dr.ALSAHARI M.N.A** en apprenant les logiciels RSM, Analyse Bibliographique et Graphpad Prism

Mes sincères remerciement s'adressent également à Mr **SOUAI Azzedine** et le girant de l'unité de production du peinture, Barika wilaya de Batna, de m'avoir aidé en ramenant des échantillons des eaux usées.

Mes remerciements s'adressent aux membres du laboratoire LARHYSS et à toutes les personnes qui m'ont aidé de prés ou de loin à réaliser ce travail.

# *Dédicace*

*En premier lieu je tiens à remercier et dédier ce travail à :*

*Ma chère mère et mon très cher père*

*Mes vifs remerciements et ma profonde gratitude pour leurs soutiens durant mes années d'études. J'espère pourvoir un jour vous rendre un peu de tout ce que vous m'avez apporté. Merci de m'avoir toujours laissé libre de mes choix et de m'avoir soutenu jusqu'au bout ; c'est en grande partie grâce à vous que je suis arrivée là. Votre sagesse sera toujours un exemple pour moi.*

*J'ai l'honneur de dédier cette thèse également à :*

*A ma directrice de thèse, Professeur GUERGAZI Saadia*

*A mes chères sœurs Ahlem et Ritedj*

*A mon cher frère Yazid*

*A mon neveu Fares*

*A tous mes oncles, tantes, cousins et cousines*

*A mes chères proches Copines*

*A tous mes professeurs du primaire à l'université*

*Sarah*

# *Table des matières*

Résumé	
Remerciements	
Dédicaces	
Table des matières	
Liste des abréviations	
Liste des figures	
Liste des tableaux	
Introduction générale	01

## *Première Partie : Synthèse Bibliographique*

### **Chapitre I : Etude bibliographique sur les colorants et les procédés de traitement appliqués**

I.1. Introduction	07
I.2. Les Colorants	08
I.2.1. Définition d'un colorant	08
I.2.2. Historique des colorants	08
I.2.3. Caractéristiques générales des colorants	09
I.3. Classification des colorants	10
I.3.1. Classification chimique	10
I.3.1.1. Colorants azoïques	10
I.3.1.2. Colorants anthraquinoniques	11
I.3.1.3. Colorants indigoïdes	12
I.3.1.4. Colorants xanthènes	12
I.3.1.5. Colorants phtalocyanines	13
I.3.1.6. Colorants nitrés et nitrosés	13
I.3.2. Classification tinctoriale	14
I.3.2.1. Colorants de cuve	14
I.3.2.2. Colorants acides ou anioniques	15
I.3.2.3. Colorant réactifs	16

I.3.2.4. Colorants basiques ou cationiques	16
I.3.2.5. Colorants directs	17
I.3.2.6. Colorants à mordants	17
I.3.2.7. Colorants dispersés appelés aussi plastosolubles	18
I.4. Utilisation et application des colorants	18
I.5. Effluents textiles	19
I.6. Impact des colorants sur la santé humaine et l'environnement	20
I.6.1. Impacts dangereux sur la santé	20
I.6.2. Impacts dangereux sur l'environnement	21
I.7. Situation de l'industrie textile en Algérie	22
I.8. Traitements des rejets textiles	22
I.9. Procédés de traitement des eaux usées de l'industrie textile	23
I.9.1. Coagulation-Floculation	23
I.9.2. Adsorption	24
I.9.3. Filtration membranaire	24
I.9.4. Oxydation	25
I.10. Conclusion	26

## **Chapitre II : Description générale de la Coagulation-floculation et son effet sur l'élimination des colorants**

II.1. Introduction	27
II.2. Différents états des constituants de l'eau	27
II.2.1. Matières en suspension (MES)	27
II.2.2. Colloïdes	28
II.2.3. Matière organique dissoute	28
II.3. Coagulation-floculation	29
II.3.1. Théorie de la coagulation-floculation	29
II.3.2. Théorie de la double couche	30
II.3.3. Potentiel Zêta	32
II.3.3.1. Mesure expérimentale du potentiel Zêta	32
II.3.4. Mécanismes de la coagulation-floculation	32
II.3.4.1. Réduction de l'épaisseur de la couche ionique	33
II.3.4.2. Neutralisation des charges ioniques	33



II.3.4.3. Pontage entre les particules	34
II.3.4.4. Piégeage des particules	35
II.3.5. Réactifs chimique utilisés dans le procédé de la coagulation-floculation	36
II.3.5.1. Coagulants	36
II.3.5.1.1. Rôle du coagulant	37
II.3.5.1.2. Paramètres liés aux choix du coagulant	37
II.3.5.1.3. Caractéristiques des principaux coagulants	37
II.3.5.2. Adjuvants de la coagulation-floculation	38
II.4. Les principaux paramètres influençant le bon fonctionnement de la coagulation floculation	39
II.4.1. Température	39
II.4.2. pH	40
II.4.3. Vitesse d'agitation et temps de floculation	41
II.4.4. Dose du coagulant	42
II.4.5. Turbidité de l'eau	43
II.4.6. Influence de la force ionique (minéralisation)	43
II.4.7. Influence des colorants	44
II.5. Travaux sur la coagulation-floculations des colorants	45
II.5.1. Coagulation-floculations des colorants en solutions synthétiques	45
II.5.2. Coagulation-floculations des eaux usées de l'industrie textile	46
II.6. Conclusion	48

## *Deuxième Partie : Partie Expérimentale*

### **Chapitre I: Méthodologie expérimentale**

I.1. Introduction	50
I.2. Réactifs chimiques	50
I.2.1. Colorants	51
I.2.1.1. Choix des colorants	51
I.2.1.2. Méthyle Violet	51
I.2.1.3. Rouge Congo	52
I.2.1.4. Vert Brillant	53
I.2.2. Coagulants	54

I.2.2.1. Choix du coagulant	54
I.2.2.2. Sulfate d'aluminium	54
I.2.2.3. Chlorure ferrique	54
I.2.3. Aides coagulant (les adjuvants)	54
I.3. Préparation des solutions étudiées et des réactifs utilisés	55
I.3.1. réparation des solutions mères	55
I.3.1.1. Coagulants	55
I.3.1.2. Colorants	55
I.4. Eaux résiduaires	56
I.4.1. Caractéristiques physico-chimiques des solutions traitées	56
I.5. Méthodes de mesure et de dosage des paramètres physico-chimiques	57
I.5.1. pH mètre	57
I.5.2. Conductivité	57
I.5.3. Turbidité	58
I.5.4. Dosage de titre alcalimétrique complet (TAC)	58
I.5.5. Dosage des éléments minéraux	58
I.5.5.1. Détermination de la dureté	59
I.5.5.2. Dosage du potassium	59
I.5.6. Détermination des concentrations du cuivre, cadmium et du zinc	59
I.5.7. Détermination de la Demande Chimique en Oxygène (DCO)	60
I.6. Dosage des colorants	61
I.7. Protocole suivi lors les essais de la coagulation-floculation	64
I.7.1. Formules exploitées lors du calcul des concentrations résiduelles et des rendements	66
I.7.1.1. Système simple et les eaux résiduaires	66
I.7.1.2. Système binaire	66
I.8. Application de Logiciel de statistique Expert Design RSM (Response Surface methodology)	68
I.8.1. Représentation du logiciel	68
I.8.2. Evaluation des modèles créés par le logiciel	68
I.9. Conclusion	69

## **Chapitre II : Elimination des colorants dans un système individuel par coagulation floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique**

II.1. Introduction	70
II.2. Effet des paramètres réactionnels	70
II.2.1. Effet de la dose optimale du coagulant	70
II.2.2. Effet de la teneur initial du colorant	78
II.2.3. Effet de la variation du pH	80
II.2.4. Effet des adjuvants sur le procédé de la coagulation-floculation	85
II.2.5. Etude comparative entre l'effet des deux coagulants sur l'élimination des colorants	90
II.3. Incidence de la force ionique (la minéralisation) sur l'efficacité d'élimination des colorants	93
II.3.1. Effet de la force ionique sur le $pH_i$ et $pH_f$ d'une solution	97
II.4. Conclusion	99

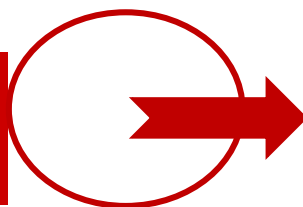
## **Chapitre III : Effet de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants dans les systèmes binaires et optimisation des résultats par le logiciel statistique RSM**

III.1. Introduction	100
III.2. Première étape	101
III.2.1. Coagulation-floculation des colorants dans le système binaire	101
III.2.1.1. Effet de la dose du coagulant	101
III.2.1.2. Effet du pH initial	105
III.2.1.3. Effet de la teneur initiale du colorant	109
III.3. Deuxième étape	111
III.3.1. Modélisation des résultats	111
III.3.1.1. Effets des facteurs de dosage du coagulant et de pH sur l'élimination des colorants testés dans les systèmes binaires	112
III.3.1.2. Effets des facteurs de teneur initiale et de pH sur l'élimination des colorants testés dans les systèmes binaires	120
III.3.2. Optimisation des résultats	123
III.4. Conclusion	125

## **Chapitre IV : Etude de la décoloration des eaux résiduaires par coagulation-floculation**

IV.1. Introduction	126
IV.2. Résultats et discussion	126
IV.2.1. Etude de la variation de la dose du coagulant	127
IV.2.2. Effet de la variation du pH	133
IV.2.3. Effet de la variation des adjuvants	137
III.3. Conclusion	143
Conclusion générale	145
Références bibliographiques	150

# **Liste des acronymes, Figures, Photos et Tableaux**



## *Liste des acronymes*

<b>Abréviation</b>	<b>Signification</b>
LARHYSS	Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface
TH	Titre hydrotimétrique (Dureté totale)
Mg <sup>2+</sup>	Ions de magnésium
Ca <sup>2+</sup>	Ions de calcium
Cl <sup>-</sup>	Chlor
TAC	Titre alcalimétrique complet
Cd	Cadimium
Cu	Cuivre
Zn	Zinc
pH	Potentiel d'Hydrogène
CAP	Charbon Actif en poudre
R(%)	Rendement d'élimination du polluant étudié en %
C <sub>0</sub>	Concentration initiale du polluant étudié
C <sub>f</sub>	Concentration finale du polluant étudié
C <sub>λ</sub>	Concentration des colorants en solution binaire
DCO	Demande chimique en oxygène
SA	Sulfate d'aluminium (Al <sub>2</sub> (SO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> )
CF	Chlorure ferrique (FeCl <sub>3</sub> )
Ca(OH) <sub>2</sub>	Chaux
NaOH	Hydroxyde de sodium
HCl	Acide chlorhydrique
NaCl	Chlorure de sodium
KCl	Chlorure de potassium
MV	Méthyle Violet
RC	Rouge Congo
VB	Vert Brillant
λ <sub>max</sub> (nm)	Longueur d'onde maximale d'absorbance du polluant étudié
K	Potassium
Aabs	absorbance du spectrophotomètre UV à la gamme de longueurs d'onde donnée
RSM	Logiciel statistique (Response surface methodology)
pH <sub>i</sub>	Potentiel d'Hydrogène initial du milieu étudié
pH <sub>f</sub>	Potentiel d'Hydrogène final du milieu étudié
MV-VB	Combinaison du Méthyle Violet avec le Vert Brillant dans le système binaire
VB-MV	Combinaison du Vert Brillant avec le Méthyle Violet dans le système binaire
MV-RC	Combinaison du Méthyle Violet avec le Rouge Congo dans le système binaire
RC-MV	Combinaison du Rouge Congo avec le Méthyle Violet dans le système binaire
VB-RC	Combinaison du Vert Brillant avec le Rouge Congo dans le système binaire
RC-VB	Combinaison du Rouge Congo avec le Vert Brillant dans le système binaire

## *Liste des figures*

N°	Titre	Page
<b><i>Première Partie</i></b>		
<b>Chapitre I Etude bibliographique sur les colorants et les procédés de traitement appliqués</b>		
<b>Figure I.1</b>	Structure moléculaire d'un colorant azoïque	11
<b>Figure I.2</b>	Structure d'un colorant anthraquinonique	12
<b>Figure I.3</b>	Structure chimique de l'indigoïde	12
<b>Figure I.4</b>	Structure d'un colorant xanthène	13
<b>Figure I.5</b>	Structure d'un colorant phtalocyanine	13
<b>Figure I.6</b>	Structure d'un colorant nitré et nitrosé	14
<b>Figure I.7</b>	Colorant de cuve	15
<b>Figure I.8</b>	Structure d'un colorant acide/anionique	15
<b>Figure I.9</b>	Colorant basique/cationique	16
<b>Figure I.10</b>	Colorant direct	17
<b>Figure I.11</b>	Structure d'un colorant à mordant	18
<b>Figure I.12</b>	Conséquences de la bioaccumulation après déversement de substances toxiques (insecticides) dans un cours d'eau	20
<b>Chapitre II : Description générale de la Coagulation-floculation et son effet sur l'élimination des colorants</b>		
<b>Figure II.1</b>	Description du phénomène de coagulation-floculation	30
<b>Figure II.2</b>	Distribution ionique autour d'une particule colloïdale (d'après le modèle de Gouy-Chapman-Stern	31
<b>Figure II.3</b>	Modèle de Stern-Gouy-Chapman, montrant l'arrangement ionique en double couche et l'évolution du potentiel électrique de la surface de la particule vers la solution	31
<b>Figure II.4</b>	Effet de la neutralisation des charges sur les colloïdes lors la coagulation-floculation	34
<b>Figure II.5</b>	Adsorption et pontage des particules par les polymères	35
<b>Figure II.6</b>	Emprisonnement des particules dans les floes	36
<b>Figure II.7</b>	Courbes de la MES en fonction de la dose du coagulant pour différentes températures	40

<b>Figure II.8</b>	Diagramme de répartition des espèces hydrolysées de l'aluminium en fonction du Ph. Concentration totale en $Al^{3+} = 1.85 \times 10^{-6}$ mol /L (0.5 mg/L)	41
<b>Figure II.9</b>	Diagramme de coagulation au chlorure ferrique pour des conditions optimales de Ph/dose de coagulant (Régions de coagulation de la matière organique dissout)	41
<b>Deuxième Partie</b>		
<b>Chapitre I: Méthodologie expérimentale</b>		
<b>Figure I.1</b>	Exemple des Courbes d'étalonnage du Méthyle Violet et Rouge Congo Vert Brillant	62
<b>Figure I.2</b>	Courbes d'étalonnage des (a) VB et RC à 624 nm ; (b) VB et RC à 500 nm ;(c) RC et MV à 500 nm;(d) RC et MV à 584 nm;(e) VB et MV à 624 nm;(f) VB et MV à 584 nm	63
<b>Figure I.3</b>	Spectres des eaux usées (a) Eaux usées Labo LARHYSS (b) Eaux usées de l'unité de la production de la peinture	64
<b>Chapitre II : Elimination des colorants dans un système individuel par coagulation floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique</b>		
<b>Figure II.1</b>	Effet de la variation de la dose du sulfate d'aluminium sur l'élimination des trois colorants $[MV]=[RC]=[RC]=30$ mg/L. pH non ajusté	71
<b>Figure II.2</b>	Effet de la variation de la dose du chlorure ferrique sur l'élimination des trois colorants $[MV]=[RC]=[RC]=30$ mg/L. pH non ajusté	72
<b>Figure II. 3</b>	Valeurs de pH,des doses de sulfate d'aluminium(a) et de chlorure ferrique (b)	72
<b>Figure II.4</b>	Schéma explicatif du principe de la coagulation-floculation	75
<b>Figure II.5</b>	Effet de la variation de la teneur initiale du colorant (a) sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique. $[Al_2SO_4] = [FeCl_3]=$ Dose optimale (mg/L), pH non ajusté	79
<b>Figure II.6</b>	Effet de la variation du pH initial des solutions (a) sulfate d'aluminium (b) Chlorure ferrique. $[Al_2SO_4] = [FeCl_3]=$ Dose	81



	optimale (mg/L). [MV]=[RC]=[RC]=30 mg/L	
<b>Figure II.7</b>	Diagramme de répartition des espèces hydrolysées de l'aluminium en fonction du pH à l'aide du logiciel Visual MINTEQ (version 3.1). [Al] = 60 mg/l à 25°C	83
<b>Figure II.8</b>	Diagramme de spéciation du fer ferrique pour une dose optimale en fonction du pH à l'aide du logiciel Visual MINTEQ (version 3.1). [Fe <sup>3+</sup> ] = 34.43 mg/l à 25°C	83
<b>Figure II.9</b>	Effet de la variation du charbon actif en poudre CAP. (a) sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique. [Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ] = [FeCl <sub>3</sub> ] = Dose optimale (mg/L). [MV]=[RC]=[RC]=30 mg/L	85
<b>Figure II.10</b>	Effet de la variation du polymère. (a) Sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique. [Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ] = [FeCl <sub>3</sub> ] = Dose optimale (mg/L). [MV]=[RC]=[RC]=30 mg/L	86
<b>Figure II.11</b>	Effet de la variation de la chaux (Ca(OH) <sub>2</sub> ). (a) Sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique. [Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ] = [FeCl <sub>3</sub> ] = Dose optimale (mg/L). [MV]=[RC]=[RC]=30 mg/L	86
<b>Figure II.12</b>	protocole suivi lors de l'étude de l'effet de la minéralisation sur l'élimination des colorants MV, RC et VB	93
<b>Figure II.13</b>	Effet de NaCl sur l'élimination de MV, RC et VB en présence de la dose optimale de sulfate d'aluminium et de chlorure ferrique correspondante à chaque colorant	94
<b>Figure II.14</b>	Effet de KCl sur l'élimination de MV, RC et VB en présence de la dose optimale de sulfate d'aluminium et de chlorure ferrique correspondante à chaque colorant	95
<b>Chapitre III : Effet de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants dans les systèmes binaires et optimisation des résultats par le logiciel statistique RSM</b>		
<b>Figure III.1</b>	Schéma présentatif du principe de l'évaluation et la modélisation des rendements d'élimination des colorants dans les systèmes binaires	100
<b>Figure III.2</b>	Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants (MV-RC) dans les systèmes simple et binaire ([MV]=[RC] = 30 mg/L, pH=5,3	102

<b>Figure III.3</b>	Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants(VB- RC) dans les systèmes simple et binaire ([VB]=[RC] = 30 mg/L, pH=5,3)	102
<b>Figure III.4</b>	Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants (MV-VB) dans les systèmes simple et binaire ([MV]=[VB] = 30 mg/L, pH=5,3)	103
<b>Figure III.5</b>	Rendements et doses optimums de sulfate d'aluminium d'élimination des colorants testés en systèmes simple et binaire	103
<b>Figure III.6</b>	Effet de la variation de pH initial sur l'élimination des colorants (MV, RC et VB) dans les systèmes binaires (Dose optimale, C[colorant 1]=C[colorant 2]= 30 mg/L)	106
<b>Figure III.7</b>	Effet de la teneur initiale sur l'élimination des colorants (MV, RC et VB) dans les systèmes binaires (Dose de SA=Dose optimale, pH=5,3)	110
<b>Figure III.8</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium (SA=25 mg/L(MV-VB (1), VB-MV (2))	118
<b>Figure III.9</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium (SA=130 mg/L(MV-VB(1), VB-MV (2))	118
<b>FigureIII.10</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : (1) Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium (SA= 90 mg/L (MV-RC (1), RC-MV (2))	119
<b>FigureIII.11</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium (SA= 100 mg/L, (VB-	119

	<b>RC, (1) ; RC-VB (2)</b>	
<b>FigureIII.12</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : <b>(1)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-VB, <b>(2)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-MV En présence de la dose optimale <b>25 mg/L</b>	120
<b>FigureIII.13</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : <b>(1)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-VB, <b>(2)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-MV En présence de la dose optimale <b>130 mg/L</b>	121
<b>FigureIII.14</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : <b>(1)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-RC, <b>(2)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du RC-MV En présence de la dose optimale <b>90 mg/L</b>	121
<b>Figure III.15</b>	Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : <b>(1)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-RC, <b>(2)</b> Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du RC-VB En présence de la dose optimale <b>100 mg/L</b>	122
<b>Chapitre IV : Etude de la décoloration des eaux résiduaires par coagulation-floculation</b>		
<b>Figure IV.1</b>	Schéma présentatif des étapes suivies et le protocole appliqué lors du traitement des eaux usées de laboratoire et de peinture	127
<b>Figure IV.2</b>	Effet de la variation de sulfate d'aluminium et chlorure ferrique sur l'élimination du MV, RC, VB et le mélange des eaux de laboratoire ( <b>Lab. LARHYSS</b> )	128
<b>Figure IV.3</b>	Effet de la variation de sulfate d'aluminium et chlorure ferrique sur l'élimination du VB, MV, RC et le mélange des eaux résiduaires ( <b>E. Peinture</b> )	128
<b>Figure IV.4</b>	Pourcentages de la réduction de la DCO des eaux étudiées avec la variation des doses des coagulants	131

<b>Figure IV.5</b>	Pourcentages de la réduction de la turbidité des eaux étudiées avec la variation des doses des coagulants	131
<b>Figure IV.6</b>	Variation des pH finaux et TAC des eaux étudiées après traitement avec la variation des doses des coagulants	133
<b>Figure IV.7</b>	Effet de la variation de pH initial sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et le mélange des eaux résiduaires ( <b>Lab. LARHYSS</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=16 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 30 \text{ mg/L})$	134
<b>Figure IV.8</b>	Effet de la variation de pH initial sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et le mélange des eaux résiduaires ( <b>E. Peinture</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=100 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 50 \text{ mg/L})$	134
<b>Figure IV.9</b>	Rendements optimums sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et les résiduaires testées par sulfate d'aluminium et chlorure ferrique en fonction du pH du traitement optimal	136
<b>Figure IV.10</b>	Effet du CAP sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires ( <b>Lab. LARHYSS</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=16 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 30 \text{ mg/L})$	138
<b>Figure IV.11</b>	Effet du CAP sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires ( <b>E. Peinture</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=100 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 50 \text{ mg/L})$	138
<b>Figure IV.12</b>	Effet de la chaux sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires ( <b>Lab. LARHYSS</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=16 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 30 \text{ mg/L})$	139
<b>Figure IV.13</b>	Effet de la chaux sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires ( <b>E. Peinture</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=100 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 50 \text{ mg/L})$	139
<b>Figure IV.14</b>	Effet du polymère sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires ( <b>E. Peinture</b> ) en présence de $(Al_2(SO_4)_3=100 \text{ mg/L} ; FeCl_3= 50 \text{ mg/L})$	140

## *Liste des photos*

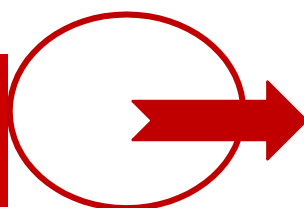
<b>N°</b>	<b>Titre</b>	<b>Page</b>
<b><i>Deuxième Partie</i></b> Chapitre I: Méthodologie expérimentale		
<b>Photo I.1</b>	Turbidimètre (Turb 550 IR)	58
<b>Photo I.2</b>	Palintest photometer 5000	59
<b>Photo I.3</b>	DCO mètre (CR200)	60
<b>Photo I.4</b>	Spectrophotomètres (Optizen 20120) et (Photolab 7600) (UV-Vis)	61
<b>Photo I.5</b>	Floculateur de laboratoire (Fisher 11198)	65

## *Liste des Tableaux*

N°	Titre	Page
<b><i>Première Partie</i></b>		
<b>Chapitre I : Etude bibliographique sur les colorants et les procédés de traitement appliqués</b>		
<b>Tableau I.1</b>	Principaux groupes chromophores et auxochromes	10
<b>Tableau I.2</b>	Différentes activités d'une entreprise textile et les effluents associés	19
<b>Chapitre II : Description générale de la Coagulation-floculation et son effet sur l'élimination des colorants</b>		
<b>Tableau II.1</b>	Caractéristiques des principaux coagulants utilisés lors de la coagulation avec leurs avantages et leurs inconvénients possibles	38
<b><i>Deuxième Partie</i></b>		
<b>Chapitre I: Méthodologie expérimentale</b>		
<b>Tableau I.1</b>	Caractéristiques des produits chimiques utilisés au cours des essais	51
<b>Tableau I.2</b>	Description des caractéristiques et structures chimiques des colorants étudiés	53
<b>Tableau I.3</b>	Propriétés physiques du charbon actif en poudre (CAP)	55
<b>Tableau I.4</b>	Caractéristiques physico-chimiques des eaux résiduaires testées	57
<b>Chapitre II : Elimination des colorants dans un système individuel par coagulation floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique</b>		
<b>Tableau II.1</b>	Valeurs de pH <sub>f</sub> des solutions des colorants testés éliminés par la combinaison (Coagulant-Chaux)	90
<b>Tableau II.2</b>	Doses et rendements d'élimination du Méthyle Violet par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels	91
<b>Tableau II.3</b>	Doses et rendements d'élimination du Rouge Congo par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels	92

<b>Tableau II.4</b>	Doses et rendements d'élimination du Vert Brillant par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels	92
<b>Tableau II.5</b>	Valeurs de $pH_i$ et $pH_f$ des solutions étudiées (avant-après) l'ajout des sels	98
<b>Chapitre III : Effet de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants dans les systèmes binaires et optimisation des résultats par le logiciel statistique RSM</b>		
<b>Tableau III.1</b>	Rendements, pH optimums et écart des rendements entre les deux systèmes des colorants testés	108
<b>Tableau III.2</b>	Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et VB dans le système binaire MV-VB et VB-MV, <b>SA =25 mg/L</b>	113
<b>Tableau III.3</b>	Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et VB dans le système binaire MV-VB et VB-MV. <b>SA= 130 mg/L</b>	114
<b>Tableau III.4</b>	Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et RC dans le système binaire MV-RC et RC-MV, <b>SA= 90 mg/L</b>	115
<b>Tableau III.5</b>	Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de VB et RC dans le système binaire VB-RC et RC-VB. <b>SA=100 mg/L</b>	116
<b>Chapitre IV : Etude de la décoloration des eaux résiduaires par coagulation-floculation</b>		
<b>Tableau IV.1</b>	Rendements maximums d'élimination des colorants des eaux résiduaires par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique	129
<b>Tableau IV.2</b>	Facteurs physico-chimiques des paramètres réactionnels des eaux de laboratoire	142

# *Introduction Générale*





La pollution de l'eau est considérée comme le plus grand danger à l'environnement et à la dégradation des écosystèmes. Cette pollution résulte de l'utilisation massive des polluants organiques et minéraux d'origine agricole, urbaine et industrielle. Ainsi, l'industrie textile est une source importante d'effluents liquides chargés en polluants colorés, en raison du grand volume d'eau chargé en substances colorantes et non colorantes, utilisées dans les opérations d'impression, de teinture et de finition (Iqbal et al, 2015 ; Yadav et al, 2020). Ces eaux sont globalement caractérisées par des valeurs élevées de turbidité, de demande biologique en oxygène (DBO) et de la demande chimique en oxygène (DCO), une faible biodégradabilité ainsi qu'une biotoxicité accrue à l'égard des bactéries et d'autres polluants.

Parmi toutes les classes des colorants qui existent, on trouve le type synthétique qui est le plus utilisé dans l'industrie textile. La plupart des colorants synthétiques sont fabriqués à partir des colorants azoïques, anthraquinones (65 % à 75 % des colorants), qui représentent ce type de contaminant (Saini, 2017). Actuellement, les colorants synthétiques représentent un groupe relativement important dans les produits chimiques trouvés dans pratiquement toutes les sphères de notre vie quotidienne. Ils sont plus populaires que les colorants naturels parce que, les colorants synthétiques ont une grande durabilité et brillance (Sbai et al, 2016; Saini, 2017).

Il est important de noter que l'évacuation des eaux usées contenant des colorants industriels dans les rivières et les lacs sans traitement approprié à causer de nombreux problèmes. Par conséquent, il n'affecte pas seulement la qualité esthétique, mais diminue également la transmission de la lumière de l'eau, réduit la photosynthèse, qui contribue à la dégradation du milieu aquatique. En effet, la présence des quantités importantes des colorants est toxique et peut nuire aussi bien les écosystèmes aquatiques ainsi que, la santé humaine. Ils peuvent être responsables à des infections aiguës ou chroniques telles que les pathologies respiratoires (asthme), urinaires et pulmonaires, effets nocifs sur les globules rouges, effets cutanés allergiques (eczéma, urticaire), et les monstrueux, effets cancérigènes et mutagènes (cancer des voies urinaires et du poumon, ....etc).

De ce fait, il existe actuellement une exigence essentielle de traiter les effluents colorés pour limiter et minimiser le plus possible ces polluants, en mettant en place un moyen du traitement adéquat. Dans ce contexte, l'un des plus grands problèmes environnementaux aujourd'hui est l'élimination des colorants des eaux usées (Wang et al, 2018; Zafar et al, 2018).

La décoloration de ces eaux polluées est souvent difficile à traiter, car une fois les colorants dissoutes dans l'eau, suite de leurs origines synthétiques et de leurs structures moléculaires complexes qui les rendent plus stables et les traitements conventionnels ne dégradent pas facilement les colorants organiques synthétiques. Pour éliminer la pollution liée à la présence des colorants dans les eaux usées, les chercheurs et les techniciens du domaine de traitement des eaux à l'échelle mondiale ont travaillé sur la création et le développement de nombreuses méthodes et techniques de dépollution de l'eau. Parmi ces techniques, il y a lieu de citer les procédés de précipitation chimique, la coagulation-floculation, les résines échangeuses d'ions, l'électrolyse, les procédés membranaires, les procédés d'oxydation avancée et l'adsorption sur différents matériaux comme le charbon actif, les argiles et les hydroxydes ([Forgacs et al, 2004](#) ; [Pajootan et al, 2012](#); [Nourmoradi et al, 2016](#) ; [Yukseler et al, 2017](#)).

Dans cet état d'esprit, le procédé coagulation-floculation est une opération importante lors du traitement des eaux usées de teinture. La coagulation et à l'aide de coagulants chimiques consiste à combiner des particules insolubles, des matières organiques, des substances dissoutes et colloïdales en gros agrégats en surmontant la barrière d'énergie répulsive interparticulaire par l'augmentation de la force ionique et la déstabilisation des colloïdes en neutralisant les forces qui les séparent. Alors que, la floculation est l'action des matériaux polymères, elle se résulte du pontage entre les particules. Le pontage se produit lorsque les chaînes polymères s'adsorbent sur différentes particules et aident les particules à s'agglomérer pour former des flocs plus grands ([Lee et al, 2014](#)) dont leur élimination par la sédimentation/la flottation et la filtration ait lieu. Les coagulants et floculants fréquemment utilisés sont des additifs minéraux y compris les sels métalliques tels que le sulfate d'aluminium, le chlorure ferrique, le sulfate ferreux, le polychlorure d'aluminium et des polymères synthétiques ([Renoult et al, 2009](#)). En comparaison avec d'autres procédés de traitement des effluents aqueux pollués, le processus de la coagulation-floculation permet une flexibilité en termes de conception et fonctionnement et produit des effluents non polluants et adaptés pour réutilisation. Cependant, les propriétés de cette technique et la disponibilité des produits sont également des critères clés dans le choix. Ce procédé n'est pas seulement un procédé de laboratoire, mais aussi elle s'est développée à l'échelle industrielle avec des applications de plus en plus nombreuses.

A cette époque, il est important de signaler qu'en Algérie, au niveau des usines de production de l'eau potable ou de traitement des eaux usées ; le sulfate d'aluminium (SA) et parfois le chlorure ferrique sont souvent utilisés comme coagulant. Parce que, ce sont deux réactifs chimiques très efficaces à l'élimination de la pollution organique et inorganique, bien que le coût d'achat soit important. Une étude comparative entre le prix d'achat de sulfate d'aluminium (SA) et celui de la chaux réalisée par (Bouchahm et al, 2016), ils ont clairement indiqué que la chaux est moins chère et plus économique (environ 2 euros/10 kg) par rapport au coût du traitement par le sulfate d'aluminium (environ 15 euros/10 kg). Par conséquent, la combinaison avec des adjuvants tels que le charbon actif en poudre (CAP) ou les polymères est considérée comme l'une des méthodes les plus efficaces pour éliminer les solides en suspension et diminuer la quantité de coagulant, cela se traduit automatiquement par une réduction dans le coût du coagulant (Goudjil et al, 2021). La combinaison est largement utilisée dans diverses stations d'épuration domestique, et même dans plusieurs industries pour éliminer les colorants des eaux usées industrielles, en raison de son rôle important dans le traitement primaire des eaux usées (Sbai et al, 2016 ; Obiora-Okafo et Onukwuli 2017 ; Puchana-Rosero et al, 2018). Il est intéressant de noter que l'efficacité de la coagulation et la floculation dépend des caractéristiques de l'eau à traiter, la dose de coagulant et le pH ; plusieurs mécanismes peuvent être impliqués dans le processus de traitement tels que la neutralisation de la charge suivie de la précipitation des complexes insolubles colorant-coagulant, et de leur adsorption dans l'hydroxyde d'aluminium et ou du fer. Dans le traitement de l'eau potable des eaux de surface, la coagulation-floculation est l'étape la plus importante dans la clarification de l'eau.

À partir des données citées précédemment, le travail présenté dans ce manuscrit sera consacré dans le souci de contribuer à la lutte contre cette pollution. De ce fait, nous nous sommes fixés comme objectif principal, l'étude des performances du procédé de la coagulation-floculation dans l'élimination et/ou la dégradation de la concentration de la coloration de deux types d'échantillons :

Le premier échantillon est une solution synthétique colorée individuellement par trois colorants appartenant à deux familles des colorants l'une cationique, le Vert Brillant (VB) et le Méthyle Violet (MV). Tandis que, l'autre est anionique, le Rouge Congo (RC). Le choix de ces colorants a été justifié par leur caractère nocif pour l'environnement dont le choix étudié répond aux critères suivants :

- Solubilité plus ou moins élevée dans l'eau ;
- Analyse par spectrophotomètre UV/visible ;
- Modèle de structure différente : cationique pour le Vert Brillant, le Méthyle Violet et anionique pour le Rouge Congo.

Le deuxième échantillon présente une application à des deux différents types d'eaux résiduaires :

- Une eau résiduaire synthétique sera collectée au niveau du Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (**LARHYSS**), Université de Biskra pendant la période de la réalisation de nos travaux expérimentaux.
- Une autre eau résiduaire que nous allons tester proviendra du rejet d'une unité privé de production de la peinture situé à Barika (se situe au sud-ouest de la wilaya de Batna-Algérie).

Pour présenter le travail réalisé, la présente thèse sera composée de six chapitres répartis en deux parties :

La première partie présentera une synthèse bibliographique qui rassemblera dans le premier chapitre un aperçu général sur l'origine des couleurs, leurs historiques d'existence et la classification des colorants (chimique et par domaine d'application). Dans ce chapitre, nous allons citer aussi les domaines d'utilisation de ces composés chimiques importants. Une étude bibliographique détaillée sur les différents effluents de l'industrie textile sera présentée. On ne peut pas terminer la partie des colorants sans parler des risques et des impacts des colorants, leurs effets sur la santé humaine et l'environnement aquatique. Sachant que, ces composés sont connus comme des produits réfractaires et qui peuvent devenir toxiques après leur décomposition dans la nature soit directement ou bien à long terme. Un état ou la situation de l'industrie textile en Algérie sera également invoqué. En deuxième lieu, une attention sera donnée aux méthodes de traitements des eaux usées contaminées par les colorants de textile, une étude détaillée sur les différentes méthodes/processus suivies et recommandées pour le traitement des effluents de l'industrie textile, en particulier les méthodes physico-chimiques.

Le deuxième chapitre de cette partie bibliographique sera consacré à la présentation des généralités sur le procédé de la coagulation-floculation. Dans ce chapitre, nous allons citer les paramètres influençant le procédé et leur mise en œuvre. Ce chapitre sera couronné par les

travaux qui ont été réalisés dans le but de la décoloration des eaux par coagulation-floculation, aussi bien en solutions synthétiques que sur des eaux usées industrielles.

La démarche scientifique acquiescée consistera à réaliser des essais expérimentaux sur le procédé adopté et les matériels d'analyse utilisés. Pour cela, nous allons effectuer une étude expérimentale présentée dans les chapitres de la deuxième partie de cette thèse, en étudieront les performances du procédé de la coagulation-floculation en système simple et binaire des solutions synthétiques ainsi sur deux types d'eaux usées colorées. Pour aboutir à la performance du procédé, différents paramètres réactionnels gouvernant notre étude. Il s'agit également de : l'effet de la dose du coagulant, le pH initial des solutions, la teneur initiale du colorant ainsi l'effet des adjuvants à savoir, le charbon actif en poudre commerciale (CAP) un polymère agroalimentaire et la chaux ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ). Notons que cette partie sera structurée par quatre chapitres feront l'objet de la présentation et la discussion des principaux résultats obtenus.

Le premier chapitre dans lequel nous allons détaillé le matériel et les méthodes expérimentales ayant permis la réalisation pratique de notre étude. Les modes opératoires, les réactifs, les appareils de mesure, d'analyse chimique y seront présentés et les analyses physicochimiques des eaux résiduaires testées.

Le deuxième chapitre sera consacré pour étudier l'effet de deux coagulants, le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique sur l'élimination des trois colorants (VB, MV et RC) en solutions synthétiques dans un système simple, en utilisant les paramètres réactionnels de la coagulation-floculation. La présence d'interférences dans les eaux usées de l'industrie textiles, nous a orienté à 'étudier l'incidence de la force ionique sur l'élimination des colorants précités en présence de deux sels responsables de la minéralisation des eaux, il s'agit également de chlorure de sodium ( $\text{NaCl}$ ) et de chlorure de potassium ( $\text{KCl}$ ).

Les effluents textiles sont généralement chargés par plus d'un colorant ou d'un composé chimique. C'est pourquoi le troisième chapitre a pour objectif la combinaison des deux colorants dans la même solution synthétique (système binaire) et étudier d'une part, les performances du procédé de la coagulation-floculation sur l'élimination d'un colorant en présence de l'autre par le sulfate d'aluminium. Certains paramètres réactionnels du procédé, vont être également étudiés, il s'agit du dosage de coagulant, de la teneur initiale des

colorants et du pH. D'autre part, pour confirmer les résultats que nous allons obtenir au cours de l'évaluation des paramètres réactionnels de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium sur l'élimination des trois colorants testés dans les systèmes binaires. Nous allons utiliser une technique statistique du logiciel Expert design version 11 RSM (Response Surface Methodology). Cette technique permet de modéliser l'effet de chaque deux paramètres réactionnels sur le pourcentage d'élimination, ainsi qu'il va nous offrir la possibilité d'optimiser les résultats trouvés en y augmentant l'efficacité du traitement par certains points/essais proposés à refaire.

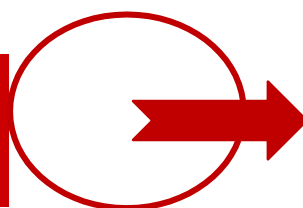
Le quatrième chapitre sera consacré à l'application du procédé de la coagulation-floculation aux deux types d'eaux résiduaires (eaux usées synthétiques du laboratoire LARHYSS et les eaux usées d'une unité de production de la peinture). Tout en gardant les mêmes paramètres réactionnels étudiés dans les précédents chapitres.

Finalement, une conclusion générale exposant les principaux résultats de notre étude, suivie par des références bibliographiques gouverneront notre thèse.

# *Partie I : Partie Bibliographique*

## **Chapitre I :**

### **Etude bibliographique sur les colorants et les procédés de traitement appliqués**



### I.1. Introduction

La prise de conscience du danger que représente la pollution de notre espace de vie est une réalité et une nécessité qui doit se manifester par une lutte sous toutes ses formes, la pollution concerne tous les compartiments de notre environnement, l'eau, l'air et le sol (Natarajan et al, 2018). Elle est issue d'une diffusion des contaminants organiques et inorganiques. La pollution de l'eau a pris la grande part des préoccupations environnementales, du fait que les ressources en eau sont limitées et que le développement économique engendre des problèmes de pollution puisque, les volumes des eaux usées générés par les différents secteurs d'activité deviennent de plus en plus importants (Mohan et al, 2007).

Parmi les industries les plus consommatrices d'eau, on trouve celle du textile avec celle de la tannerie en tête de liste (Haoet al, 2000 ; Caldera-Villalobos et al, 2018). Pour des raisons plus ou moins commerciales, il existe un énormément des produits colorés en particulier dans l'industrie textile par l'utilisation de certains colorants, comme ceux synthétiques à cause de leur facilité de synthèse, leur rapidité de production et de leur grande variété de couleur comparant aux colorants naturels. Malgré les avantages cités, les colorants synthétiques sont l'un des éléments les plus toxiques, ces derniers ont été étiquetés comme cancérigène pour les différents organismes. Ces industries produisent des eaux usées chargées en coloration qui peuvent nuire au milieu naturel (rivière, mer ou même le sol) (Papić et al, 2004). Les réglementations en matière de rejet sont bien claires et exigent aux industries de traiter les rejets avant de les verser au milieu récepteur, afin de pouvoir éliminer la toxicité ou au moins d'atteindre les normes des rejets autorisées. Pour cela, il y a toute une chaîne de procédés à suivre pour pouvoir traiter ces eaux avec une certaine efficacité. Avant de détailler cette chaîne, il est préférable de donner une idée sur les colorants.

Dans ce contexte, ce chapitre est consacré à une étude bibliographique sur les colorants textiles, leur historique, leurs caractéristiques et leurs effets sur la santé et notamment sur l'environnement, avec un état de connaissances sur les différents procédés d'élimination des colorants, en présentant leurs principes et les principaux produits utilisés dans chacun d'eux.



## I.2. Colorants

### I.2.1. Définition d'un colorant

Un colorant est une substance colorée naturelle ou synthétique qui mise en contact avec le milieu, dans lequel elle est introduite où elle est interagit avec la colore, en s'y dissolvant et/ou dispersant qui lui conférant la propriété de teindre. Cette propriété résulte d'une affinité particulière entre le colorant et la fibre, selon le type d'application et d'utilisation dont elle se fixe sur la fibre de certains éléments en lui donnant une coloration durable (Kirby, 1977; Bouguerria, 2007 ; Degano et al, 2009).

### I.2.2. Historique des colorants

Depuis l'existence de l'homme, les colorants ont été appliqués pratiquement dans tous les domaines de la vie quotidienne, ils sont utilisés lors de la création des vêtements, la préparation de la nourriture, pour la décoration d'habitation ainsi que pour la teinture du papier et de la peau (Fassi, 2016). Mais les colorants appliqués auparavant étaient d'origines naturelles et qui proviennent essentiellement des plantes, tel que, l'alizarine et l'indigo et d'animaux comme le carmin extrait de la cochenille (Ferreira et al, 2004).

Le terme colorant synthétique est né en 1856 par le chimiste anglais **W.H PERKIN**, où il a réalisé une tentative de synthèse de la quinine artificielle par oxydation à partir d'allyltoluidine, pour combattre le paludisme, ce produit est devenu la première matière colorante synthétique, qu'il nomma «mauvéine», (ou pourpre d'aniline) (Viel, 2005; Bendou, 2009). Par la suite en 1862 un autre chimiste anglais **JOHAN GRIESS** procéda à la synthèse des premiers colorants azotés. Ces expériences ont été couronnées en 1876 par l'obtention du premier brevet pour la synthèse d'un colorant (**le bleu de méthylène**) par le chimiste **H.CARO** (Chetioui, 2010). Dès le 20<sup>ème</sup> siècle l'apparition d'un nombre illimité de colorants dans la production industrielle est devenu primordiale (Degano et al, 2009). Pour cela, ils ont créé un système de classification bien déterminé pour pouvoir l'utilisé au niveau international. Il consiste à caractériser chaque colorant par un index de couleur noté qu'il a été mis au point par la "Society of Dyers and Colorists" (UK) et par " l'American Association of Textile Chemists and Colorists". Ce système est nommé par la suite "The Colour Index" C.I (O'Neill et al, 1999), il répertorie la majorité des colorants qui se trouvent sur le marché. Dans lequel, chaque colorant est classé selon son nom générique qui décrit ses caractéristiques essentielles telles que : sa formule chimique, sa couleur, sa nuance et sa résistance à la lumière, aux

solvants, à la chaleur et à différents agents chimiques ainsi, qu'une description des principaux domaines d'utilisations. Chaque colorant dans l'index de couleur porte un numéro de référence (Reffas, 2010; Fassi, 2016).

### I.2.3. Caractéristiques générales des colorants

Sur le plan chimique, on trouve plusieurs types où les principes de classification des colorants sont basés sur la structure chimique du colorant synthétique et sur leur méthodes d'application aux différents substances (textiles, papier, cuir, matières plastiques... etc.) (Rosenberg, 2008). Sachant que tous les composés aromatiques absorbent l'énergie électromagnétique, mais seulement pour ceux qui ont la capacité d'absorber les rayonnements lumineux dans le spectre visible (de 380 à 750 nm) et qui sont donc colorés (Solunke, 2014; Dossantos et al, 2007). La coloration alors correspond aux transitions possibles après absorption du rayonnement lumineux entre ces niveaux d'énergie propres à chaque molécule.

En terme général, la couleur est liée à la structure et à la composition des molécules du colorant (Djellal, 2008; Messabihet al, 2021). D'après le chimiste (Witt (1978)), les molécules d'un colorant se composent des groupements dites « chromophores » (Hao et al, 2000 ; Larbi, 2008). Les colorants comprennent un ensemble de groupes chromophores (groupes aromatiques conjugués, comportent des électrons non liants (n) ou des complexes de métaux de transition), auxochromes et de structures aromatiques conjuguées (cycles benzéniques, anthracène, pérylène...etc.). Au fur et à mesure que le nombre de noyaux aromatiques augmente, la conjugaison des doubles liaisons augmente et le système conjugué s'élargit (Ben mansour et al, 2011).

Quand l'activité des électrons augmente, l'énergie des liaisons décroît en produisant un déplacement vers les grandes longueurs d'onde (effet bathochrome). De même, lorsqu'on place un groupe autochrome donneur d'électrons (amino, hydroxy, alkoxy...) sur un système aromatique conjugué. Il se joint à la conjugaison du système dont la molécule absorbe dans les grandes longueurs d'onde et donne des couleurs plus foncées (Belhadj 2011;Benaissa, 2011). Les principaux groupes chromophores et auxochromes sont présentés dans le Tableau I.1 (Zhenwang et al, 2000) :

Tableau I.1: Principaux groupes chromophores et auxochromes

Groupes chromophores	Groupes auxochromes
Azo (-N=N-)	Amino (-NH <sub>2</sub> )
Nitroso (-NO ou -N-OH)	Méthylamino (-NHCH <sub>3</sub> )
Carbonyl (=C=O)	Diméthylamino (-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> )
Vinyl (-C=C-)	Hydroxyl (-HO)
Nitro (-NO <sub>2</sub> ou =NO-OH)	Alkoxy (-OR)
Sulfure (>C=S)	Groupes donneurs d'électrons

Il peut être difficile de faire la distinction entre les colorants proprement dites, les pigments et les pigments pour la que :

- Les colorants : sont des substances solubles dans les solutions pour donner leurs couleurs ;
- Les pigments : sont des corps insolubles, utilisés dans l'industrie pour obtenir des couleurs ;
- Les pigments laqués : sont des pigments solubles que l'on fixe sur un support minéral.

### I.3. Classification des colorants

La révolution industrielle mondiale a conduit à l'apparence de millions de colorants synthétisés dans le but principal de développer la production industrielle des produits colorés. Ces chiffres ont exigé de mettre des classes de classification pour ces colorants (Zollinger, 2003). Ces derniers sont classés selon des principes de classification bien rencontrés dans les industries textiles et sur les méthodes d'application aux différents substrats (textiles, cuir, plastiques...etc). Sachant que, ce classement se fait en deux catégories, une classification chimique et une classification tinctoriale.

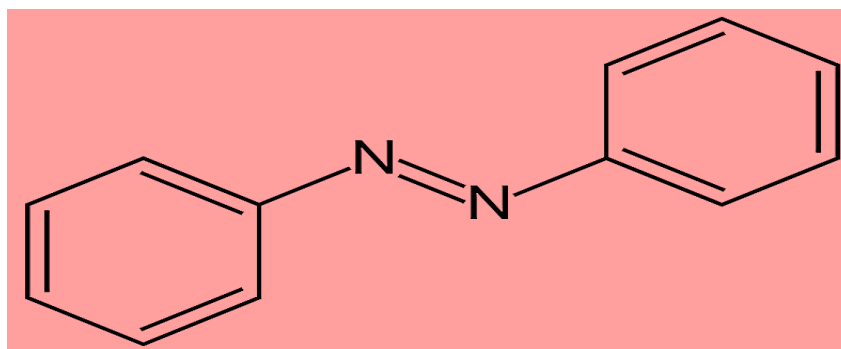
#### I.3.1. Classification chimique

La classification chimique des colorants est en fonction de leur structure chimique, elle repose sur la nature du groupe chromophore (Lamri, 2010). Dans cette classe, nous trouvons :

##### I.3.1.1. Colorants azoïques

Les composés azoïques ont pris leur nom du groupe fonctionnel azoïque (-N=N-) qui réunissant à son tour deux groupes alkyles ou aryles identiques ou non identiques (azo

symétrique et dissymétrique). Ces structures reposent généralement sur le squelette de l'azobenzène, et sont des systèmes aromatiques ou pseudo-aromatiques interconnectés par un groupe de chromophores azoïques (-N=N-) (**Figure I.1**) (**Ganesh et al, 1994 ; Ben mansour et al 2011**). La différence entre le mono-azoïque, le diazoïque et le polyazoïque se fait couramment selon le nombre d'azoïques présents dans la molécule (**Guendouz, 2015**). Cette catégorie de colorants est actuellement la plus répandue et représente plus de 50 % de la production mondiale de colorants (**Naidja, 2010-Errais, 2011**). Il est possible de classer ce type de colorants en plusieurs classes tels que, les colorants basiques, acides, directs et réactifs, qui ont une certaine solubilité dans l'eau. Sur l'échelle mondiale, il est estimé que de 10 à 15 % des quantités initiales sont perdues lors de la teinture des produits et que les effluents de cette étape de production sont évacués directement au milieu récepteur sans aucun traitement préalable (**Natarajan et al, 2013**).



**Figure I.1** : Structure moléculaire d'un colorant azoïque

### I.3.1.2. Colorants anthraquinoniques

Sur le plan commercial, ces colorants sont cités parmi les plus importants après ceux azoïques. Les formules générales de ces colorants sont dérivées de l'anthracène, ce qui indique que le chromophore est un cycle quinone auquel des groupes hydroxyle ou amino peuvent être attachés. Ces produits sont utilisés pour la teinture des fibres de polyester, d'acétate et de tri acétate de cellulose. En fait, ils forment la classe des colorants qui peuvent être les plus stables à la lumière et aux produits chimiques. Leurs chromophores sont des groupes carbonyle  $>C=O$  (**Figure I.2**) qui sont obtenus en remplaçant les atomes d'hydrogène H par des groupements hydroxyles et amino (**Chetioui, 2010**). La gamme d'application est très large. Ils sont souvent utilisés pour certaines couleurs comme le bleu, le violet et le gris (**Christie, 2001; Larbi, 2008**).

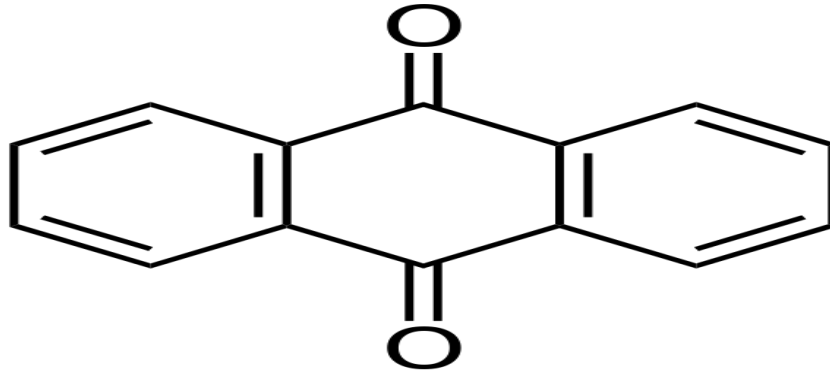


Figure I.2 : Structure d'un colorant anthraquinonique

### I.3.1.3. Colorants indigoïdes

Ce type de colorant tire leur appellation de l'indigo dont ils dérivent. Ainsi, les homologues sélénié, soufré et oxygéné du bleu indigo provoquent d'importants effets hypochromes avec des colorés pouvant aller de l'orange au turquoise (Harrlekas, 2008; Bouanimba 2014) (Figure I.3). Les colorants de cette classe se caractérisent par une résistance exceptionnelle aux traitements de lavage tout en ayant une stabilité à la lumière très moyenne. Les domaines d'utilisation de ce type de colorant sont généralement la production textile, pharmaceutique, la confiserie et aussi dans les diagnostics médicaux (Tebani, 2012).

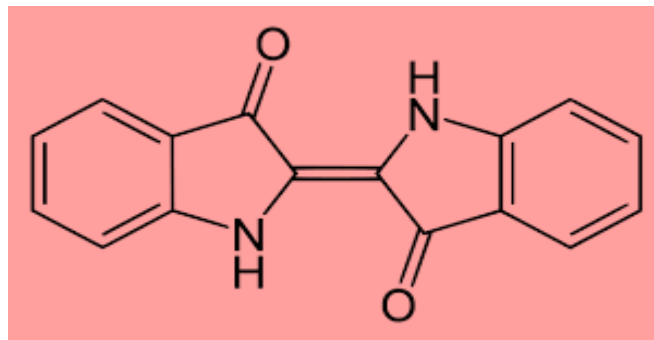


Figure I.3 : Structure chimique du colorant de l'indigoïde

### I.3.1.4. Colorants xanthènes

Les xanthènes sont généralement fluorescents et brillants, avec des couleurs allant du jaune au rose, rouge-bleuté. De nombreux colorants xanthènes peuvent être préparés par condensation des dérivés de l'anhydride phtalique sur celles de la résorcline ou du 3-aminophénol. Ce type des colorants est rarement utilisé comme colorant, mais plutôt comme marqueur lors d'accident maritime ou comme traceurs d'écoulement pour des

rivières souterraines, des flux de rejets, etc (Figure I.4). Ils sont également utilisés dans divers domaines comme la coloration alimentaire, les produits cosmétiques, les textiles et dans l'imprimerie (Guivarch2004; Larbi, 2008).

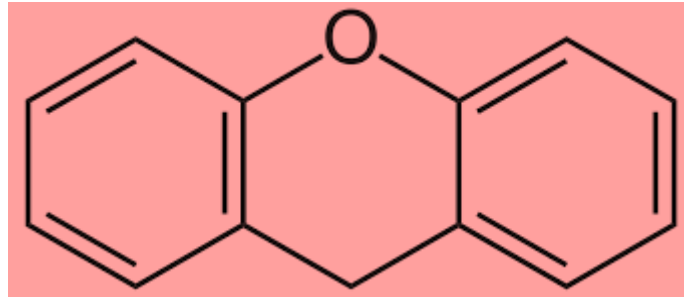


Figure I.4 : Structure d'un colorant xanthène

#### I.3.1.5. Colorants phtalocyanines

Les colorants phtalocyanines sont des pigments synthétiques utilisés dans l'industrie lors de la fabrication des encres. Ces pigments ont été développés durant les années 1930 et sont maintenant largement utilisés dans la production de peinture. Les phtalocyanines entrent également dans la composition des disques enregistrables (Löbber, 2000). Ce groupe des colorants est obtenu par la réaction du dicyanobenzène en présence d'un halogénure métallique (Cu, Ni, Co, Pt, etc) (Figure I.5) (Tebani, 2012; Saidi, 2013). La phtalocyanine de cuivre est considéré comme le plus utilisé et le plus stable dans cette classe des colorants (Guendouz, 2015).

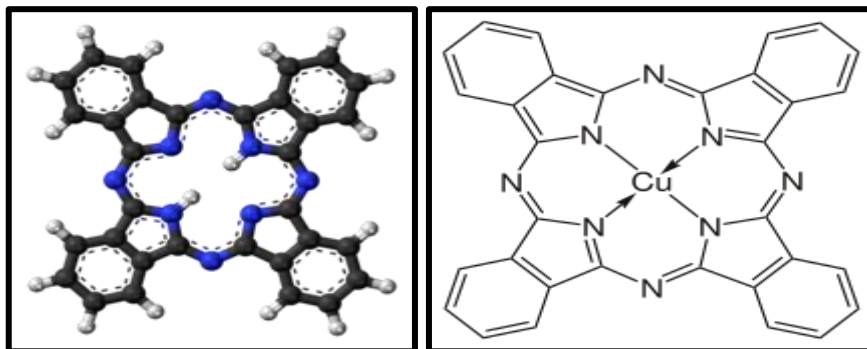


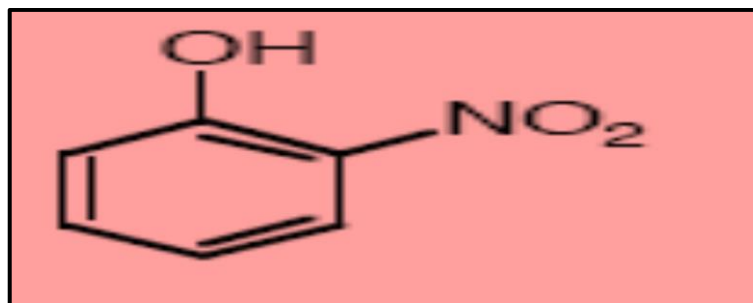
Figure I.5 : Structure d'un colorant phtalocyanine

#### I.3.1.6. Colorants nitrés et nitrosés

Ce groupe des colorants est obtenu par la réaction de dicyanobenzène en présence d'halogénures métalliques (Cu, Ni, Co, Pt, etc). Les colorants nitrés et nitrosés forment une classe des colorants très limitée et comparativement ancienne. Ces colorants sont

actuellement encore utilisés en raison de leur prix extrêmement abordable et de la simplicité de leur structure moléculaire (**Figure I.6**).

Les colorants nitrosés tirent leur appellation de la présence d'un ou de plusieurs groupes nitroso (-NO) dans leur molécule. Tandis que, les colorants nitrés sont caractérisés par la présence d'un ou plusieurs groupes nitro (-NO<sub>2</sub>) (**Myebeck, 1963**).



**Figure I.6** : Structure d'un colorant nitré et nitrosé

### I.3.2. Classification tinctoriale

Les fabricants des colorants sont intéressés par la classification chimique, tandis que les teinturiers préfèrent la classification par domaine d'application. Donc, les fabricants de ce type de colorant ils s'intéressent principalement à la solubilité des colorants dans le bain de teinture et à leur affinité pour différentes fibres textiles et au type de fixation (**Tebani, 2012**). Celle-ci est de force variable suivant que la liaison colorant - substrat est du type ionique, hydrogène, de Van der Waals ou covalente. Il existe différentes catégories tinctoriales définies cette fois par les auxochromes. Parmi lesquelles nous citons (**Ben Mansour et al, 2011**) :

#### I.3.2.1. Colorants de cuve

Les colorants de cette classe sont parmi les plus anciens (**Benamraoui, 2014**). Ils sont comme tous les colorants au soufre insolubles, ils doivent être convertis en leucodérivés par réduction alcaline possédant de l'affinité pour les fibres. Cette opération était autrefois appelée la préparation d'une cuve. Ensuite, le terme « **cuve** » a été étendu à l'ensemble des colorants applicables par ce procédé. Le plus connu est l'indigo (**Chetioui, 2010; Errais, 2011; Saidi, 2013**). La coloration se termine alors par la réoxydation in situ du colorant en une forme initialement insoluble. Les colorants de cuve sont toujours utilisés à cause de leur haute résistance aux produits de dégradation, à l'image de l'indigo utilisé pour teindre les jeans et les produits en denim, (**Figure I.7**). En 1921, une dérivée stable et soluble de l'indigo a pu être préparée et appelée

indigosol. Ce dernier a la propriété de colorer certaines fibres textiles et de régénérer la couleur indigo par oxydation. Toute une gamme des colorants de cuve peut être transformée de la même manière en dérivées solubles (Fassi, 2016).

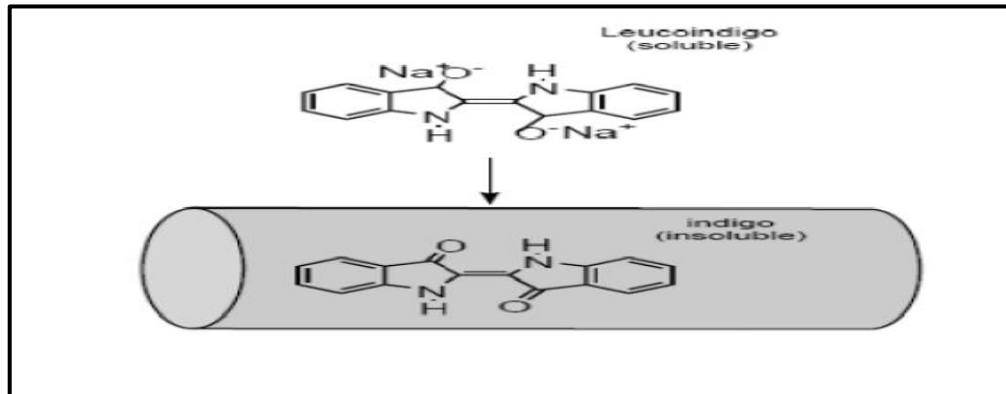


Figure I.7 : Colorant de cuve

### I.3.2.2. Colorants acides ou anioniques

Les colorants de cette catégorie se composent de chromophores (garant de l'effet de coloration) et de groupes sulfonates qui lui rendent très soluble dans l'eau (Figure I.8), ils peuvent être appliqués sur les fibres animales (laine et soie) et sur certaines fibres acryliques modifiées (nylon, polyamide) dans des bains légèrement acides. Les interactions de ce type de colorant avec les fibres reposent principalement sur la liaison ionique entre leurs anions sulfonates et les groupements ammonium des fibres textiles (Hao et al, 2000). Il faut également mentionner que cette classe des colorants est importante pour l'ombre (Amourache-Benazzouz, 2019).

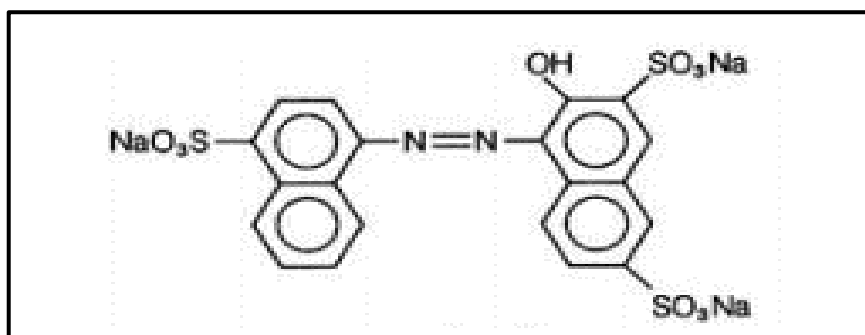


Figure I.8 : Structure d'un colorant acide/anionique



### I.3.2.3. Colorants réactifs

Ils dérivent cette appellation de leur mode de fixation sur la fibre car les molécules de ces colorants sont composées d'une fonction chimique réactive de type triazinique/vinyl sulfone qui assure une liaison covalente (colorant-substrat) (Naidja, 2010; Bessaha, 2017). Ce type de colorant est caractérisé par sa solubilité dans l'eau et de la présence des groupements chromophores issus principalement des familles azoïques, anthraquinonique et phtalocyanine (Lemlikchi, 2012). Ils sont utilisés essentiellement en teinturerie pour teindre les fibres cellulosiques et même celles d'origine animale. Les fibres polyamides peuvent également être teintées par une certaine catégorie des colorants réactifs (Shore, 1990; Errais, 2011).

### I.3.2.4. Colorants basiques ou cationiques

Les colorants cationiques, anciennement appelés colorants basiques, sont des colorants caractérisés par leur solubilité en eau à cause des sels d'amines organiques qu'ils contiennent. Ils sont utilisés en teinturerie pour teindre la laine en coloris pastel. Ils sont aussi parfois utilisés sur le coton, le papier, l'ancre, le polyester et le nylon modifié, ainsi que sur certains types de polyamides (O'Neill, 1999). Ces types des colorants appartiennent à des classes chimiques très différentes telles que, les dérivées azoïques, di et triphénylméthane. La liaison se fait essentiellement entre les sites cationiques du colorant et ceux anioniques de la fibre. Cependant, ces colorants ne peuvent pas être utilisés pour teindre des fibres naturelles, car ils n'ont pas une bonne résistance à la lumière. Au cours de la phase de la disparition de la teinture de la laine et de la soie, ce type des colorants bénéficient d'un accroissement d'intérêt avec l'apparition des fibres acryliques, sur lesquelles ils permettent des nuances très vives et résistantes (Figure I.9) (Attouti, 2013 ; Gouarir, 2017).

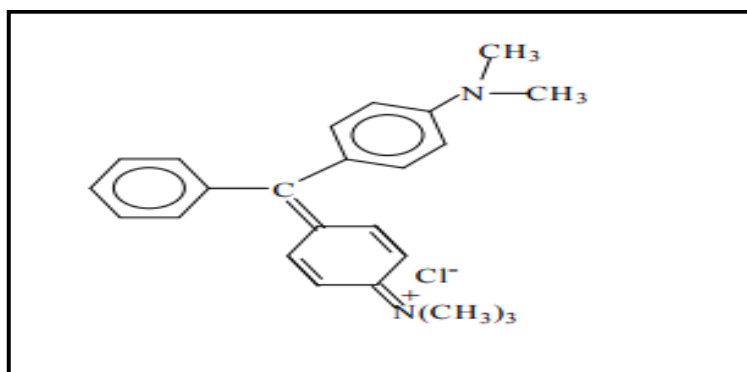


Figure I.9 : Colorant basique/cationique

### I.3.2.5. Colorants directs

Les colorants de cette classe sont nommés aussi "colorants substantifs", ils sont solubles directement dans l'eau et ils sont évidemment dangereux pour l'homme (Aboelfetoh et al, 2017; Gemeay et al, 2018). Ce type des colorants est capable de former des charges positives ou négatives électro-statiquement attirées par les charges des fibres (Errais, 2011; Chetioui, 2010). Ils sont caractérisés par leur haute affinité qui est due à leurs formes linéaires et à la coplanarité des noyaux aromatiques qu'ils permettent de teindre directement les fibres cellulosiques sans application de mordant qui est liée aux structures planes des molécules. A titre d'exemple le rouge Congo est un colorant direct capable de teindre directement le coton sans la participation d'aucun mordant. En addition, cette catégorie de colorant permette d'avoir une grande variété de coloris avec une application facile (Gouarir, 2017). Un exemple de la structure de ce type de colorant est illustré en (Figure I.10).

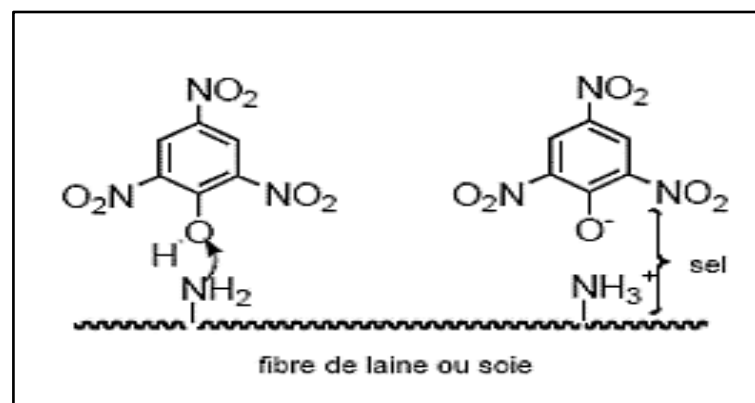


Figure I.10 : Colorant direct

### I.3.2.6. Colorants à mordants

Le colorant à mordant est un colorant soluble et leur fixation sur la fibre nécessite l'application d'un traitement de mordantage préalable à la teinture. Ce genre de traitement se réalise par le mordant qui est un composé chimique peut être un sel métallique ou un acide (sel d'aluminium, chrome, cuivre, nickel...). Le colorant se fixe sur le mordant au cours de la teinture ultérieure en formant un complexe très solide. Ce type de colorant forme des complexes avec les ions métalliques utilisés par l'intermédiaire de groupes d'oxydes de ces métaux. Durant le processus de teinture le complexe solide formé au préalable devient un complexe insoluble au sein des pores de la fibre, ce qui aide à fixer le colorant sur cette fibre, au lieu de former le complexe

métallique sur la fibre elle-même, ce qui augmente le nombre d'opérations à effectuer (Reffais, 2010; Amourache-Benazzouz, 2019). Un modèle de ce type de colorant est représenté par la (Figure I.11).

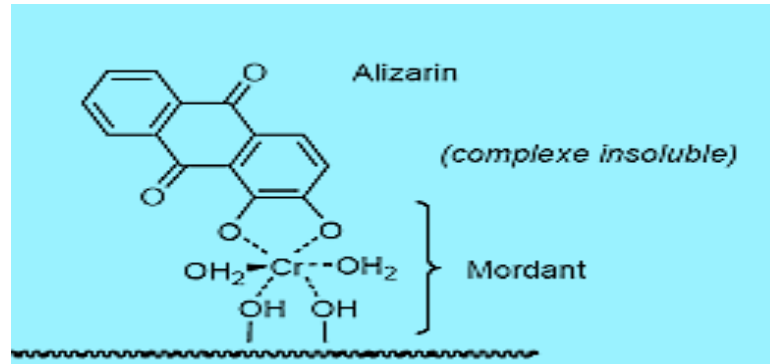


Figure I.11 : Structure d'un colorant à mordant

#### I.3.2.7. Colorants dispersés appelés aussi plastosolubles

Les colorants dispersés sont une sorte de colorant très peu soluble dans l'eau, ils sont appliqués sous forme d'une poudre fine dispersée dans les bains de teinture (des suspensions très fines de pigments organiques). Ces colorants sont habituellement azoïques ou nitrosés (jaune à rouge), anthraquinoniques (bleu et vert) ou métallifères (toutes les couleurs). Ils servent à teindre les fibres synthétiques telles que le polyester et plus rarement les polymères. Cette catégorie des colorants a été développée pour être en mesure, lors d'une teinture à un traitement thermique (haute pression et haute température), de diffuser dans les fibres adéquates s'y fixer (Frédérique, 2008 ; Gupta et Suhas, 2009 ; Bouafia, 2010 ; Errais, 2011 ; Saidi, 2013;).

#### I.4. Utilisation et application des colorants

Les colorants sont appliqués dans différents domaines tels que : (Bouanimba, 2014 ; Benhamouda, 2017) :

- ❖ L'industrie textile de la fourrure, du cuir (textile à usage vestimentaire), de décoration;
- ❖ Textile à usage médicale ... ;
- ❖ L'industrie des matières plastiques (pigments) ;
- ❖ L'industrie des bâtiments : peintures (pigments) ;
- ❖ L'industrie pharmaceutique (colorants) ;

- ❖ L'industrie des cosmétiques ;
- ❖ L'industrie agroalimentaire (colorants alimentaires) ;
- ❖ Diverses industries utilisées pour des carburants et des huiles ;
- ❖ L'imprimerie (encre, papier).

### I.5. Effluents textiles

L'industrie textile est un secteur de diverses activités industrielles, le **Tableau I.2** récapitule les différentes activités des entreprises textile et les effluents associés (Bouafia, 2010).

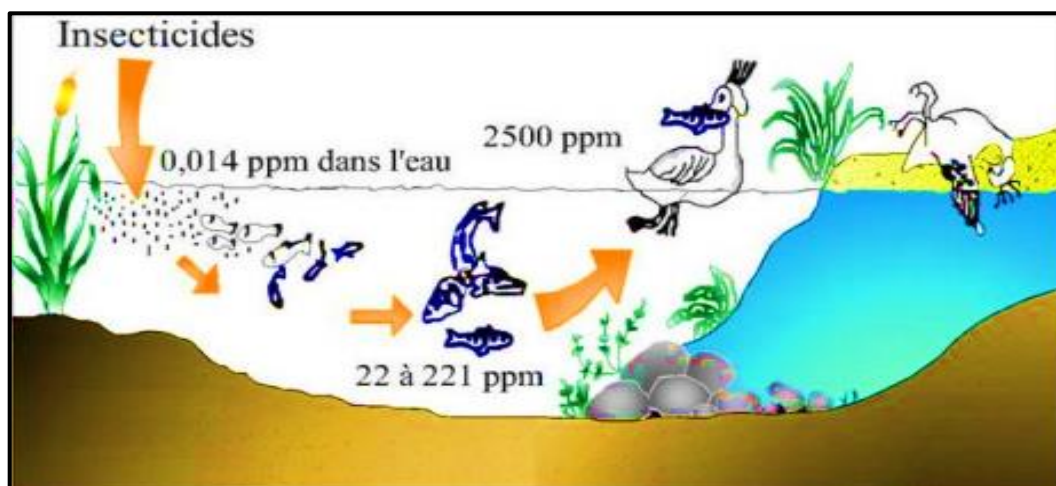
**Tableau I.2** : Différentes activités d'une entreprise textile et les effluents associés

Activités	Rejets associés
Préparation de la laine	Rejets liquides très chargés par la matière en suspension et la matière organique
Filature	Aucun rejet liquide (exception pour la filature du lin dite ouillée qui permet d'obtenir des fils fins : rejets équivalents à ceux provenant de la préparation de la laine). Rejets gazeux constitués essentiellement de poussières
Tissage/tricotage	Présence de poussière Présence d'agents d'encollage Mas faible consommation en eau, activité considérée comme peu polluante
Ennoblement : Pré-traitement (désencollage, désensimage, débouillissage, mercerisage)	Rejets contenant des huiles, des cires, de la soude, des détergents et des produits auxiliaires Les pré-traitements représentent 50% de la pollution organique liée à l'ennoblissement (surtout au niveau du désencollage).
Blanchiment	Eaux de blanchiment (présence d'organochlorés) 69 % du volume des effluents liés à l'ennoblissement.
Teinture	Essentiellement constitués d'eau, des colorants non fixés (colorants utilisés souvent insolubles dans l'eau). 12% du volume des effluents liés à l'ennoblissement.
Impression	Eaux d'impression : colorants (même type qu'en teinture mais en concentrations plus importantes), liants, adjuvants (fixation des colorants), épaississant (pour éviter le coulage de la couleur).
Apprêts chimiques	10% du volume des effluents liés à l'ennoblissement Eaux de vidange et de nettoyage des machines (produits chimique). 2% du volume des effluents liés à l'ennoblissement. Rejets gazeux

### I.6. Impact des colorants sur la santé humaine et l'environnement

Les industries textiles, et plus particulièrement les phases de teinture et d'ennoblissement, utilisent principalement des produits chimiques comme certains colorants. Généralement les colorants sont visibles dans l'eau à de très faibles concentrations, aussi faibles qu' 1 mg/L, où les effluents sont très colorés avec une teneur élevée en demande biologique en oxygène (DBO) et en demande chimique en oxygène (DCO), pour une conductivité et une alcalinité élevées. La décharge de ces effluents colorés dans l'environnement présente un risque écotoxique qui engendre une pollution des eaux de surface et des nappes phréatiques (impact dangereux sur l'environnement) et introduit un danger potentiel de bioaccumulation qui peut éventuellement affecter la santé de l'homme par leur grossissement dans la chaîne alimentaire.

La **Figure I.12** décrit le phénomène de bioaccumulation des insecticides



**Figure I.12 :** Conséquences de la bioaccumulation après déversement de substances toxiques (insecticides) dans un cours d'eau

#### I.6.1. Impacts dangereux sur la santé

La toxicité de différents types des colorants synthétiques a été étudiée par plusieurs chercheurs ([Hammami, 2008](#); [Bouanimba 2014](#)) à travers leurs études dont ils ont montré que les colorants aminés sont souvent aptes à :

- ❖ Etre mutagènes ;
- ❖ Etre génotoxiques ;
- ❖ Entraîner des cancers de la thyroïde ;

- ❖ Entraîner des tumeurs des glandes surrénales ;
- ❖ Contenir des substances cancérigènes ;
- ❖ Avoir des actions sur le système nerveux central ;
- ❖ Inhibition ou déficit de certaines enzymes ;
- ❖ Augmentation de la perméabilité intestinale.

### I.6.2. Impacts dangereux sur l'environnement

La pollution des eaux par les composés organiques en particulier les colorants est parmi les grands problèmes environnementaux qui se posent fréquemment à nos jours. Les colorants sont relativement persistants, résistent à la biodégradation par les microorganismes, mais sont beaucoup plus difficiles à dégrader que de nombreux autres contaminants organiques (Belhadj, 2011). Cette toxicité peut donc être liée à la réduction de l'oxygène dissout dans ces milieux. Par ailleurs, en raison de leurs poids moléculaires élevés et à leurs structures complexes, ils sont faiblement biodégradables et présentent donc un caractère toxique pouvant être élevé ou plus au moins faible (Gouarir, 2017). L'un des principaux problèmes environnementaux est la quantité assez importante des eaux résiduaires rejetées par les industries textiles (Guendouz, 2015). Le rejet de ces eaux résiduaires dans l'écosystème est une source dramatique de pollution (Belhadj 2011; Hammami, 2008). Il est important de noter également que les rejets de l'industrie textile peuvent créer d'une part, des dangers évidents tels que :

- L'eutrophisation ;
- Les perturbations non esthétiques des organismes aquatiques ;
- L'apparition des mauvais goûts ;
- Prolifération bactérienne ;
- Couleur, turbidité, odeur.

D'autre part, des dangers à long termes à savoir :

- Persistance est étroitement liée à sa réactivité chimique ;
- Bioaccumulation des colorants ;
- Effet cancérigène en particulier avec les colorants synthétiques qui ne sont pas toxiques directement alors que leur leuco dérivés possèdent des effets mutagènes, tératogène ou cancérigène, ces derniers apparaissent après une dégradation de la

molécule initiale en sous-produits d'oxydation : amine cancérigène pour les azoïques et leuco-dérivé pour les triphénylméthanés (**Attouti 2013**).

### I.7. Situation de l'industrie textile en Algérie

L'industrie textile en Algérie est l'une des industries les plus anciennes dont la première société créée dans ce domaine est SONAC (1966). Les entreprises Algériennes résistent encore aux contraintes liées aux effets des importations massives, détiennent moins de 10% du marché national. Le secteur se trouve dans la second position après le secteur Agro-alimentaire, vis-à-vis son importance et notamment sa forte consommation locale dont les besoins des citoyens algériens sont de l'ordre de 150 millions d'articles annuellement sachant que la production nationale couvre seulement 4% de ces besoins. (<http://www.textyle-expo.com/textile-algerie.php>)

Selon (**Bouafia, 2010; Guendouz, 2015**), l'industrie du textile consomme environ 4012 tonnes/an de colorants et pigments ainsi que plus de 16500 tonnes/an de produits chimiques auxiliaires ; l'alimentation en eau des unités de cette industrie à partir des réseaux de distribution publics dépasse les quatre millions de m<sup>3</sup>/an ce qui génèrent des quantités énormes d'effluents colorés.

### I.8. Traitements des rejets textiles

Les grands avantages techniques et économiques de l'industrie, à cause de leur bénéfice économique, ne nous empêchent pas à prendre en considération leurs inconvénients sur le milieu récepteur. L'industrie textile est parmi les industries qui génèrent beaucoup de déchets organiques. Ces effluents sont saturés en polluants organiques et présentent de forts taux de la demande chimique en oxygène (DCO), carbone organique total (COT) ce qui pose un double problème environnemental sur le plan esthétique et toxicologique. Parmi ces déchets organiques, les colorants et certains dérivés tensioactifs difficilement dégradables (auxquels on substitue de plus en plus d'autres produits plus facilement biodégradables) (**Benaissa, 2011**). Le déversement des effluents chargés en colorants dans les milieux aquatiques constitue un énorme problème (**Bentahar, 2016**). Engendrant ainsi des perturbations importantes des différents mécanismes naturels existant dans la flore (**Guendouz, 2015**).

### I.9. Procédés de traitement des eaux usées de l'industrie textile

Le traitement des rejets de l'industrie textile, compte tenu de leur hétérogénéité de composition, conduira toujours à la conception d'une chaîne de traitement qui nous assure l'élimination des différents polluants passant par des étapes successives. La première étape consiste à éliminer la pollution insoluble par l'intermédiaire du prétraitement (dégrillage, dessablage, déshuilage) et/ou des traitements physiques ou physico-chimiques assurant une séparation solide/liquide (Gupta, et Suhas, 2009). On adapte des techniques de dépollution pour traiter ces eaux et éliminer toute matière toxique et polluante. Plusieurs techniques sont actuellement bien maîtrisées à l'échelle du laboratoire et appliqués à grande échelle (Bousnoubra 2017). Certains chercheurs (Barclay et Buckley, 2000 - Kurbus et al, 2002) ont démontré par leurs études l'efficacité de certains systèmes technologiques pour l'élimination des polluants organiques tels que les colorants. Ces techniques sont divisées en trois types :

- **Physico-chimiques**

- Coagulation-floculation

- Précipitation /Sédimentation

- Adsorption sur des matériaux poreux

- Filtration membranaire

- Incinération

- **Chimique**

- Oxydation ordinaire par l'ozone, chlore gaz ou bien l'hypochlorite de sodium

- Oxydation avancé (eau oxygène)

- Résine échangeuse d'ions.

- **Biologique**

- Traitement aérobie ;

- Traitement anaérobie.

Dans ce chapitre, nous essaierons de couvrir quelques procédés appliqués dans le but de la décoloration des effluents industrielles particulièrement ceux de textiles.

#### I.9.1. Coagulation-Floculation

Le terme coagulation- floculation est une technique ou processus physico-chimique par lequel des particules colloïdales ou des solides en fine suspension/matières en



suspension (MES) sont transformés, à l'aide des coagulant et flocculant chimiques en espèces plus visibles et séparables (les flocs) (Shi et al, 2007 ; Bouafia, 2010). La coagulation est la déstabilisation de particules colloïdales par addition d'un réactif chimique appelé coagulant. Alors que, la floculation est l'agglomération de particules déstabilisées en microflocs et ensuite en flocons plus volumineux que l'on appelle flocs. Une simple décantation ou une étape de flottation permet ensuite l'élimination des flocs formés. Les sels les plus utilisés dans ce processus comme coagulant sont le sulfate d'aluminium ( $Al_2(SO_4)_3$ ) ou le chlorure ferrique ( $FeCl_3$ ). Les coagulants inorganiques tels que l'alun donnent les résultats les plus satisfaisants pour la décoloration des effluents textiles (Gouarir, 2017). La coagulation-floculation est souvent appliquée pour le traitement des eaux usées de l'industrie textile pour enlever davantage la demande chimique en oxygène et la couleur avant d'un traitement biologique (Mishra et Bajpai, 2006).

Nous allons développer ce procédé dans le chapitre II de la synthèse bibliographique.

### I.9.2. Adsorption

L'adsorption est un procédé d'élimination des polluants organiques ou minéraux présents dans des effluents aussi bien liquides que gazeux, par la fixation des molécules ou d'ions à la surface d'un corps solide appelé adsorbant (Gupta et Suhas, 2009). Ce procédé peut s'effectuer sur un charbon actif ou sur d'autres matériaux poreux. Durant l'adsorption, le polluant est transféré de la phase liquide vers la phase solide. Plusieurs modèles théoriques ont été élaborés pour décrire les mécanismes de ces phénomènes (Naidja, 2010). Le charbon activé est l'adsorbant le plus communément utilisé pour la réduction de la couleur, mais il reste très onéreux et nécessite en plus une régénération (Danis et al, 1998).

### I.9.3. Filtration membranaire

Est un procédé destiné à clarifier un liquide qui contient des matières en suspension (MES) à travers un milieu poreux constitué d'un matériau granulaire. Dans ce procédé on trouve : la microfiltration, l'ultrafiltration, la nanofiltration et l'osmose inverse. Parmi ces quatre types, la nanofiltration et l'osmose inverse sont les plus adaptés à la réduction partielle de la couleur et des petites molécules organiques. L'osmose inverse reste la technique la plus répandue (Hammami, 2008) alors que la nanofiltration

s'applique particulièrement au traitement des bains de teinture des colorants réactifs en agissant comme un filtre moléculaire tandis que la microfiltration retient les matériaux colloïdaux tels que les colorants dispersés ou de cuve (Guendouz, 2015). L'ultrafiltration ne s'applique qu'à la réduction de la DCO et des solides en suspension, et ne se montre réellement efficace qu'en combinaison avec la coagulation/floculation. Ces procédés restent très limités dans leurs applications car ils nécessitent des investissements importants (Harrelkas, 2008).

#### I.9.4. Oxydation

Littérairement, les techniques d'oxydation chimiques sont fréquemment appliquées pour : Le traitement des polluants organiques dangereux présents en faibles concentrations, le prétraitement avant les procédés biologiques pour diminuer la charge polluante. Le traitement des eaux usées chargées et le post-traitement pour réduire la toxicité aquatique (Hemsas, 2008). Les réactifs les plus souvent cités pour ce type de traitement sont l'ozone et le chlore. L'ozone est un oxydant fort dont son application pour le traitement des polluants organiques et inorganiques est bien établie (Mohan et al, 2007).

Principalement les résines échangeuses d'ions qui représentent la classe des polymères greffés. Cependant, il est important de savoir qu'il existe d'autres matériaux : certains sont naturels, comme les échangeurs minéraux tels que les aluminosilicates ou les zéolithes. La réaction d'échange est généralement une réaction équilibrée de la forme:



Où R représente la résine, A et B sont des ions échangés (nous les appelons alors de contre-ions), a et b représentent respectivement les valences des ions A et B. Si la résine échange des cations, on parle d'une résine cationique, et si ce sont des anions qui sont échangés, on parle alors de la résine anionique (Monzie, 2003).

Les résines sont donc utilisées pour le traitement d'eau industrielle et domestique, la production d'eau ultra pure dans l'industrie électronique, dans les applications alimentaires et pharmaceutiques, comme catalyseur dans différents procédés industriels et pour le traitement des effluents.

### I.10. Conclusion

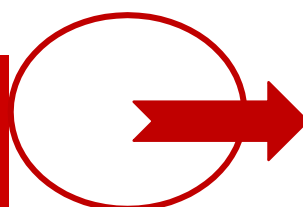
Le présent chapitre nous a permis de donner une revue bibliographique sur les colorants synthétiques et leur classification selon, la structure chimique et le domaine d'application, on a indiqué aussi qu'ils sont considérés parmi les éléments indispensables dans l'industrie moderne. Ils sont largement utilisés à cause de leur important rôle dans la production de divers produits colorés. Ces produits chimiques sont la base de la teinture, où la finalisation de cette dernière nécessite une énorme consommation d'eau. Engendrant à la sortie des industries des grandes quantités des eaux usées chargées. Ces eaux peuvent provoquer une perturbation du milieu récepteur, provoquent des effets indésirables sur la santé humaine et le milieu aquatique. Elles présentent aussi, des grands problèmes environnementaux lorsqu'elles sont rejetées dans la nature sans subir un traitement préalable. De là, on a décrit qu'il est nécessaire et indispensable de trouver une ou des méthodes pour éliminer à un pourcentage plus au moins acceptable ces polluants, Dans ce chapitre on a essayé d'évoquer les différents procédés de traitement appliqués et/ou conseillés/recommandés pour l'élimination ou la dégradation des effluents textiles.

Cependant, le choix d'un traitement dépend principalement de la nature des matières polluantes des eaux industrielles. Au cours de cette synthèse bibliographique, nous nous sommes aussi intéressés au traitement des colorants par le procédé coagulation-floculation et on va démontrer leur efficacité pour le traitement des rejets textiles dans la deuxième partie de ce travail. Afin de mieux comprendre les étapes du procédé de la coagulation-floculation que nous avons adopté comme un procédé de décoloration, il apparaît intéressant de faire quelques rappels dans le chapitre II de cette partie bibliographique concernant ce procédé de traitement passant par des définitions, la mise en œuvre de cette technique et en finissant par quelques paramètres qui influencent la coagulation- floculation.

# *Partie I : Partie Bibliographique*

## **Chapitre II :**

### **Description générale de la Coagulation-floculation et son effet sur l'élimination des colorants**



## II.1. Introduction

Il est bien connu aujourd'hui que les rejets industriels sont toxiques et nécessitent une technique de dépollution adaptée. Différents procédés de traitement utilisés dans la dépollution des eaux usées chargées par les colorants. Parmi ces différentes techniques de traitement appliquées dans ce domaine, notre choix a opté pour la combinaison coagulation-floculation qui sont deux techniques conçues pour optimiser la dégradation et ou l'élimination de la pollution organique et minérale. En conséquence, la coagulation-floculation est un traitement physico-chimique qui permet d'éliminer tous ou une partie des polluants des effluents notamment les fractions particulières inertes ou vivantes.

Dans ce contexte, l'objectif principal de ce chapitre est d'effectuer une description générale sur la combinaison coagulation-floculation dont les principaux titres vont décrire ce procédé, tout on insistera en premier lieu sur une description générale du procédé de la coagulation-floculation et la théorie de la double couche. En deuxième lieu nous décrivons les différents paramètres liés et ayant une influence sur le procédé de la coagulation-floculation, la mise en œuvre du processus, la description du banc de JAR-TEST, les réactifs utilisés et exploités dans cette technique de traitement. Pour aboutir à notre objectif, un aperçu sur les travaux qui ont été réalisés et qui ont pour but l'élimination des colorants par coagulation-floculation va être également cité. Signalant que cette partie, elle est réservée principalement pour citer les principaux résultats obtenus par les chercheurs et les mécanismes qui ont été enregistrés.

## II.2. Différents états des constituants de l'eau

Les composés retrouvés dans l'eau et ayant les possibilités d'être éliminables par le procédé de la coagulation-floculation sont généralement regroupés dans trois catégories.

### II.2.1. Matières en suspension (MES)

La turbidité et la couleur d'une eau sont principalement causées par des particules très petites nommées les particules en suspension qu'elles proviennent principalement de l'érosion de terre, de la dissolution de substances minérales, notamment de la décomposition de substances organiques. Ainsi que les déversements d'eaux d'égouts domestiques, industriels et agricoles, (Dejardins, 1997). Elles donnent également à l'eau une apparence trouble, une mauvaise odeur, dans les eaux de surface, elles sont des formes hétérogènes et d'origines variées. Dans les eaux de forage, ce sont le sable fin, le fer oxydé et quelquefois des algues filamenteuses (Berne et Cordonnier, 1991). Les matières en suspension ou les particules ont la propriété

d'être en suspension dans l'eau pour une très longue durée du temps. Sachant que, toute particule parmi eux peut être en principe sédimentée ou décantée sous l'effet de la gravité portant la vitesse de chute qui dépende particulièrement de la taille et de la densité des particules, ainsi que de la température de l'eau (Rodier, 1959).

### II.2.2. Colloïdes

Les colloïdes sont des constitutions de nature organique ou inorganique caractérisées par une structure et propriété supramoléculaires, c'est-à-dire, des changements conformationnels pour les colloïdes organiques ainsi que, l'existence d'un champ électrique de surface pour les colloïdes inorganiques (Hecini, 2008). Un colloïde est une particule dont la dimension est inférieure au micromètre ( $\mu\text{m}$ ). Par conséquent leur sédimentation est dextrement difficile à cause de leurs faibles vitesses de chute, qu'elle est pratiquement nulle (Vigouret, 1985). Ces particules possèdent une charge de surface négative (Jankovic, 1974). Cette charge est caractérisée par le *Potentiel Zéta*, qu'il est créé essentiellement de l'ensemble stable (particule+ double couche) (Vigouret, 1985).

Les particules colloïdales sont fréquemment d'origine minérale (sable, limons, argiles, oxydes, sels insoluble) ou organique (produits de la décomposition des matières végétales ou animales, acides humiques ou fulviques, microorganismes, amas protéiniques, ou des agrégats organo-minéraux floculés) (Rodier et al, 1959; Bouaouine, 2018). À ces composés s'ajoutent les microorganismes tels que les virus. Ces substances sont responsables, en particulier de la turbidité et de la couleur des eaux (Hecini, 2016).

### II.2.3. Matière organique dissoute

La matière organique dissoute constitue la forme la plus abondante de la matière organique dans les systèmes aquatiques. Elle représente la fraction qui traverse un filtre dont la porosité est définie opérationnellement. La porosité du filtre typique est de  $0,45 \mu\text{m}$ . En pratique, cette porosité tend à varier entre  $0,1$  et  $1,2 \mu\text{m}$ . Cependant, il est bien connu que la matière organique dissoute présente dans le milieu aquatique en particulier, les eaux de surface proviennent de la dégradation des plantes et de la pollution anthropique à savoir les rejets des eaux résiduaires (colorants, produits médicamenteux,...) (<https://www.aquaportail.com/definition-14638-matiere-organique-dissoute.html>).

### II.3. Coagulation-floculation

Rappelant que La coagulation-floculation est un procédé de traitement physico-chimique, utilisé pour le traitement de potabilisation ou le traitement d'eau usée résiduaire.

#### II.3.1. Théorie de la coagulation-floculation

L'agrégation des particules fines et des colloïdes en particules plus grosses est un moyen bien établi pour l'élimination de la turbidité, la couleur et d'autres matières organiques et polluants inorganiques dans les stations de traitement et d'épuration (Mihai, 2008). Le traitement des eaux se fait principalement dans le but d'éliminer ces agrégations, la coagulation est parmi les méthodes d'élimination dont le mot coagulation est dérivé du mot latin **coagulare** qui signifie « agglomérer » (Hanif, 2021).

La coagulation/floculation est l'une des méthodes de traitement les plus efficaces qui assure cette agrégation (Butani, 2017; Zonoozi, 2009). Elle est considérée comme une étape principale lors de la clarification des eaux destinées à la potabilisation (Bouaouine, 2018). C'est donc un traitement qui permet d'éliminer tous ou une partie des polluants des effluents notamment les fractions particulaires inertes ou vivantes, les fractions floculables des matières organiques et de certains métaux lourds, les micropolluants associés aux matières en suspensions (MES) et les macromolécules colloïdales (Lakhdari, 2011).

Ces deux étapes sont effectuées sous agitation contrôlée, l'intensité du mélange étant la plus souvent caractérisée par le gradient moyen de vitesse  $G$  (énergie moyenne dissipée par unité de volume) et le temps de mélange ( $t$ ). Généralement, la coagulation est obtenue sous une agitation rapide ( $G = 100$  à  $1000 \text{ s}^{-1}$ ) pendant un temps relativement court ( $t = 3$  secondes à **20 minutes**) (Degremont, 2005). La coagulation des suspensions colloïdales débute par l'ajout d'un sel métallique hydrolysable nommé coagulant (Elasmarani, 2003). Ce dernier est de sels de fer ou d'aluminium. Cet agent chimique ajouté au milieu des éléments solubles ou colloïdaux apporte une neutralisation et une certaine réduction de la charge de surface de ces particules solides. Les colloïdes des eaux naturelles sont en moyenne chargés négativement et donc déstabilisés par la présence de formes cationiques (Bouaouine, 2018), alors que la floculation se déroule sous une agitation lente ( $G = 10$  à  $100 \text{ s}^{-1}$ ), pendant une durée plus longue (**5 à 20 minutes**). Pendant, cette agitation la floculation favorise à l'aide de ce mélange lent, les contacts entre les particules déstabilisées. Ces particules s'agglutinent pour former un floc qu'on pourra facilement l'éliminer. Une étape de décantation permet par la

suite de séparer les phases précipitées et floculées du surnageant et par conséquent d'éliminer le polluant piégé au cœur de ces phases (Pallier, 2008). Cette opération réduit non seulement la teneur initiale en matières en suspension particulaire mais aussi la concentration des composés dissous. L'efficacité de ce procédé dépend de différents paramètres liés à la qualité de l'eau et à la mise en œuvre du traitement (Khelili, 2016).

La Figure II.1 illustre la formation et l'agglomération des floccs après l'ajout du coagulant lors de l'opération de la coagulation-floculation.

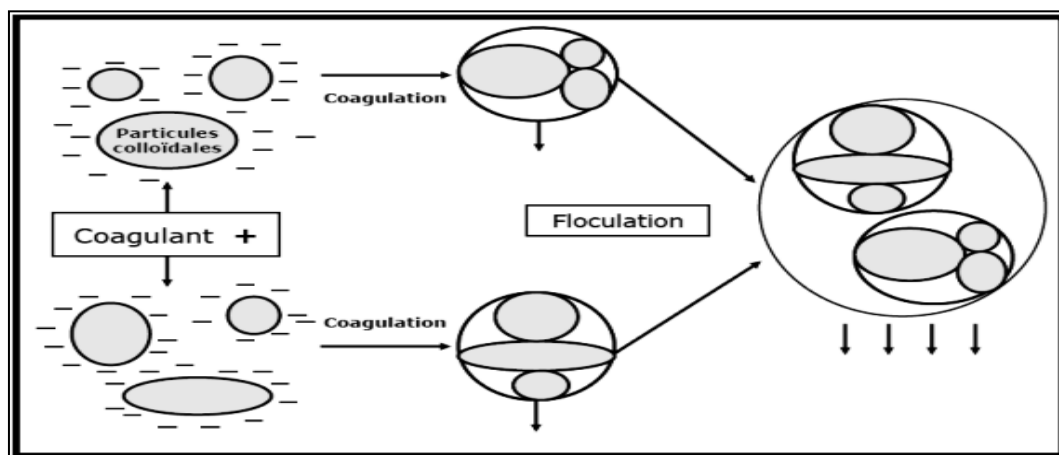


Figure II.1 : Description du phénomène de coagulation-floculation  
(Cité dans Valentin, 2000 ; Harrat, 2013).

### II.3.2. Théorie de la double couche

D'une manière générale les colloïdes sont caractérisés par une charge négative située à leur surface. La neutralisation de cette charge dont le but est l'élimination de ces particules, nécessite des ions positifs qui se trouvent dans les eaux brutes ou ajoutés (Lakhdari, 2011). Le rôle principal de ces ions est d'attirer les ions négatifs des particules colloïdales, ce système ionique forme par la suite une couche autour des colloïdes (Figure II.2). Selon (Buffle et al, 1998) ce phénomène est étudié se forme des théories (cités dans Lakhdari, 2011 ; Amimeur, 2018) :

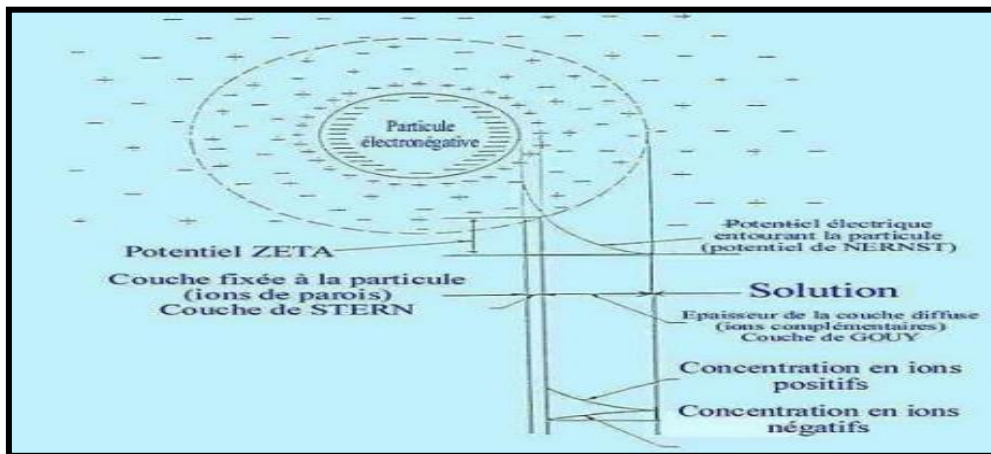
**Théorie de Helmholtz :** supposant que la première couche est constituée d'ions positifs fixés et recouvre intégralement la surface du colloïde aussi, elle assure la neutralisation de l'ensemble. Encore appelée couche fixe son épaisseur est faible.

**Théorie de Gouy-Chapman :** une couche d'ions positifs est inégalement répartie autour du colloïde ; la neutralité est obtenue à une plus grande distance. Cette couche est appelée couche

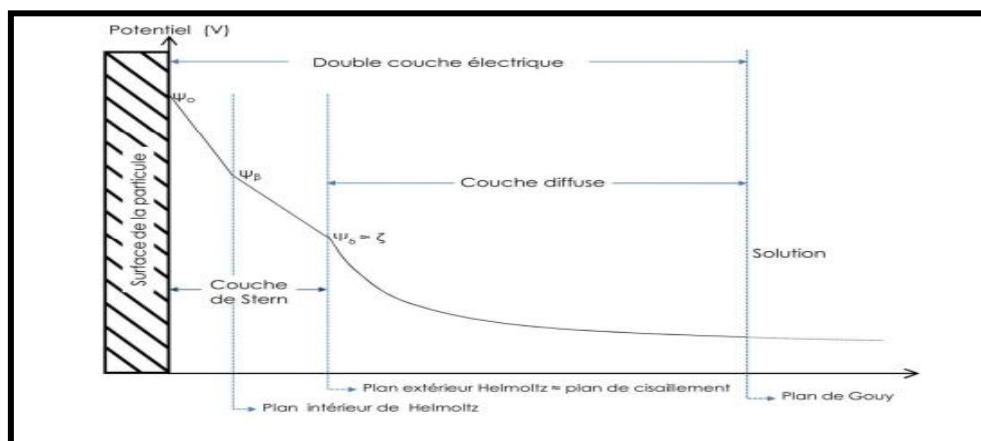


diffuse, est composée d'ions (co-ions et contre-ions) dont la distribution est déterminée à la fois par les interactions électrostatiques avec la surface de la particule et les mécanismes de diffusion liés à l'agitation thermique. Cette diffusion tend à rétablir l'équilibre ionique entre la couche diffuse et la solution.

**Théorie de Stern** : cette théorie combine les deux théories précédentes et considère la formation d'une double couche : la première formée d'ions du liquide mais adhérente au colloïde, la seconde diffuse dans le liquide environnant. Comme illustré dans la **Figure II.3**, le potentiel subit une première chute significative dans la couche fixée. Puis diminue plus lentement à mesure que la distance augmente jusqu'à son annulation au point A (point isoélectrique).



**Figure II. 2** : Distribution ionique autour d'une particule colloïdale (d'après le modèle de Gouy-Chapman-Stern (Cardot, 1999))



**Figure II. 3** : Modèle de Stern-Gouy-Chapman, montrant l'arrangement ionique en double couche et l'évolution du potentiel électrique de la surface de la particule vers la solution (Dihang, 2007)

### II.3.3. Potentiel Zêta

Par définition c'est le potentiel à la surface de cisaillement, il dépend de la force ionique de la solution (Dihang, 2007) et il représente la charge électrique qu'une particule prend grâce au nuage d'ions, qui l'entourent quand elle est en suspension dans une solution, dont la mesure du potentiel zêta de cette particule fournit un indicateur efficace de la stabilité (Bouaouine, 2018 ; Holt et al, 2002). Il se situe à la limite extérieure de la couche et il définit le comportement électrocinétique des particules, il persiste quand la particule se déplace. Ce déplacement des particules vers l'électrode positif se fait quand le potentiel de ces particules ayant une charge négative (Desjardins, 1999). Ce qui provoque une stabilité au niveau des colloïdes. Donc une diminution du potentiel zêta est nécessaire sachant qu'elle est liée principalement à la compression de la double couche électrique sous l'action de la force ionique dont le potentiel zêta se diminue par l'ajout d'électrolytes. Il est lié à leur concentration dont à une certaine concentration, le potentiel atteint une valeur nulle (Bensadok, 2007). Donc l'objectif de la coagulation, est l'annulation de ce potentiel, par conséquent, une fois le potentiel est devenu nul, les particules se déstabilisent et être capable de s'agglomérer en formant des floes (Desjardins, 1999).

#### II.3.3.1. Mesure expérimentale du potentiel Zêta

La mesure du potentiel zêta effectuée sur les particules colloïdales. Elle se détermine expérimentalement dont le but principal est de calculer la distribution réelle du potentiel (Pallier, 2008). Ce calcul peut se réaliser par plusieurs méthodes, dont les techniques électrocinétiques sont les plus exploitées. Elles sont caractérisées par le pouvoir de créer un déplacement tangentiel des phases solides aux cellules liquides. Parmi ces techniques on trouve (Khouss, 2010 ; Hunter et al, 2001) :

- L'électrophorèse (zêta-métrie) ;
- Le potentiel d'écoulement ;
- L'électro-osmose
- Le potentiel de sédimentation.

### II.3.4. Mécanismes de la coagulation-floculation

D'une manière générale, les particules en suspension ne déstabilisent pas facilement à cause de leur charge électrique ainsi des caractéristiques de la couche d'eau qu'en entoure (Desjardins, 1997) dont cette dernière agit à séparer les colloïdes les uns des autres en

résultant la stabilité des particules colloïdales et pour avoir y déstabiliser, il faut que les forces attractives, qui sont principalement celles de Van Der Waals, soient supérieures aux celles de répulsion (Khou, 2010). La déstabilisation de ces particules se fait essentiellement par quatre mécanismes et qui sont (Desjardins, 1997 ; Harrat, 2013 ; Amimeur, 2018) :

- Réduction de l'épaisseur de la couche ionique (Compression de la double couche) ;
- Neutralisation des charges ioniques (Adsorption et Neutralisation) ;
- Pontage entre les particules (Adsorption et pontage) ;
- Piégeage des particules (Emprisonnement).

#### II.3.4.1. Réduction de l'épaisseur de la couche ionique

Les forces de répulsion sont le premier responsable de la stabilité des particules colloïdales grâce à l'effet du potentiel de répulsion sur la distance existante entre chaque deux particules semblables, et pour avoir l'agglomération de ces particules, il faut réduire ce potentiel par l'augmentation de la force ionique (Desjardins, 1997), dont cette considérable augmentation de la force ionique résulte la réduction de certaines caractéristiques de la double couche à savoir le volume et l'épaisseur. Par conséquence, cette action engendre un abaissement remarquable au niveau des forces de répulsion. Par contre, les forces d'attraction de Van Der Waals ne subissent plus à l'effet de ce changement engendré par les caractéristiques de la solution. La force ionique est décrite par l'équation ci-après (Bensadok, 2007) :

$$F = \frac{1}{2} \sum C_i Z_i^2 \quad (2)$$

D'où :

F : Force ionique ;

$C_i$  : Concentration de l'ion i (mol/L) ;

$Z_i$  : valence de l'ion i.

#### II.3.4.2. Neutralisation des charges ioniques

Ce type de mécanisme consiste à ajouter un agent chimique (coagulant/hydrolyse) cationique pour avoir neutralisé les charges négatives des colloïdes. Elle repose sur l'ajout suffisant des cations afin de neutraliser la charge négative des particules stables. Ce mécanisme de coagulation ne se rencontre qu'en pH acide (<5,5) où les espèces dominantes du coagulant

sont chargées positivement (Achak et al, 2008). La neutralisation se fait par l'adsorption des cations par les surfaces de ces particules (Bensadok, 2007) plus précisément au niveau de la couche de Stern. Sachant que, parmi les quatre mécanismes de coagulation, seule la neutralisation des charges est affectée négativement par dosage du coagulant en raison de la relation stœchiométrique existante entre le coagulant et les particules colloïdales (Choy et al, 2015). En effet, si la dose du coagulant est insuffisante l'élimination n'attendra pas le taux maximum, par contre, le dosage excessif de coagulant engendre une adsorption trop importante de cations et fait inverser la charge des particules qui devienne positive et qui se restabilisée à nouveau (Bouaouine, 2018).

Il est donc essentiel de déterminer la gamme optimale du dosage de coagulant requis pour atteindre des éliminations maximales, ce mécanisme est illustré dans la Figure II.4.

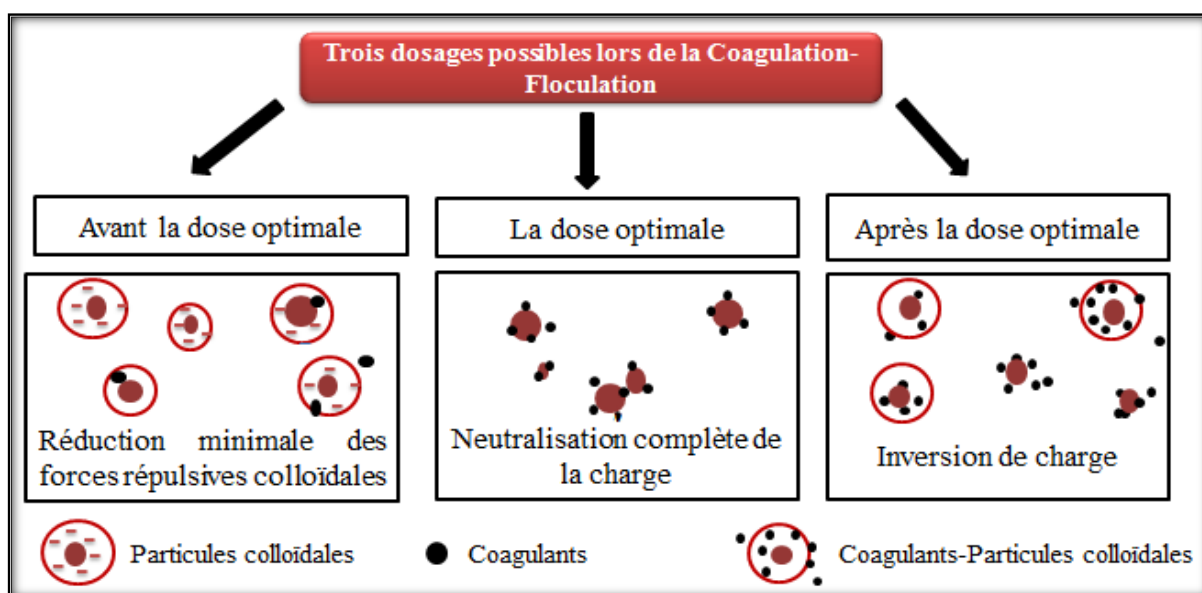
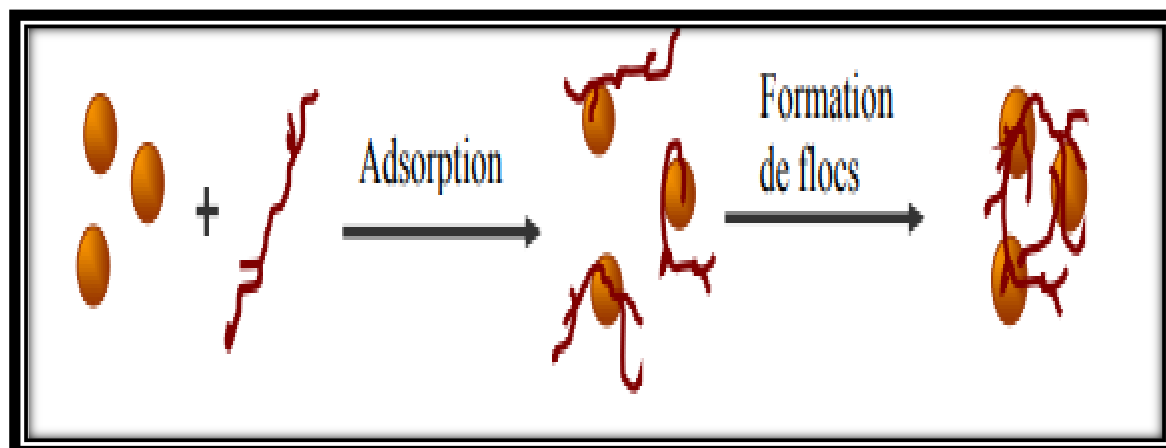


Figure II.4 : Effet de la neutralisation des charges sur les colloïdes lors la coagulation-floculation (Cité dans Choy et al, 2015)

### II.3.4.3. Pontage entre les particules

L'élimination des particules chargées négativement peut se faire par l'ajout d'un polymère, ce traitement est classé parmi ceux les plus économiques vu les caractéristiques des polymères utilisés, dont ils sont constitués par des groupes chimiques capables à adsorber les colloïdes par l'une de leurs extrémités (Khou, 2010), alors que l'autre est libre et peut adsorber autres particules (Figure II.5). Ce phénomène électrique nommé «le pontage» dont l'agglomération se réalise par la formation des ponts des polymères entre les particules colloïdales (Desjardins, 1997). Le pontage des polymères entre les particules nécessite des quantités de

polymère bien étudiées, par revanche, l'excessive des concentrations de polymère peut restabiliser les particules colloïdales (Lagaly et Ziesmer, 2003).



**Figure II.5 :** Adsorption et pontage des particules par les polymères (cité dans Bensadok, 2007)

#### II.3.4.4. Piégeage des particules

La charge du coagulant n'est pas un élément important dans ce mécanisme qu'il est concerné particulièrement par les suspensions très concentrées initialement et par la forte charge colloïdale d'hydroxyde métallique (Bouaouine, 2018). La déstabilisation des particules colloïdales peut s'achever par leur emprisonnement, en ajoutant des coagulants qui sont généralement des sels des métaux trivalents ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$  ;  $\text{FeCl}_3$ ), une quantité suffisante de l'un de ces derniers conduit à une formation des floccs qui apparaissent souvent sous forme de précipitation. Par la suite, les particules sont entraînées lors de la décantation (Desjardin, 1997 ; Khouss, 2010), le pH des solutions doit être dans un intervalle correspondant au minimum de la solubilité des sels injectés (Zongo, 2009). La Figure II.6 illustre bien ce qui se passe lors de ce mécanisme.

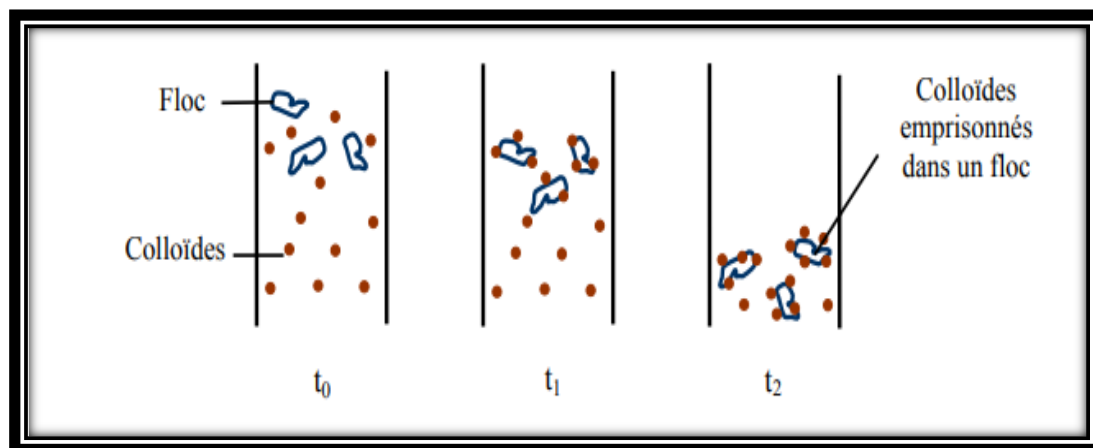


Figure II.6 : Emprisonnement des particules dans les floes (Tchobanoglous et Schroeder, 1987)

### II.3.5. Réactifs chimiques utilisés dans le procédé de la coagulation-floculation

#### II.3.5.1. Coagulants

Le coagulant est un produit chimique caractérisé par son efficacité dont l'injection de tels coagulants aux solutions engendre un échange au niveau des charges superficielles des colloïdes (Bottero et Lartiges, 1993). Ce réactif puisse déstabiliser les particules colloïdales par leur neutralisation et y faire agglomérer sous forme des floes qui vont décanter par la suite (Valentin, 2000). Le coagulant est couramment de nature des sels hydrolysables, les sels d'aluminium (Sulfate d'aluminium ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3, n\text{H}_2\text{O}$ )) et les sels de fer (Chlorure ferrique ( $\text{FeCl}_3, 6\text{H}_2\text{O}$ )). Ces deux coagulants sont les plus exploités, ils ont une grande performance et un rôle indispensable lors de la coagulation-floculation (Goudjil et al, 2021), grâce à leurs caractéristiques dont l'hydroxyde de l'aluminium, par exemple, influence le procédé d'une manière direct par sa nature et sa charge. La coagulation est liée au pH des milieux et à d'autres paramètres à savoir, la température, la dose du coagulant et le temps d'agitation,... Etc (Duan et Gregory, 1996).

D'après (Degrement, 1989 ; Amokrane, 1997), les principaux coagulants utilisés pour déstabiliser les particules colloïdales et favorisent la formation des floes autres que le sulfate d'aluminium ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ ) et le chlorure ferrique ( $\text{FeCl}_3$ ) sont :

- L'aluminate de sodium  $\text{NaAlO}_2$  ;
- Le chlorure d'aluminium  $\text{AlCl}_3$  ;
- Le sulfate ferrique  $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$  ;
- Le sulfate ferreux  $\text{FeSO}_4$  ;

- Le sulfate de cuivre  $\text{CuSO}_4$  ;
- La chaux  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ .

#### II.3.5.1.1. Rôle du coagulant (Pallier, 2008)

- Déstabiliser la suspension colloïdale en pénétrant la double couche pour s'adsorber spécifiquement dans la couche de Stern ;
- Le coagulant cationique augmente la charge du potentiel Zéta qu'elle est déjà négative pour la tendre vers le zéro
- Augmenter la force ionique du milieu, cette action favorise le comportement de la double couche. Cette dernière dégrade la force de répulsion et augmente le contact entre les particules colloïdales qui conduit à l'agglutination des colloïdes, par conséquent à la formation de l'agrégation.

#### II.3.5.1.2. Paramètres liés aux choix du coagulant

Un certain nombre de paramètres doivent être pris en compte (Degremont, 2005; Desjardin, 1997) à savoir :

- Température de l'eau ;
- Caractéristiques des eaux brutes (dont l'équilibre calco-carbonique) ;
- Paramètres physico-chimiques à inclure ou éliminer prioritairement (Turbidité et/ou Matières Organiques, métaux lourds par exemple) ;
- Gestion de l'exploitation (stocks, automatisme, etc...) ;
- Coût du produit ;
- Choix imposé ou « considération esthétique ».

#### II.3.5.1.3. Caractéristiques des principaux coagulants

D'après la bibliographie de (Hecini, 2016 et Hanif, 2021), les caractéristiques des principaux coagulants utilisés lors de la coagulation avec leurs avantages et leurs inconvénients possibles sont présentées dans le **Tableau II.1**.

**Tableau II.1** : Caractéristiques des principaux coagulants utilisés lors de la coagulation avec leurs avantages et leurs inconvénients possibles (Cité dans [Hecini, 2016](#) et [Hanif, 2021](#))

Produit chimique	pH	Densité	Avantages	Inconvénients
La chaux $\text{Ca}(\text{OH})_2$	>12	3345	Couramment utilisé Très efficace Pas d'ajout de sel	dépendant du pH Énorme production de boues Mauvaise quantité d'effluent par plus dosage
Sulfate ferreux $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	1.5-2.2	1200	Aucune sensibilité au pH	Ajoute des sels dissous à l'eau Généralement besoin d'ajouter de l'alcalinité
Chlorure ferrique $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	1.8	1430	Efficace entre pH 4 et 11	Augmente les sels solides dissous Consomme une double alcalinité sur l'aluminium
Sulfate ferrique $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$	<1	1550	Efficace entre pH 4 et 6 Efficace entre pH 8,8 et 9.2	Ajout de solides dissous à l'eau Nécessite l'ajout d'une base pour le travail
Polyaluminiumchlorure $\text{Al}_{13}(\text{OH})_{20}(\text{SO}_4)_4\text{Cl}_{15}$	1	1380	Peu de candidatures Formation de floccs plus denses Taux de stabilisation plus rapide	Utilisation la moins courante Moins de données disponibles que d'autres sels
Aluminate de sodium $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$	>14	1500	Efficace en eau dure Nécessaire en petite quantité	Souvent utilisé avec l'alun Coût relativement plus élevé Inefficace avec de l'eau douce
Sulfate d'aluminium $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$	2.7-3.7	1330	Manipulation facile Facile à appliquer Couramment utilisé Moins de production de boues Haute efficacité pH entre 6,5 et 7,5	Ajout de solides dissous sels Efficacité sur Ph étroit intervalle

### II.3.5.2. Adjuvants de la coagulation-floculation

Parfois, l'élimination des polluants par un coagulant n'est pas évidente, où il y a des certains cas qui nécessitent l'injection d'un adjuvant (aide coagulant) tels que, les polymères, le charbon actif, la chaux, la silice activée et les polyélectrolytes et la bentonite ([Beaudry, 1984](#) ; [Cardot, 1999](#)), capable d'améliorer les performances du procédé. Ces produits ont pour but d'améliorer la floculation par la production des floccs qui résistent mécaniquement aux contraintes de cisaillement. En effet, les adjuvants peuvent se trouvés en trois états cationiques, anioniques et amphotères (amphotère est une molécule ou un ion qui peut réagir



à la fois comme acide et comme base). La silice activée est parmi les premiers aides-coagulants utilisés, son efficacité s'apparait en combinaison avec le sulfate d'aluminium dans un milieu froid (Desjardins, 1999; Dihang, 2007).

#### II.4. Les principaux paramètres influençant le bon fonctionnement de la coagulation-floculation

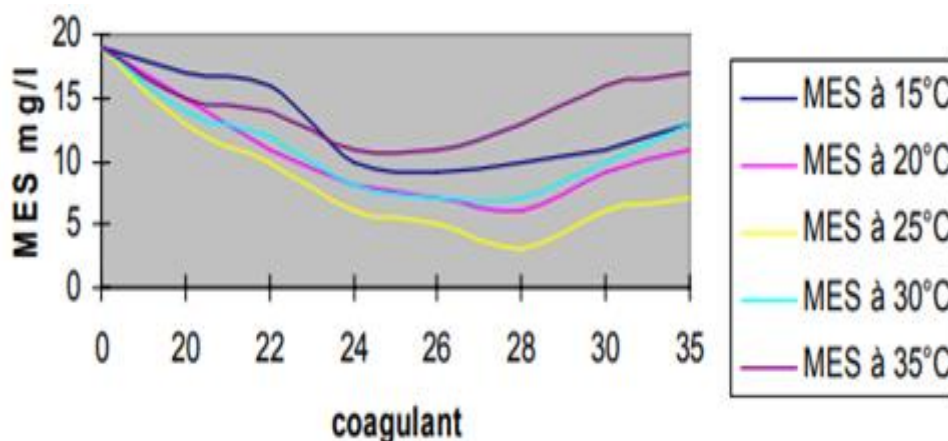
Le procédé de la coagulation-floculation dépend au premier lieu du type des substances à éliminer et des conditions opératoires de la coagulation. L'efficacité de cette dernière peut être améliorée par une sélection appropriée de coagulant, d'optimisation des paramètres de processus tels que la température, le pH, le dosage et le type des coagulants/floculants, la vitesse du mélange et le temps de floculation, ainsi, les caractéristiques physicochimiques des eaux. Ces paramètres permettent généralement, l'amélioration du processus de la coagulation-floculation (Zahrimet al, 2011 ; Verma et al, 2012).

##### II.4.1. Température

La température de l'eau joue un rôle non négligeable, elle peut affecter le mouvement des fluides et des particules, l'interaction particule-particule, le taux et l'étendue de l'hydrolyse des coagulants, le taux d'adsorption et de la précipitation. Par conséquent, elle a un impact à la fois sur le pH, la dose du coagulant et la solubilité du milieu réactionnel (Beaudry, 1984 ; Dentel, 1991). Ce paramètre influe aussi sur la viscosité de la solution. Des études (François et Bekaert, 1986 ; Kang et Cleasby, 1995) ont démontré expérimentalement qu'à basse température, en dessous de 7°C, les rendements d'élimination de la pollution organique et ou bien métallique est très faible, c'est pourquoi on prévoit de travailler avec des températures en dessus de ce seuil. En effet, (Camp et al, 1940) ont enregistré qu'à une température froide :

- La solubilité des coagulants est plus faible.
- L'augmentation de la viscosité de l'eau, ralentit la décantation des floes.

Les courbes présentées dans la **Figure.II.7** illustrent le rôle est l'influence de la température du milieu traité sur l'élimination des matières en suspension (Lakhdari, 2011).



**Figure II.7 :** Courbes de la MES en fonction de la dose du coagulant pour différentes températures (Lakhdari, 2011)

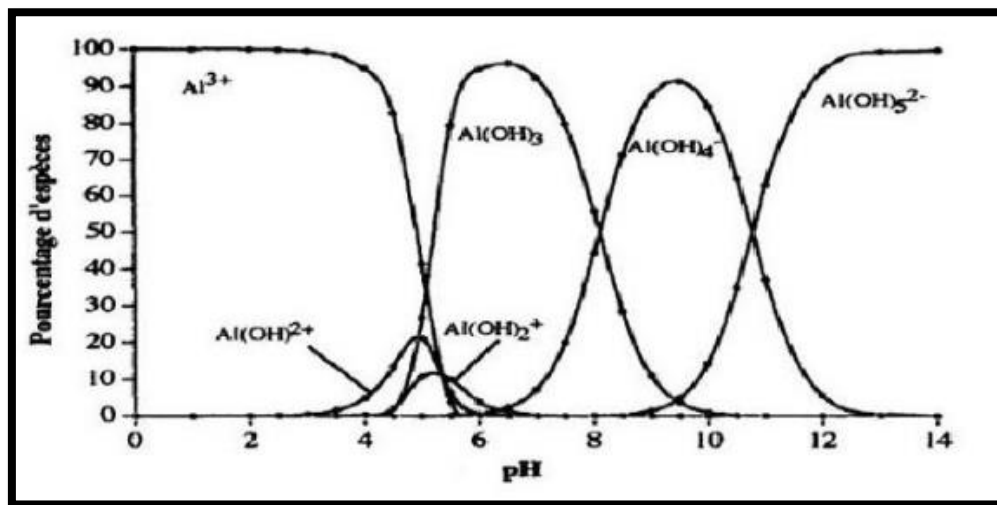
#### II.4.2. pH

C'est l'élément le plus important qu'il faut prendre en considération durant la coagulation. Car le pH fixe la spéciation du coagulant et/ou le floculant introduit. Mais, il modifie également les propriétés de l'ensemble des espèces solubles ou colloïdales présentes dans l'eau à traiter. Signalant que, pour chaque eau, il existe une plage de pH pour laquelle la coagulation a lieu rapide et performant. Cette variation/ intervalle est à prendre en compte afin de ne pas sortir de la plage optimale de précipitation du coagulant. Notons que cette plage est en fonction du coagulant utilisé, de sa concentration et de la composition de l'eau à traiter. Lorsque la coagulation se produit hors de cette plage optimale, il faut soit augmenter la quantité de coagulant, ou augmenter le temps de coagulation qui est compris généralement entre  $t = 3$  secondes à 20 minutes, soit se contenter d'une eau de moins bonne qualité (Harrat, 2013 ; Larakeb, 2015).

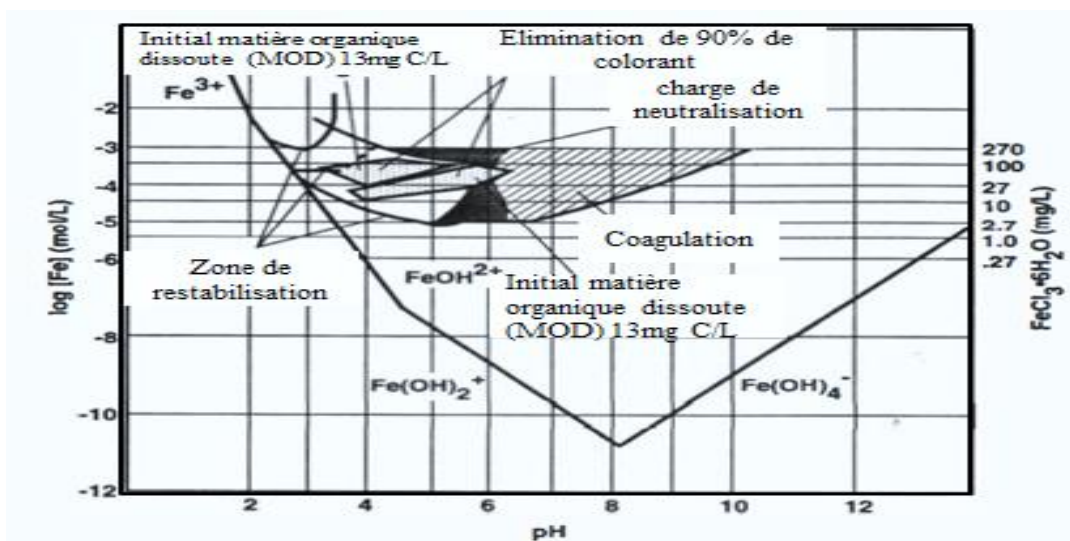
Dans la littérature, (Kavanaugh, 1978 ; Babcock et Singer, 1979 ; Van Breemen et al, 1979 ; Semmens et Field, 1980 ; Dempsey et al, 1984 ; Semmens et Ayers, 1985 ; Lefebvre et Legube, 1990 ; Lefebvre et Legube, 1993 ; Volk et al, 2000) ont indiqué que très souvent, le rendement optimal d'élimination de différentes familles de la matière organique par coagulation-floculation avec l'aluminium ou le fer, est obtenu généralement pour des pH variant entre 4 et 6.

(Harrat, (2013) ; Larakeb, (2015) ; Amirtharajah, (1993)) ont trouvé que les plages de pH optimal s'étendent de 4 à 6 et de 5 à 7 respectivement pour les deux coagulants primordiales sels de fer et d'aluminium (Figure II.8 ; Figure II.9). Lorsque le pH est optimal, les produits solubles d'aluminium ou de fer sont pratiquement inexistantes (Jekel, 1986). Dans le but d'avoir une très bonne élimination de la pollution organique ou bien minérale des eaux par

coagulation floculation, il est demandé de corriger le pH des milieux par utilisation de l'acide, la chaux ou l'hydroxyde de sodium.



**Figure II.8 :** Diagramme de répartition des espèces hydrolysées de l'aluminium en fonction du pH. Concentration totale en  $\text{Al}^{3+} = 1.85 \times 10^{-6} \text{ mol/L}$  (0.5 mg/L) (Cité dans [Achak et al, 2008](#))



**Figure II.9 :** Diagramme de coagulation au chlorure ferrique pour des conditions optimales de pH/dose de coagulant (Régions de coagulation de la matière organique dissoute) ([Amirtharajah, 1993](#))

#### II.4.3. Vitesse d'agitation et temps de floculation

La vitesse d'agitation et le temps de floculation sont deux paramètres en antagonisme. Le principe de la coagulation-floculation consiste à mettre en œuvre l'agitation du mélange en deux étapes, dont la première est une agitation rapide (coagulation). Elle a pour but principal

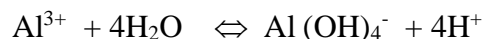
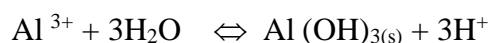
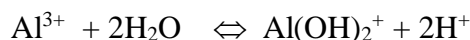
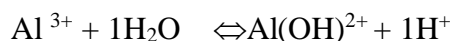
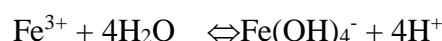
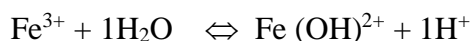
de diffuser le coagulant dans toute la solution par la dispersion du coagulant dans l'eau, dans le but d'avoir un mélange homogène avant toute précipitation d'hydroxyde, cela se fait par une forte agitation en un temps court (Lounnas, 2009 ; Zongo, 2009). Ce type d'agitation favorise la déstabilisation des particules, alors que dans la deuxième phase, la vitesse diminue (agitation lente) pour faciliter la collision entre les particules déstabilisées auparavant et par conséquent pour former les floes. Donc, cette phase représente la floculation (Khelili, 2016). Dans cette étape de la floculation, la vitesse d'agitation (le gradient de vitesse) ne doit pas être élevée pour ne pas faire subir les floes formés aux forces de cisaillement mécaniques qui peuvent remettre les floes à leur état initial (particules en suspension parallèlement à la vitesse d'agitation, le temps de floculation doit être évolué d'une manière permettant aux particules de se rencontrer et de puisse s'agglomérer). Il est important de noter que la durée de la floculation ne doit pas être trop longue dont l'objectif est d'éviter le phénomène inverse (la reformulation des colloïdes au lieu de favoriser la formation des floes) (Thomas et al, 1999).

#### II.4.4. Dose du coagulant

La détermination de la dose du coagulant optimale est un facteur très important pour la déstabilisation des colloïdes. Un surdosage du réactif coagulant conduit certainement à une restabilisation des particules colloïdales.

La dose optimale du coagulant pourra être déterminée par deux méthodes, soit par un test au laboratoire, donc il s'agit du Jar-Test en utilisant un flocculateur, soit par la mesure du potentiel zêta (Vigouret, 1985). Sachant que, cette dose influence d'une manière directe la structure et la densité des floes (Bottero, 1993) et que son effet est généralement variable. Parce qu'elle dépend du type de coagulant choisi à injecter lors du traitement et du type du polluant (Hecini, 2011). Les coagulants ainsi les flocculants sont disponibles d'origine minérale ou organique mais l'optimisation du bon fonctionnement de la coagulation-floculation nécessite une connaissance profonde de leurs structure et mécanismes d'interaction avec les polluants à éliminer (Bottero, 1993).

Les sels de fer et d'aluminium sont les coagulants les plus utilisés, l'hydrolyse de ces sels conduit dans la première étape, à la formation de monomères selon les réactions suivantes (Amirtharajah et Mills, 1982).

*Hydrolyse d'aluminium**Hydrolyse de fer***II.4.5. Turbidité de l'eau**

La turbidité est un paramètre influant sur le bon fonctionnement du procédé de la coagulation-floculation. Elle est principalement due à la présence des particules des diamètres de **0,2 à 5**  $\mu\text{m}$  (Desjardins, 1999).

Il est important de noter que l'augmentation de la quantité du coagulant ne varie pas d'une manière linéaire en fonction de la turbidité.

- ❖ Si la turbidité est très élevée, la quantité de coagulant nécessaire est relativement faible, car la probabilité de collision entre les particules est très élevée.
- ❖ lorsque la turbidité est faible, la coagulation est difficile

**II.4.6. Influence de la force ionique (Minéralisation)**

La force ionique est très importante lors de la coagulation-floculation, les anions chlorure pourraient réduire les effets néfastes d'autres anions sur la coagulation, tels que les anions sulfate ou bicarbonate. Globalement, l'augmentation de la force ionique engendre la suppression des interactions électrostatiques et l'amélioration de celles hydrophobes (Dahri et al, 2016). En effet, elle peut aussi réduire la valeur du potentiel zêta et affecter une diminution de l'épaisseur de la partie diffuse de la double couche électrique (Duan et Gregory, 2003). Il faut noter aussi que tout un changement de la force ionique affectera les floes formés (Francois et Bekaert, 1986).

L'étude qui s'est réalisée par [Mossa et Mazet, \(1991\)](#) sur l'effet de la minéralisation, a permis de mettre en évidence l'influence des espèces minérales sur la quantité de la matière organique éliminée et donc sur les mécanismes de la réaction où ils ont enregistré que :

- Un phénomène de pontage produit quand les ions  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  fonctionnent comme des porteurs des charges positives par la création d'un certain lien entre les surfaces des particules chargées négativement et les molécules des polymères négatives ;
- Les ions bicarbonate peuvent jouer un rôle inhibiteur sur l'efficacité de la coagulation vis-à-vis de l'élimination de la matière organique où leur présence provoque une augmentation des valeurs de pH, ce qui favorise la formation des espèces anioniques du métal.

#### II.4.7. Influence des colorants

Le développement de la technologie de synthèse guide à un grand nombre d'innovations des colorants aux structures complexes qui ont été synthétisés et encore en processus de synthèse. Cela pose une certaine difficulté pour la sélection de coagulant approprié ([Yu et al, 2002](#)). Généralement, l'élimination d'un colorant donné diminue avec l'augmentation de la concentration de ce colorant et de sa solubilité, alors moins de dosage de coagulant pourrait être nécessaire, ce qui réduirait la production des boues. [Verma et al, \(2012\)](#) ont bien marqué dans leurs travaux que, la coagulation de certains colorants solubles dans l'eau est difficile en raison de leur grande solubilité. De ce fait, la limitation majeure du procédé de la coagulation-floculation est l'inefficacité d'élimination de certains colorants solubles ([Hai et al, 2007](#)).

[Mcyotto et al, \(2021\)](#) ont testé l'effet de la coagulation par différents type de coagulants sur l'élimination des colorants avec des structures chimiques identiques et différentes, dont le but principal est d'étudier l'existence d'une corrélation si c'est possible entre la structure d'un colorant et l'efficacité de leur élimination. Les résultats montrent que l'état des molécules de colorant en solution a une influence considérable sur l'efficacité de décoloration par coagulation. Si la structure du colorant contient moins de groupes hydrophiles et plus de groupes polaires, la solution est en suspension ou colloïdale, et est donc facile à coaguler et à éliminer.

## II.5. Travaux sur la coagulation-floculations des colorants

Cette partie est consacrée à une recherche bibliographique des différents travaux qui ont été réalisés sur l'élimination des colorants en solutions synthétiques et ceux qui sont présents dans les eaux usées industrielles par coagulation-floculation.

### II.5.1. Coagulation-floculations des colorants en solutions synthétiques

**Dalvand et al, (2017)** ont testé en solutions synthétiques l'élimination d'un colorant direct (Direct Red 23) par coagulation-floculation, dans ces travaux, ils ont testés le chlorure ferrique comme coagulant. Les paramètres étudiés lors de cette recherche sont l'effet de la dose du coagulant, l'effet de la teneur initiale du colorant et l'effet du pH initial des solutions. Les résultats obtenus ont indiqué que l'efficacité d'élimination de ce colorant a une relation directe avec la dose du coagulant contrairement à la concentration du colorant, qu'elle a une relation inverse avec l'efficacité d'élimination. Pour l'effet de la variation du pH initial, les auteurs ont bien montré qu'il a joué un rôle assez important dans l'élimination de ce colorant dans un intervalle du pH allant de **2** à **7**. Ces même, chercheurs ont bien marqué que le chlorure ferrique entraîne une diminution spectaculaire du pH des solutions traitées. Dans l'ensemble, ces auteurs ont montré par cette étude que la coagulation est parmi les méthodes rapides et efficaces pour l'élimination des colorants directs en solutions synthétiques.

**Gadekar et Ahammed (2020)** ont exploité le résidu de traitement de l'eau à base d'aluminium, rejeté par les usines de traitement des eaux en tant que coagulant, pour l'élimination d'un colorant dispersé (Bleu Dispersé 79). Dans cette étude, différents réseaux neuraux artificiels (RNA) ont été développés pour envisager l'élimination de la couleur. Les résultats trouvés montrent que l'application du (RNA) intègre un comportement non linéaire du système. Cette étude indique ainsi que la réutilisation des boues de traitement des eaux comme coagulant lors de la décoloration d'une solution est une opération intéressante. En ce qui concerne l'effet de la variation de la teneur initiale du colorant, l'élimination était maximale à des faibles pHs allant de **3,0** à **4,0** et dans la gamme des fortes concentrations en colorants. Les auteurs ont suggéré que, ce phénomène pourrait être dû à l'augmentation de l'agrégation du colorant ou bien par un épuisement d'hydrolyse de coagulant en revanche. Dans la même étude, la diminution de l'efficacité est bien marquée pour les pH élevés (au-delà de 4). Grâce au pontage des particules de colorant dans l'absence de l'ionisation du colorant. La floculation a été influencée par le pH, les doses de coagulant et de la température

du milieu en raison de la répulsion électrostatique entre le coagulant et les molécules de colorant.

**Guibal et Roussy, (2007)** ont travaillé sur la coagulation-floculation d'un colorant anionique par l'utilisation de la chitosane comme coagulant et dans un milieu acide (dissous dans un acide acétique). Cette équipe des chercheurs a choisi le chitosane comme coagulant pour faciliter l'élimination du colorant grâce à la liaison qui pourrait être créée entre les groupes amines et sulfoniques suivant une certaine stœchiométrie. Pour la méthode de traitement, deux séries ont été réalisées avec du chitosane B1 (poids moléculaire élevé) et chitosane B6 (faible masse moléculaire). L'augmentation de la dose du chitosane engendre une augmentation du pourcentage d'élimination, jusqu'à un optimum correspond à une neutralisation complète des charges anioniques où au-dessus de la, une stabilité des suspensions se résulte. Puis, une diminution est apparue, suite à l'excès des charges cationiques qui réduit par conséquent l'efficacité du procédé. Ces chercheurs ont conclu que la décoloration par coagulation et par l'utilisation de chitosane est une méthode efficace et qui se base sur la neutralisation de la charge à pH acide. Ils ont montré aussi que, l'étape de filtration a une influence non négligeable sur la dose optimale de chitosane et que ce dernier de plus haut poids moléculaire offre de meilleures possibilités de pontage impliqué dans un mécanisme double comprenant la coagulation par neutralisation de charge et floculation par pontage.

### II.5.2. Coagulation-floculations des eaux usées de l'industrie textile

Dans ce domaine de traitement des effluents industriels contenant les colorants **Asodollahfardi et al, (2018)** ont étudié l'effet du procédé de la coagulation-floculation sur l'élimination des effluents de l'industrie textile de l'usine de Mazandran (Iran). Durant cette étude, ils ont testé le sulfate d'aluminium, la chaux, le sulfate ferreux, le chlorure ferreux et le chlorure de baryum comme coagulants, dont le but principal est de déterminer l'efficacité des coagulants précités sur la dégradation de ce type de rejet. En premier lieu, ils ont testé l'effet de chaque coagulant à une gamme de pH varie de 2 à 12 pour pouvoir déterminer le pH optimal du traitement tandis que, en deuxième étape, les tests ont été effectués à nouveau en utilisant un pH déjà optimisé. Les résultats obtenus ont montré que le pH est un paramètre très important lors de la coagulation-floculation dont il a un effet direct sur l'élimination des



colorants. Ces chercheurs ont également décrit l'efficacité du procédé sur la dégradation des rejets industriels de textile.

**Gao et al, (2007)** ont testé les performances d'un coagulant composite, préparé par le chlorure polyferrique (PFC) pré mélangé avec du chlorure de polydiméthyl-diallyl-ammonium (PDMDAAC), sur l'élimination des colorants (Bleu dispersé HGL et le Bleu réactif STE) en solutions synthétiques et en eaux usées de textiles. Dans cette étude, ces auteurs ont été intéressés à étudier l'effet du dosage du coagulant et du pH de l'eau sur l'élimination de la couleur. Pour aboutir à leurs objectifs, ils ont fait une étude comparative entre les eaux traitées par le PFC, le PDMDAAC et de la combinaison du PFC suivi par PDMDAAC (PFC /PDMDAAC) respectivement, sur l'élimination des colorants. Les résultats obtenus par ces chercheurs ont enregistré que, la combinaison entre le PFC et le PDMDAAC augmente le potentiel zêta du PFC-PDMDAAC et réduit l'effet du pH sur le potentiel zêta et les espèces du Fe(III) du CPF-PDMDAAC. Le traitement avec le PFC-PDMDAAC est très efficace pour éliminer le bleu dispersé HGL (**98%**) et le bleu réactif STE (**86%**). Des petits changements dans l'efficacité d'élimination de la couleur sont observés dans toute la gamme de pH (**3 ; 4,5 ; 6 ; 7,5 ; 9 ; 10,5**). L'efficacité d'élimination de la couleur pour le bleu dispersé HGL et le bleu réactif STE est supérieure à **96%** et **98%** dans la gamme de pH =7,5-10,5 respectivement. De plus, le PFC-PDMDAAC s'avère plus efficace dans l'élimination des colorants que le PFC/PDMDAAC. Ces auteurs ont suggéré que PDMDAAC est un coagulant très efficace dans traitement de la décoloration des eaux usées de textiles réelles.

**Tiaiba et al, (2018)** dans leurs travaux ils ont utilisé le sulfate d'aluminium ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ ) et le chlorure ferrique ( $\text{FeCl}_3$ ) pour la décoloration d'une eau usée synthétique contenant un colorant rouge. Des facteurs tels que le pH initial, le dosage du coagulant, la concentration initiale, la conductivité et les conditions de mélange qui influencent l'efficacité de l'élimination des couleurs ont été testés. Ils ont constaté que, l' $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$  est plus efficace que le  $\text{FeCl}_3$  comme coagulant. Lorsque **40**  $\text{mgL}^{-1}$  de sulfate d'aluminium a été utilisé, les résultats ont montré que la couleur induite par le colorant rouge a été efficacement éliminée (**>90 %**) et a été obtenue dans une large gamme de pH initial de **4** à **8** avec, et pour une concentration de colorant inférieure à **235**  $\text{mg L}^{-1}$ . Après l'ajout du coagulant, le milieu a dû être mélangé pendant **30** minutes à **60** tr/min, puis laissé décanter pendant **40** minutes. Les

effets de la conductivité de l'eau dans la gamme **0,035–2,42** Ms cm<sup>-1</sup> a montré que le traitement de l'effluent par coagulation est affecté par l'augmentation de la salinité.

**Joo et al, (2007)** ont étudié l'efficacité du sel d'aluminium et du fer pour éliminer quatre colorants réactifs (noir 5, bleu 2, rouge 2 et jaune 2) des eaux usées synthétiques et pour la décoloration des eaux usées réelles contenant de fortes concentrations des colorants réactifs, provenant d'une industrie de teinture locale. Cette recherche a pour but aussi la réduction de la DCO et de la turbidité de ces eaux. Un flocculant polymère synthétisé dans des conditions acides a été également testé en présence des coagulants. Ces auteurs ont marqué que l'utilisation de (**1 g/L**) de coagulant atteint **20%** de décoloration des eaux usées synthétiques. Alors qu'avec le polymère, le rendement s'est augmenté jusqu'à un pourcentage de décoloration de l'ordre de **100%**. Ces mêmes auteurs ont bien enregistré d'une part que l'efficacité d'élimination du colorant augmentait au fur et à mesure que celle du polymère et qu'elle était affectée par le pH de la solution et le type de coagulant utilisé. D'autre part, l'utilisation de coagulant inorganique seul est peu efficace pour éliminer les colorants réactifs des eaux usées réelles. Les combinaisons aluminium/polymère et sel ferrique/polymère ont amélioré la décoloration jusqu'à **60%** et **40%** respectivement. Ces chercheurs ont également trouvé qu'environ de **90%** de turbidité et **35%** de DCO ont été réduits. Les résultats de cette recherche ont indiqué que l'élimination des colorants réactifs est plus efficace lorsque les coagulants sont combinés avec du polymère.

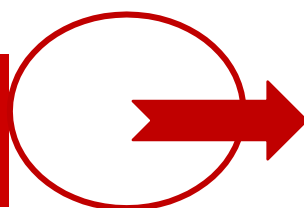
## II.7. Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons donné une description générale sur le procédé de la coagulation-floculation. Nous avons détaillé, plus particulièrement, le procédé sur lequel porte notre étude ainsi que la théorie de la double couche des particules colloïdales. Nous avons décrit aussi les différents paramètres influençant le bon fonctionnement du procédé, les coagulants et les différents paramètres liés à leur choix. En dernier lieu un aperçu général sur les travaux qui ont été réalisés sur l'élimination des colorants par coagulation-floculation soit en solutions synthétiques soit sur des rejets de l'industrie textile. Les travaux cités ont bien enregistré que le procédé de la coagulation-floculation est une technique de traitement très efficace pour l'élimination de la majorité des types des colorants.

Le chapitre suivant est consacré à la partie de méthodes et matériels. Nous verrons en détail les différentes méthodes de dosage et le matériel exploité durant les différentes parties de notre recherche.

# *Partie II : Partie Expérimentale*

## **Chapitre I: Méthodologie expérimentale**



### I.1. Introduction

Le procédé de la coagulation-floculation au laboratoire a été effectué par la méthode du Jar-Test qui se base sur l'utilisation d'un flocculateur et d'une série de démarches à suivre. Dans ce contexte, le présent chapitre sera consacré à la description de la méthodologie de notre travail expérimental opté. Dans un premier temps, nous allons décrire les différents réactifs testés tels que les colorants, les coagulants ainsi que, les produits chimiques utilisés durant les différents essais. Nous allons également présenter le mode opératoire du procédé notamment les différentes étapes suivies. Ce chapitre va nous permettre aussi d'exposer les deux types d'eaux résiduaires que nous avons testé. Par la suite un aperçu récapitulatif des méthodes de détermination de quelques caractéristiques physico-chimiques des eaux usées étudiées, accompagné par une description de quelques équipements d'analyses.

Il est important de signaler que tous les essais expérimentaux ont été réalisés au niveau du Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (LARHYSS) de l'université Mohamed Kheider de Biskra (Algérie).

### I.2. Réactifs chimiques

Pour la réalisation de l'ensemble de nos essais expérimentaux qui ont pour objectif l'élimination des colorants par coagulation-floculation. Nous avons utilisé des réactifs chimiques qui ont été choisis parmi les produits commerciaux de plus haute pureté. Le **Tableau I.1** récapitule les principaux réactifs chimiques utilisés dans la détermination des paramètres de qualité des eaux résiduaires et en solutions synthétiques.

**Tableau I.1** : Caractéristiques des produits chimiques utilisés au cours des essais

Réactif	Formule	provenance	Pureté ≥%
Acide sulfurique	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Fluka	95-97
Hydroxyde de sodium	NaOH	Chim-oza	-
Acide chlorhydrique	HCl	Biochem	35-38
Chlorure de sodium	NaCl	Cheminova	99,5-100,5
Chlorure de potassium	KCl	Sigma-Aldrich	99-100,5
Sulfate de mercure	HgSO <sub>4</sub>	Sigma-Aldrich	99
Sulfate d'argent	Ag <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Sigma-Aldrich	99
Sulfate d'aluminium	Al(SO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub>	Fluka	95
Chlorure ferrique	FeCl <sub>3</sub>	Sigma-Aldrich	97
Chaux	Ca(OH) <sub>2</sub>	Aldrich	95
Méthyl Orange	C <sub>14</sub> H <sub>14</sub> N <sub>3</sub> NaO <sub>3</sub> S	Biochem	/
Sel de Mhor	NH <sub>4</sub> Fe(SO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> 6H <sub>2</sub> O	-	-
Dichromate de potassium	K <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	-	-

### I.2.1. Colorants

#### I.2.1.1. Choix des colorants

Rappelant que le choix des colorants a été justifié par leur caractère nocif pour l'environnement dont le choix étudié répond aux critères suivants :

- Solubilité plus ou moins élevée dans l'eau ;
- Analyse possible par spectrophotomètre UV/visible ;
- Modèle de structure différente : cationique pour le Vert Brillant, le Méthyle Violet et anionique pour le Rouge Congo.

#### I.2.1.2. Méthyle Violet 2B (Sigma-Aldrich de l'inde, haute pureté, vert foncé)

Le Méthyle Violet est un colorant basique ou cationique qui appartient à la classe du triphénylméthane, la poudre du colorant est caractérisée par sa coloration verte foncée se dissout dans l'eau pour donner une couleur violette intense. Sachant que, même les petites quantités de ce colorant produiraient un effet perceptible sur la coloration des eaux qu'elles contiennent (Dahdri et al, 2016). Ce colorant est largement utilisé dans divers domaines tels que, les domaines de peintures, textiles (comme le coton, la soie et le cuir) et l'encre d'impression. Il est employé également comme un indicateur de pH dont il change de couleur

dans la plus basse gamme (jaune à violet avec la transition à un  $\text{pH} = 1,6$ ). Le Méthyle Violet testé dans ce travail est le Méthyle Violet 2B (MV2B) qui a de larges applications dans l'industrie alimentaire ou les produits cosmétiques. Ce colorant est un élément actif dans la démonstration et notamment la classification primaire des bactéries. Cependant, le MV2B pourrait être toxique pour l'être humain car, il peut causer de graves problèmes cutanés, respiratoires, irritations du tractus gastro-intestinal et des yeux. Pour ces raisons, il est impératif d'avoir une méthode efficace pour éliminer ce colorant (Horakova et al, 2016).

Les données regroupées dans le **Tableau I.2** illustrent les propriétés du Méthyle Violet 2B testé, et sont : le  $\text{pH}$ , le poids moléculaire et principalement par la longueur d'onde à l'absorbance maximale.

### **I.2.1.3. Rouge Congo** (Sigma-Aldrich, haute pureté, plus de 35 % de colorant, rouge foncé)

Le Rouge Congo est un colorant anionique de type azoïque à base de benzidine, on l'appelle aussi Direct Red 28. Il contient un groupe azo ( $-\text{N}=\text{N}-$ ) comme chromophore et sulfonate ( $-\text{SO}_3\text{H}$ ) comme auxochrome (Rehman et al, 2012). Il est largement utilisé dans la production des papiers, caoutchouc, plastiques, cuirs, taches biologiques et notamment dans l'industrie textile (Amraan et Zulfikarmon, 2010 ; Goudjil et al, 2021). Il s'altère dans des conditions des  $\text{pH}$  acides et basiques. C'est pourquoi il est généralement utilisé comme un indicateur de  $\text{pH}$  et dans le test de l'acide chlorhydrique libre dans l'estomac contenu (Rehman et al, 2012). Plusieurs études ont montré qu'il est toxique et dangereux comme beaucoup de colorants azoïques dont les liaisons azoïques de ces colorants se réduisent pour libérer le benzidine et d'autres amines aromatiques, qui peuvent causer des effets indésirables, effets néfastes sur la santé (Bafana et al, 2009). Par conséquent, certains pays ont interdit l'utilisation de ce type de colorant, malgré cela il est encore utilisé dans les procédés de teinture textile en raison de l'efficacité de fixation à faible coût. Donc l'exploitation de ce genre de colorant nécessite l'application d'une méthode efficace et faisable pour traiter les effluents des industries textiles (Goudjil et al, 2021).

Dans le **Tableau I.2** nous avons regroupé les propriétés du Rouge Congo testé étant le  $\text{pH}$ , le poids moléculaire et principalement par la longueur d'onde à l'absorbance maximale.

**I.2.1.4. Vert Brillant** (S.D Fine-Chemlimited, haute pureté, plus de 95% de colorant, Cristalline verte pailletée)

Le vert brillant appartient à la classe des colorants cationiques inodores, il est employé dans différents domaines tels que, les taches biologiques, comme agent dermatologique pour colorer les fibres, la soie, la laine, la fabrication des matériaux en bois et les produits vétérinaires, médicaments et même comme additif aux aliments pour volailles pour inhiber la propagation des moisissures, des champignons intestinaux et des parasites (Ibrahim et Gaya, 2020). Il est aussi largement utilisé dans la teinture de textile et de l'impression du papier (Nandi et Patel, 2013). Ce colorant est dangereux dans le cas de contact avec la peau et les yeux, il est toxique pour les poumons et les voies respiratoires. La décomposition de ce colorant peut former des oxydes de carbone, des oxydes d'azote et des oxydes de soufre nocifs, il est donc indispensable d'éliminer ce colorant de l'eau (Kismir et Aroguz, 2011).

Quelques propriétés du Vert brillant testé sont illustrées dans Le **Tableau I.2**.

**Tableau I.2** : Description des caractéristiques et structures chimiques des colorants étudiés (Doğan et Alkan, 2003; Mane et Babu, 2013)

Nom	1 <sup>er</sup> colorant	2 <sup>eme</sup> colorant	3 <sup>eme</sup> colorant
Nom chimique	Methyl Violet 2B	Rouge Congo	Vert Brillant
Apparence	verte à verte foncée	rouge foncée	Crystalline verte
Formule chimique	$C_{24}H_{28}ClN_3$	$C_{32}H_{22}N_6 Na_2O_6S_2$	$C_{27}H_{34}N_2O_4S$
Poids moléculaire (g/mol)	393.96	696,663	482.64
$\lambda_{max}$ (nm)	584	500	624
solubilité	Eau, ethanol	Elevée dans l'eau	Elevée dans l'eau
Structure chimique			



### I.2.2. Coagulants

Le coagulant est un agent d'origine chimique, organique ou même naturel ajouté pour éliminer les matières en suspension et des colloïdes existant dans une eau de surface ou usée. Les plus largement ré pondus sont : le sulfate d'aluminium  $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18 H_2O$ , et le chlorure ferrique  $FeCl_3$  (<https://www.dictionnaire-environnement.com/coagulant/>).

#### I.2.2.1. Choix du coagulant

Dans cette étude, le choix du coagulant est opté pour le sulfate d'aluminium ( $Al_2(SO_4)_3$ ) et le chlorure ferrique ( $FeCl_3$ ). Car, ils sont les plus ré pondus dans le domaine du traitement de ce type de polluants. Nous avons également choisi de tester ces deux types de coagulants car ils sont couramment utilisés dans les stations de traitement des eaux potables, bien que des eaux usées résiduares.

#### I.2.2.2. Sulfate d'aluminium (Fluka, plus de 95% de pureté)

C'est un sel blanc, solide, poudre blanche cristalline sans odeur, il est caractérisé par sa formule chimique ( $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18 H_2O$ ) et sa masse moléculaire qui est de l'ordre de 666.6 g/mol.

#### I.2.2.3. Chlorure ferrique (Sigma-Aldrich de l'Allemagne, plus de 97% de pureté)

Le chlorure ferrique est un sel de fer dont sa formule chimique est  $FeCl_3$ , sa réaction de dissolution dans l'eau est très exothermique et forme une solution acide marron.

### I.2.3. Aides coagulant (les adjuvants)

Afin d'améliorer l'efficacité de la technique de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants précités, nous avons testé au cours de nos travaux trois types d'adjuvants pour pouvoir déterminer le rôle joué par chaque type entre eux. Les adjuvants choisis sont la chaux ( $Ca(OH)_2$ ) produit de Sigma-Aldrich (Allemagne), le charbon actif en poudre (CAP) qui est un produit commercial défini comme étant un adsorbant mésoporeux dont les caractéristiques sont présentés dans le **Tableau I.3 (Benammar et al, 2021 ; Youcef et al, 2022)**. Ce produit provient du laboratoire Riedel-de Haen. Tandis que, le troisième type est le polymère qui est du type agro-alimentaire ramené de la station de traitement d'eau potable de (Koudiet Lemdaouar) wilaya de Batna (Algérie).

**Tableau I.3** : Propriétés physiques du charbon actif en poudre (CAP) (Benammar et al, 2021 ; Youcef et al, 2022)

Paramètres	Unité	Valeurs
Surface de BET (SBET)	m <sup>2</sup> /g	1147,48
Surface de Langmuir	m <sup>2</sup> /g	1429,54
Surface microporeuse	m <sup>2</sup> /g	840,61
Surface externe	m <sup>2</sup> /g	306,87
Volume microporeux	cm <sup>3</sup> /g	0,34
Diamètre moyen des pores	nm	1,71

### I.3. Préparation des solutions étudiées et des réactifs utilisés

Pour la préparation des solutions mères que ce soit des réactifs utilisés (Tableau I.1) ou des colorants testés, nous avons utilisé une eau distillée caractérisée par une conductivité variant entre 5 et 20  $\mu\text{s}/\text{cm}$  et un pH moyen de l'ordre de 5,4.

#### I.3.1. Préparation des solutions mères

##### I.3.1.1. Coagulants

Des solutions mères ont été préparées périodiquement par la dissolution de 20 g de chaque coagulant (Sulfate d'aluminium ou bien Chlorure ferrique) dans un (1) litre d'eau distillée et conservées dans des fioles jaugées.

##### I.3.1.2. Colorants

Les solutions mères des colorants ont été soigneusement préparées par la dissolution d'une quantité d'un gramme (1g) de colorant dans un (1) litre d'eau distillée. Cette solution est conservée dans une fiole jaugée de volume relatif aux concentrations désirées. Cette étape est suivie par une étape d'homogénéisation par l'utilisation d'un agitateur magnétique. De la solution mère, une série des solutions filles est préparée par dilution successive. Le rapport de dilution dépend principalement des concentrations désirées. Ces dernières sont utilisées pour l'obtention de la courbe d'étalonnage puis pour la détermination des concentrations résiduelles des colorants. Il est à noter que ces solutions filles sont préparées juste avant les essais expérimentaux de la coagulation-floculation en considérant les conditions de la manipulation et les différents paramètres réactionnels que nous allons étudier.

#### I.4. Caractéristiques physico-chimiques des solutions traitées

Afin de réaliser les essais de la coagulation-floculation, nous avons utilisé deux types de solutions, des solutions synthétiques d'eau distillée et deux types d'eaux résiduaires.

L'objectif principal de cette étude est d'enregistrer les performances du procédé de la coagulation-floculation dans l'élimination des colorants contenus dans une matrice assez complexe des composés organiques et minérales.

Pour aboutir à notre but, deux types d'eaux résiduaires ont été testés. La première est une eau résiduaire synthétique collectée au niveau du Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (**LARHYSS**), Université de Biskra pendant la période de la réalisation de nos travaux expérimentaux. Cette eau contient les trois colorants que nous avons testés en solutions synthétiques (Méthyle Violet 2B, Rouge Congo et Vert Brillant), des substances humiques, d'humâtes de sodium, des produits pharmaceutiques, des métaux lourds et d'autres composés à des faibles concentrations, à titre d'exemple certains sels et acides. Les principales caractéristiques physico-chimiques de cette eau sont illustrées au (**Tableau I.4**).

La deuxième eau résiduaire que nous allons expérimentée provienne du rejet d'une unité privée de production de peinture située à Barika (sud-ouest de la wilaya de Batna-Algérie). Dans cette unité, ils utilisent plusieurs types de colorants pour produit la couleur voulue et des additifs qui servent à la fixation de la couleur. Il est important de signaler que les échantillons que nous avons prélevés n'ont subi aucun traitement préliminaire au niveau de l'unité. C'est pour cette raison ces eaux sont caractérisées par une couleur intense, et sont également chargées de la matière organique. Les principales caractéristiques physico-chimiques des eaux usées du premier et du deuxième échantillon sont regroupées dans **Tableau I.4**.

Tableau I.4: Caractéristiques physico-chimiques des eaux résiduaires testées

Paramètres	Unité	1 <sup>er</sup> échantillon Lab LARHYSS	2 <sup>eme</sup> échantillon E. Peinture
<b>pH</b>	-	8,28	7,27
<b>Température</b>	°C	19	20,8
<b>Conductivité</b>	µs/cm	2,5	3,23
<b>Turbidité</b>	NTU	106	787
<b>DCO</b>	mg/L	1920	88800
<b>TH</b>	még/L	40	100
<b>Mg<sup>2+</sup></b>	mg/L	1,6	10
<b>Ca<sup>2+</sup></b>	mg/L	2,4	0
<b>Cl<sup>-</sup></b>	mg/L	7,99	12,49
<b>TAC</b>	még/L	40	60
<b>Cu</b>	mg/L	Indéterminé	2,99
<b>Cd</b>	mg/L	Indéterminé	2,79
<b>Zn</b>	mg/L	Indéterminé	197,63
<b>K</b>	mg/L	Indéterminé	190
<b>Vert Brillant</b>	mg/L	20,71	19,24
<b>Rouge Congo</b>	mg/L	67,18	39,52
<b>Méthyle Violet</b>	mg/L	25	19,13
<b>Longueur d'onde</b>	nm	550	430

## I.5. Méthodes de mesure et de dosage des paramètres physico-chimiques

### I.5.1. pH mètre

Les mesures du pH ont été effectuées avec deux types de pH-mètre (**HANNA pH209** et de **laboratoire WTWINOLAB pH 7310p**). Chaque pH-mètre est muni d'une électrode en verre préalablement étalonné avec des solutions tampon standards **pH=4** puis **pH=7**. Une fois l'appareil est étalonné, on met l'électrode dans le becher d'échantillon désiré et qui est homogénéisé. La lecture de la valeur du pH de l'échantillon doit être après la stabilisation de l'affichage sur l'écran du pH-mètre. L'ajustement du pH initial des solutions a été fait par les solutions HCl et NaOH avec une normalité de **0,1 N**.

### I.5.2. Conductivité

La conductivité a été mesurée par l'utilisation d'un conductimètre. La conductivité estime la valeur de la minéralisation d'une eau dont cette dernière égale à la multiplication de la conductivité par un coefficient variable dépend principalement de sa valeur. Durant tous les essais, la conductivité sera mesurée à l'aide d'un conductimètre électrique de type (**LF 315**). Cet appareil nous affiche la conductivité en µs/cm ou ms/cm.

### I.5.3. Turbidité

La turbidité est causée particulièrement par la présence de la matière en suspension (MES), d'oxydes et d'hydroxydes métalliques et notamment des substances dissoutes colorées (Rodier, 2009). Nous avons mesuré la turbidité par un turbidimètre (Turb 550 IR), dont il nécessite en premier lieu un calibrage par trois solutions tampons (10, 100 et 1000 NTU). Les résultats sont affichés en NTU. La Photo I.1 présente le turbidimètre utilisé.



Photo I.1: Turbidimètre utilisé (Turb 550 IR)

### I.5.4. Détermination du titre alcalimétrique complet (TAC)

La méthode de détermination de ce paramètre est une méthode volumétrique permettant à titrer l'échantillon d'eau à analyser par l'acide sulfurique (N/50) en présence de quelques gouttes de l'indicateur Méthyle Orange. Le titrage s'arrête au virage de couleur (changement de la couleur de l'échantillon au jaune orange). Le TAC est exprimé en milliéquivalent par litre (méq/L) ou en degré Français (°F). L'alcalinité est dite carbonatée dans le cas où la valeur du pH de la solution est inférieure à 8,3 (Rodier, 2009).

### I.5.5. Dosage des éléments minéraux

Les éléments minéraux à savoir, le calcium, le magnésium, le chlore et le potassium sont mesurées par la méthode photométrique à l'aide d'un appareil de mesure appelé Palintest. C'est une mesure rapide est efficace. Selon la longueur d'ondes de chaque élément et selon les instructions du catalogue on détermine la concentration de l'élément désiré. La Photo I.2 présente l'appareil Palintest utilisé.

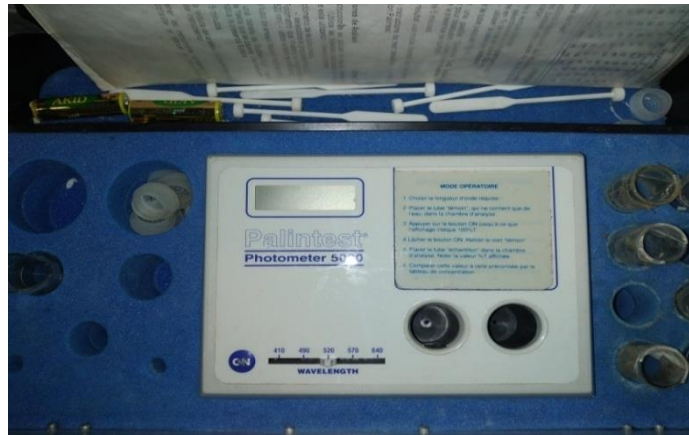


Photo I.2: Palintest photometer 5000

### I.5.5.1. Détermination de la dureté

La dureté de l'eau est également appelée titre hydrotimétrique (TH), elle mesure la concentration en ions magnésium et en ions calcium dans l'eau et se mesure le plus souvent en degrés Français (°F). Il existe deux méthodes de dosage, il s'agit du dosage volumétrique par l'EDTA en présence de l'indicateur coloré (Noir d'eriochrome) et de la méthode photométrique en utilisant l'appareil Palintest (**Photo I.2**). Dans cette étude notre choix est opté pour la deuxième méthode qui consiste à remplir un tube de l'eau à tester et ajouter deux types de pastilles (sulphitest). Puis on lira le résultat à une longueur d'onde de 570 nm. Selon un tableau (sur le catalogue) nous déduirons la valeur de TH. De la même façon, nous déterminons la dureté calcique et celle magnésienne par l'ajout des pastilles adéquates.

### I.5.5.2. Dosage du potassium

Après l'ajout d'une pastille (potassium) au tube rempli par l'échantillon d'eau, et après avoir régler l'appareil de dosage (Palintest) à la longueur d'onde correspondante au potassium (520 nm), nous déterminons sa concentration selon le tableau adéquat. Une solution nuageuse indique la présence de cet élément.

### I.5.6. Détermination des concentrations du cuivre, cadmium et du zinc

La détermination des concentrations des ions  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Cd}^{2+}$  et  $\text{Zn}^{2+}$  dans les échantillons d'eaux usées résiduelles a été effectuée par la méthode d'absorption atomique en raison de la grande précision fournie par cette méthode. Exceptionnellement, pour les faibles concentrations. Nous avons utilisé un spectrophotomètre de type **PERKIN ELMER A700**.

### I.5.7. Détermination de la Demande Chimique en Oxygène (DCO)

La demande chimique en oxygène (DCO) est un paramètre indispensable lors du traitement des eaux dont son rôle principal est de permettre la surveillance de la qualité des eaux particulièrement usées, urbaines et des rejets industriels. La DCO permet la mesure de presque toutes les matières organiques contenues dans les eaux qu'elles soient d'une nature biodégradable ou non biodégradable. Il s'agit donc de la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder les composés organiques présents dans l'eau. Le chauffage à reflux en milieu fortement acide avec une quantité connue de bichromate de potassium dans une éprouvette fermée placé dans un réacteur DCO (**Photo I.3**) à 148 °C pendant 2H, permet d'oxyder particulièrement la matière oxydable contenue dans l'échantillon étudié. Après refroidissement des tubes testés, le titrage est réalisé en réduisant le dichromate restant par une solution de sel de Mohr [FeSO<sub>4</sub>, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 6H<sub>2</sub>O]. La ferroïne, indicateur coloré, vire du bleu au rouge lorsque cette réaction est complète. La DCO est déterminé en équivalent d'oxygène par calcul en utilisant la (Formule I.1). Elle s'exprime en mg/L d'oxygène.

$$DCO = \frac{(V_b - V_e) \times \left[\frac{15}{V_t}\right] \times 0.2 \times 1000}{P_e} \quad (I.1)$$

Avec:

**V<sub>b</sub>**: Volume à blanc (volume versé du sel de Mohr lors du test de l'eau distillée comme échantillon) ;

**V<sub>e</sub>** : Volume versé du sel de Mohr à l'échantillon testé ;

**P<sub>e</sub>** : Volume d'échantillon dans l'éprouvette qui égale à 25 mL ;

**V<sub>t</sub>** : Paramètre constant égale à 1.



**Photo I.3:** DCO mètre (CR200)

### I.6. Dosage des colorants

La détermination de la teneur résiduelle du colorant dans les échantillons d'eau est évaluée à partir des droites d'ajustements linéaires obtenus par le biais des courbes d'étalonnages pour chaque colorant. Ces courbes sont des droites reliant l'absorbance (A) aux différentes concentrations des solutions étalons c'est-à-dire Absorbance = f(Concentration du colorant). Ces mesures sont réalisées sur un spectrophotomètre UV/Vis (**Optizen 20120 UV**) (**photoI.4**). Le trajet optique étant de 1 Cm avec des cuves en plastiques. L'étalonnage est répété avant chaque série d'essai. Pour cela nous avons préparé une série des solutions filles (étalons) de concentrations varient entre 1 et 20 mg/L à partir des solutions mères des colorants. Un exemple est représenté par les (**Figures I.1 et I.2**).

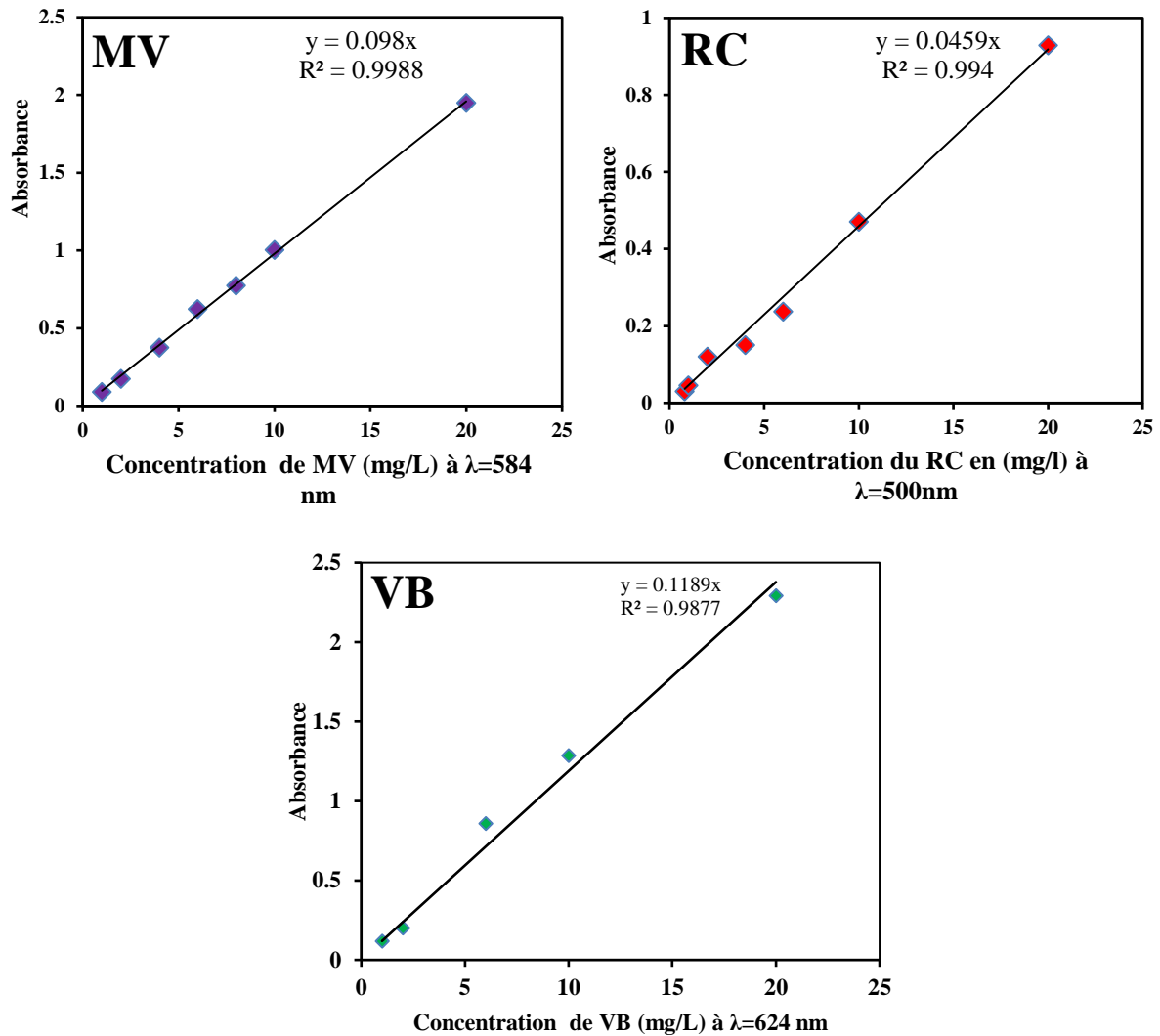
Il est important de noter que, durant notre étude nous avons utilisé deux types de spectrophotomètres : le premier est un spectrophotomètre (**Photolab 7600 UV-Vis**) (**Photo I.4**) par lequel nous avons déterminé les spectres UV-Visible des colorants étudiés, ainsi que ceux des deux types des eaux usées résiduaires testées (**Figure I.3**). Car, ce spectrophotomètre permet de réaliser un balayage radial allant de l'UV jusqu'au visible (200 à 900 nm). Alors que, le deuxième (**Optizen 20120 UV**) (**Photo I.4**) est utilisé pour la détermination des absorbances des colorants durant tous les essais que nous avons effectués.



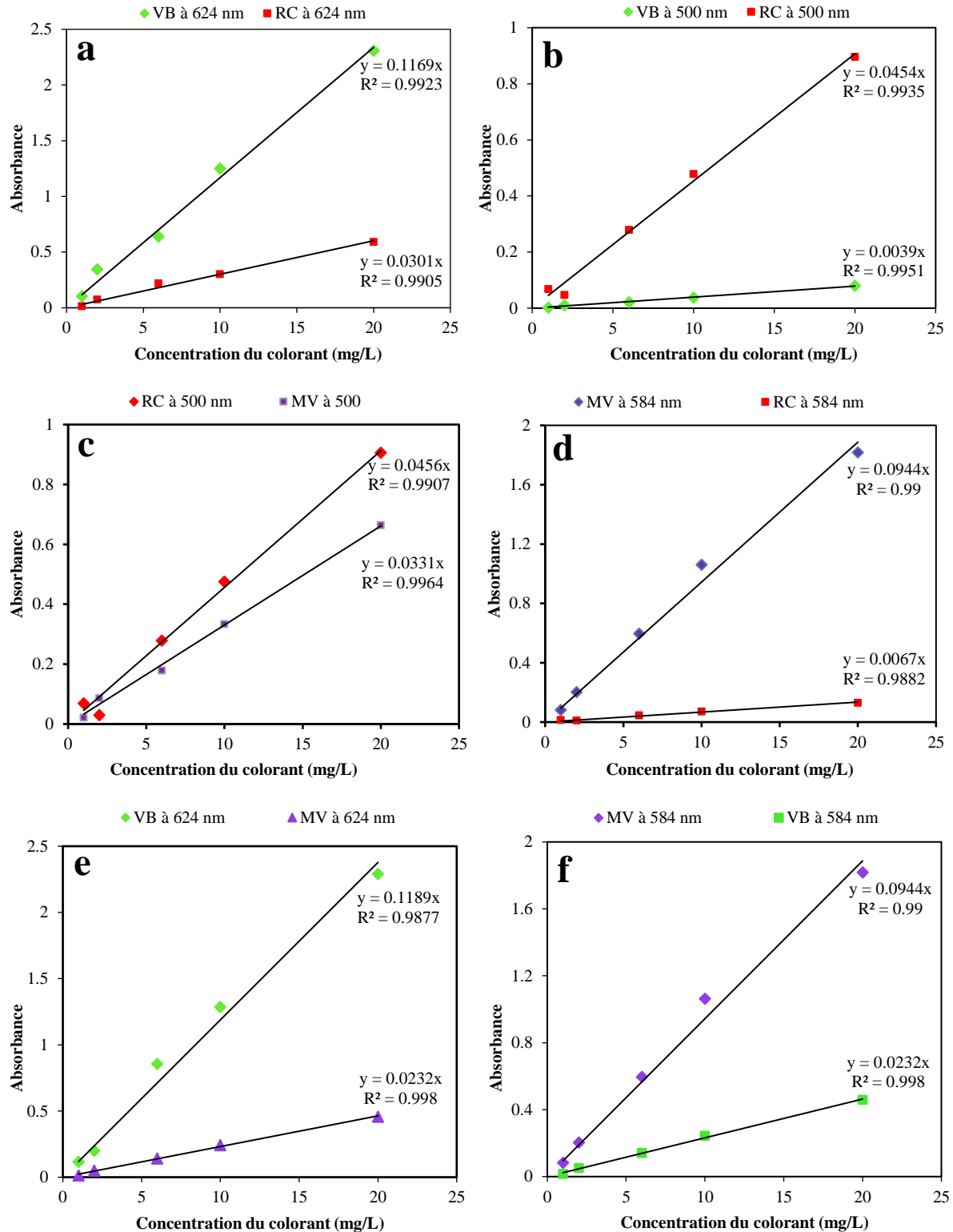
**Photo I.4** : Spectrophotomètres (**Optizen 20120 UV/Vis**) et (**Photolab 7600 UV-Vis**)



Les courbes d'étalonnage exploitées lors des calculs des concentrations résiduelles des colorants que ce soit dans le système individuel ou dans le système binaire sont présentées par les (Figures I.1-2)

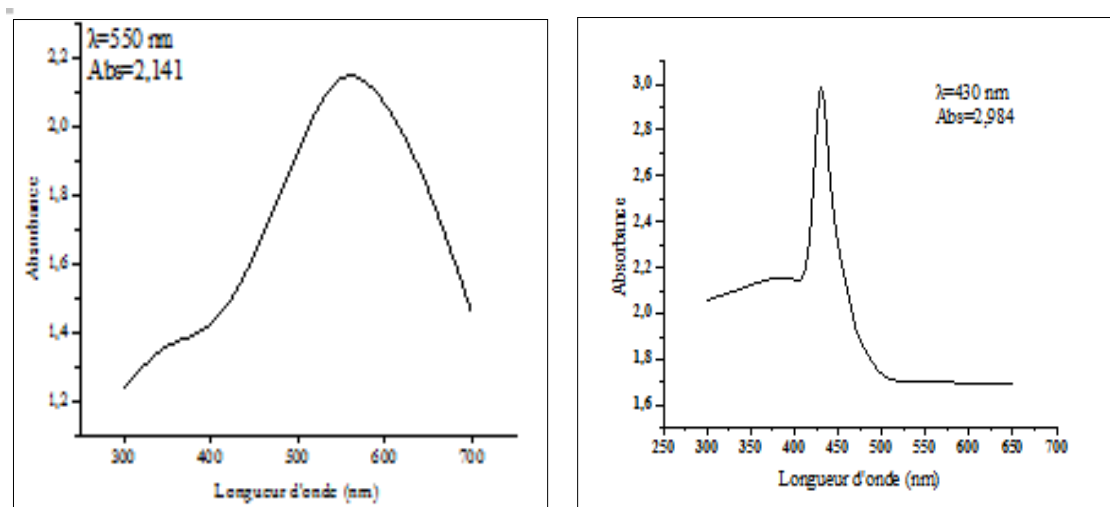


**Figure I.1:** Exemple des Courbes d'étalonnage du Méthyle Violet, Rouge Congo et Vert Brillant



**Figure I.2 :** Courbes d'étalonnage des (a) VB et RC à 624 nm ; (b) VB et RC à 500 nm ; (c) RC et MV à 500 nm; (d) RC et MV à 584 nm; (e) VB et MV à 624 nm; (f) VB et MV à 584 nm

Les spectres utilisés lors de l'étude de la décoloration des deux eaux usées étudiées sont présentés par la **Figure I.3**



**Figure I.3 :** Spectres des eaux usées (a) Eaux usées Lab LARHYSS (b) Eaux usées de l'unité de la production de la peinture, E. Peinture

### I.7. Protocole suivi lors des essais de la coagulation-floculation

Les essais sont effectués en utilisant un banc de Jar-test qui est un flocculateur de laboratoire (Fisher 11198) (**Photo I.5**). Cet appareil est caractérisé par la simplicité de son utilisation et la bonne reproductibilité des résultats fournis, il est composé de six pales. Nous avons mis sous chaque pale un bicher rempli par 250 mL d'échantillon et des réactifs désirés (Colorant et Coagulant). Le processus de l'essai se base sur l'application successive des étapes ci-après :

- 1- Agitation rapide : **150** tr/mn pendant **3** minutes durant laquelle on procède à l'homogénéisation du réactif coagulant;
- 2- Agitation lente : **45** tr/mn pendant **17** minutes, c'est l'étape de la formation des floccs;
- 3- Décantation pendant **30** mn, durant la décantation, les floccs formés sont déposés au fond des bichers;

Afin de caractériser les échantillons après traitement, nous avons suivi les étapes suivantes :

- 1- Filtration du surnageant récupéré à l'aide d'une pompe à vide en utilisant une membrane de porosité **0,45**  $\mu\text{m}$ ;
- 2- Détermination des absorbances des échantillons par le spectrophotomètre UV-vis;
- 3- Mesure du pH final des solutions ;
- 4- Détermination de la conductivité ;
- 5- Mesure de la turbidité.



**Photo I.5 :** Floculateur de laboratoire (Fisher 11198)

Différents paramètres réactionnels ont été étudiés. Il s'agit de suivre l'effet de la :

❖ **Dose optimale du coagulant**

Cet essai consiste à tester un intervalle des doses de coagulant choisit, et suivre le protocole principal du Jar-test. Cette étape a pour but de déterminer la dose optimale que nous devons injecter plus tard durant les autres tests. Cette dose correspond au rendement optimal de la décoloration des solutions traitées (synthétiques et les eaux résiduaires).

❖ **Effet de la variation de la teneur initiale du colorant**

Dans cet essai, nous fixant la dose du coagulant et nous faisons varier la teneur initiale du colorant selon une gamme comprise entre **1** et **50** mg/L. Cet essai consiste à montrer l'effet de la concentration initiale du colorant sur son élimination.

❖ **Effet de la variation du pH**

La variation du pH de la solution étudiée aide à déterminer ou à déduire le pH du traitement favorable pour l'élimination du colorant testé. Cet essai est basé sur la variation du pH de la solution en utilisant le pH-mètre et les solutions d'ajustement (HCl et NaOH).

### ❖ Effet des adjuvants

Le test des adjuvants comprend l'ajoute des produits pour améliorer l'effet de la coagulation lors de l'élimination des colorants. Dans cette étude le choix des adjuvants est opté pour trois types différents. Il s'agit du charbon actif en poudre et de la chaux dont les quantités ajoutées sont comprises entre 0 et 2 g/L, plus le polymère agroalimentaire utilisé dans la station de traitement d'eaux potable de Batna, comme un troisième adjuvant à des concentrations allant de 0 à 0,2 g/L.

### ❖ Effet de la force ionique

L'étude de l'ffet de la force ionique consiste à enregistrer l'effet de la minéralisation ou les sels sur l'élimination des trois colorants étudiés. Les sels testés dans cette partie de travail sont le chlorure de sodium (NaCl) et le chlorure de potassium (KCl). Les solutions mères sont préparées avec une normalité de l'ordre de 2N dont les quantités dissoutes sont 117 g/L et 149,2 g/L pour NaCl et KCl, respectivement. Les concentrations des solutions filles de chlorure de sodium et le chlorure de potassium varient entre 0,01 à 1,5 g/L

## I.7.1. Formules exploitées lors du calcul des concentrations résiduelles et des rendements

### I.7.1.1. Système simple et les eaux résiduaires

Dans le système simple, en tenant compte des différents paramètres réactionnels précités. La concentration éliminée de chaque colorant est calculée selon la (**Formule I.2**) :

$$C_{\text{colorant}} = (C_0 - C_f) \quad (\text{I.2})$$

$C_0$  et  $C_f$  : Représentent respectivement les concentrations initiale et finale de colorant (mg/L).

Alors que, l'efficacité d'élimination des colorants est donnée par (**Equation I.3**) :

$$R(\%) = \left( \frac{C_0 - C_f}{C_0} \right) \times 100 \quad (\text{I.3})$$

### I.7.1.2. Système binaire

Dans le système binaire, la détermination de l'absorbance de chaque colorant dans une solution composée d'un mélange des colorants n'est pas précise, il faut donc appliquer une méthode spécifique pour calculer les concentrations résiduelles des colorants combinés. Pour cela, nous avons appliqué (the Partial Least Squares Regression) connue par la méthode PLS.

Il s'agit d'un modèle des méthodes d'étalonnage multi variées. Cette méthode est utilisée principalement pour déterminer la relation entre deux composants à savoir, la concentration et l'absorbance. Parce que, dans un système binaire, l'absorbance globale des deux colorants est donnée par l'équation I.4 (Benhabiles et Rida, 2021). La Figure I.2 représente les courbes d'étalonnage des combinaisons étudiées.

$$A_{\text{abs}} = A_{\text{Colorant1}} + A_{\text{Colorat2}} \quad (\text{I.4})$$

Où :

$A_{\text{abs}}$  : Est l'absorbance du spectrophotomètre UV à la longueur d'onde donnée ;

$A_{\text{Colorant1}}$  et  $A_{\text{Colorant2}}$ : Sont les absorbances du premier et du deuxième colorant à la même longueur d'onde.

Les concentrations de chaque colorant dans un système binaire ont été déterminées en utilisant les équations I.7 et I.8 après qu'elles ont été obtenues par développement des équations I.5 et I.6 (Kılıç et Orhan 2019).

$$A_{\lambda 1} = ax_1 C_1 + ay_1 C_2 \quad (\text{I.5})$$

$$A_{\lambda 2} = ax_2 C_1 + ay_2 C_2 \quad (\text{I.6})$$

$$C_{\lambda 1} = \left( \frac{A_1 ay_2 - A_2 ay_1}{ax_1 ay_2 - ax_2 ay_1} \right) \quad (\text{I.7})$$

$$C_{\lambda 2} = \left( \frac{A_2 ax_1 - A_1 ax_2}{ax_1 ay_2 - ax_2 ay_1} \right) \quad (\text{I.8})$$

Avec :

$C_{\lambda 1}$  (mg/L) et  $C_{\lambda 2}$  (mg/L) : Sont les concentrations des colorants (1 et 2) en solution binaire, respectivement.  $ax_1$ ,  $ax_2$ ,  $ay_1$  et  $ay_2$  sont les constantes d'étalonnage pour les colorants 1 et 2 à  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  respectivement.

## I.8. Application du Logiciel de statistique Expert Design RSM (Response Surface Methodology)

### I.8.1. Représentation du logiciel

Le RSM ((Response surface methodology) est un outil mathématique statistique utilisé dans divers domaines scientifiques a fin de modéliser et optimiser les résultats expérimentaux obtenus (Betiku et al, 2016). Les modèles construits par RSM dépendent des données de la conception expérimentale, décrivant la relation entre les facteurs (paramètres indépendants) et les réponses (paramètres dépendants). Ces modèles (corrélation) sont utilisés pour, évaluer l'influence des facteurs, des interactions sur la réponse et optimiser le processus étudié (Breig, et Luti, 2021). Le RSM exploite le modèle statistique ANOVA lors de la création des modèles représentant les résultats expérimentaux insérés dans ce logiciel et implique la conception composite centrale (CCD) et la conception boîte-Behnken (BBD) pour optimiser le processus (Sodeifian et al, 2016). En général, les résultats sont décrits par tracé 3D ou par tracé de contour 2D.

L'utilisation de la méthodologie des surfaces de réponse comme outil d'optimisation nécessite de nombreuses étapes qui consistent d'abord à préciser les facteurs voulant étudiés ou testés, méthode d'expérimentation, sélection du modèle approprié, vérification de l'adéquation du modèle, représentation du modèle par graphique et enfin optimisation pour obtenir des conditions optimales comme expliqué par Chenna et al. (2016) et Breig, et Luti. (2021).

### I.8.2. Evaluation des modèles créés par le logiciel

La conception d'ANOVA dans ce logiciel base sur l'analyse du type d'interactions qui lient les facteurs étudiés aux réponses. Sachant que, lorsque la valeur P, le représentant des interactions, est inférieure à 0,05 ; le modèle est considéré potentiellement significatif et si elle est supérieure, on dit que le modèle est non significatif (Elhalil et al, 2016). Le même principe est suivi lors de la détermination de l'effet de chaque facteur étudié sur le modèle, si la valeur  $P < 0,05$  donc l'effet de ce facteur est linéaire (direct), si non on dit que le facteur a un effet quadratique (indirect).

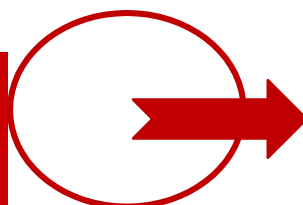
### **I.9. Conclusion**

Le présent chapitre nous a permis de donner un aperçu sur la méthodologie expérimentale et les équipements d'analyses exploités au cours des essais que nous avons effectués. Nous avons également exposé la méthode de préparation des réactifs utilisés lors de l'étude des effets des paramètres réactionnels. Un aperçu du protocole suivi durant les essais de la coagulation floculation réalisés est aussi mentionné. Une description générale sur les deux types des eaux usées étudiées à travers leurs principales caractéristiques physico-chimiques. Les formules mathématiques utilisées lors de la détermination de certaines grandeurs notamment les rendements d'éliminations et les concentrations résiduelles des colorants ont été également indiqués. L'application du Logiciel de statistique Expert Design RSM dans le but de confirmer et ou affirmer nos résultats. Les résultats et leurs interprétations sont présentés dans les chapitres suivants.



# *Partie II : Partie Expérimentale*

## **Chapitre II : Elimination des colorants dans un système individuel par coagulation- floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique**



### **II.1. Introduction**

Les rejets de l'industrie textile sont généralement chargés par des composés colorés, Suite à la qualité et la quantité des produits teintés déversés par les unités de production, de finalisation, et pour assurer que le procédé du traitement choisit pour ce type de rejet sera efficace, il est important d'étudier les performances du procédé choisit sur des solutions synthétiques,

Dans ce contexte, l'objectif de ce chapitre est d'étudier les performances de deux coagulants, le sulfate d'aluminium ( $Al_2(SO_4)_3$ ) et le chlorure ferrique ( $FeCl_3$ ) sur l'élimination de trois colorants, à savoir le Rouge Congo (RC) appartient à la famille azoïque, il est anionique, le Méthyle violet (MV) et le Vert Brillant (VB) sont deux colorants non azoïques mais, ils sont cationiques, Nous avons choisi de tester ces deux types de coagulants car, ils sont couramment utilisés dans les stations de traitement des eaux potables, bien qu'en celui des eaux usées résiduaires, Différents paramètres réactionnels seront étudiés, discutés et comparés avec des travaux de certains chercheurs, Il s'agit également de voir l'effet de la :

- ❖ Dose optimale du coagulant ;
- ❖ Teneur initiale du colorant ;
- ❖ Variation du pH ;
- ❖ Variation des adjuvants des coagulants (charbon actif en poudre, polymère et la chaux) ;

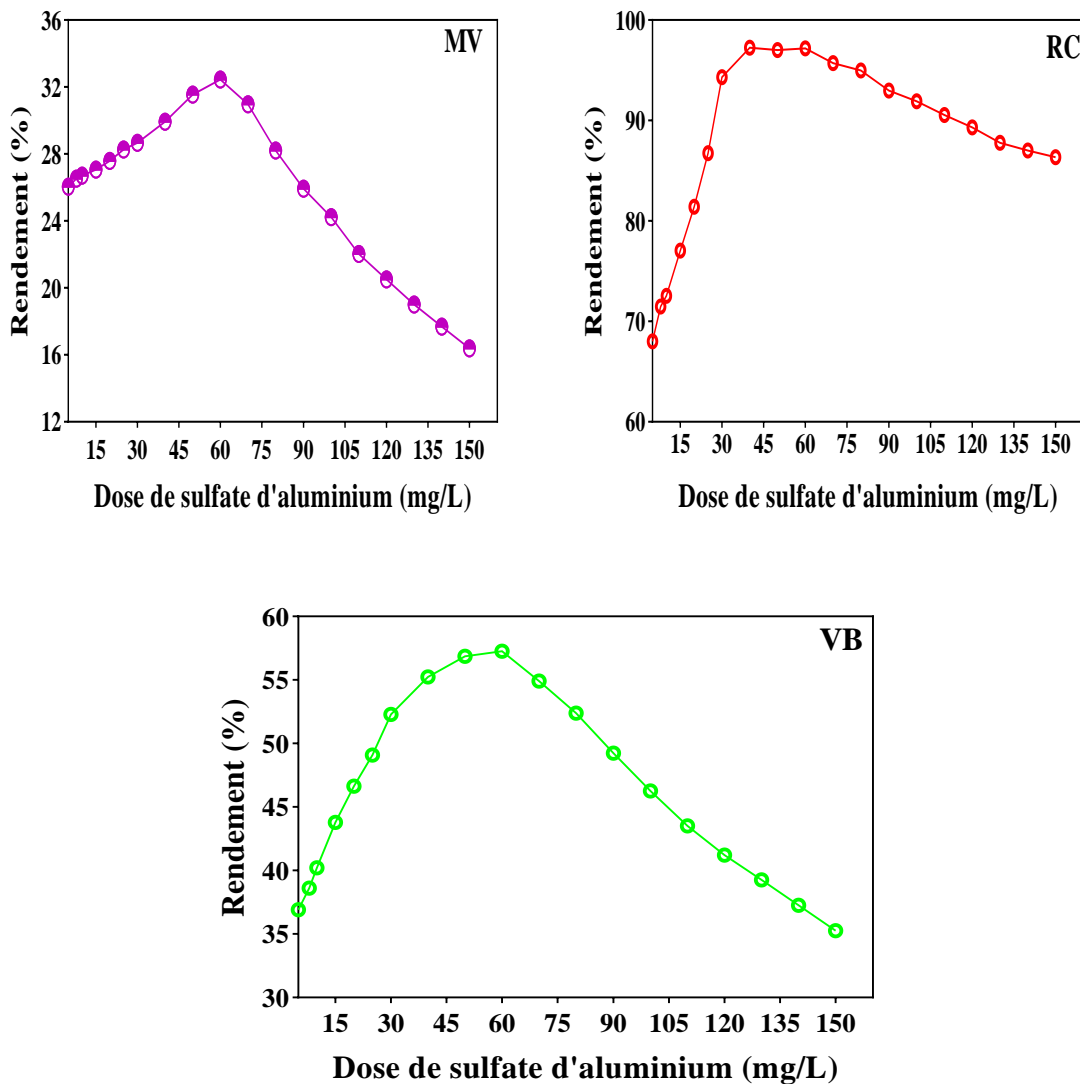
Dans ce chapitre, nous allons tenter d'interpréter et d'enregistrer aussi l'incidence de la force ionique sur les performances du procédé de la coagulation-floculation, en présence du sulfate d'aluminium et du chlorure ferrique, sur l'élimination des colorants précités,

### **II.2. Effet des paramètres réactionnels**

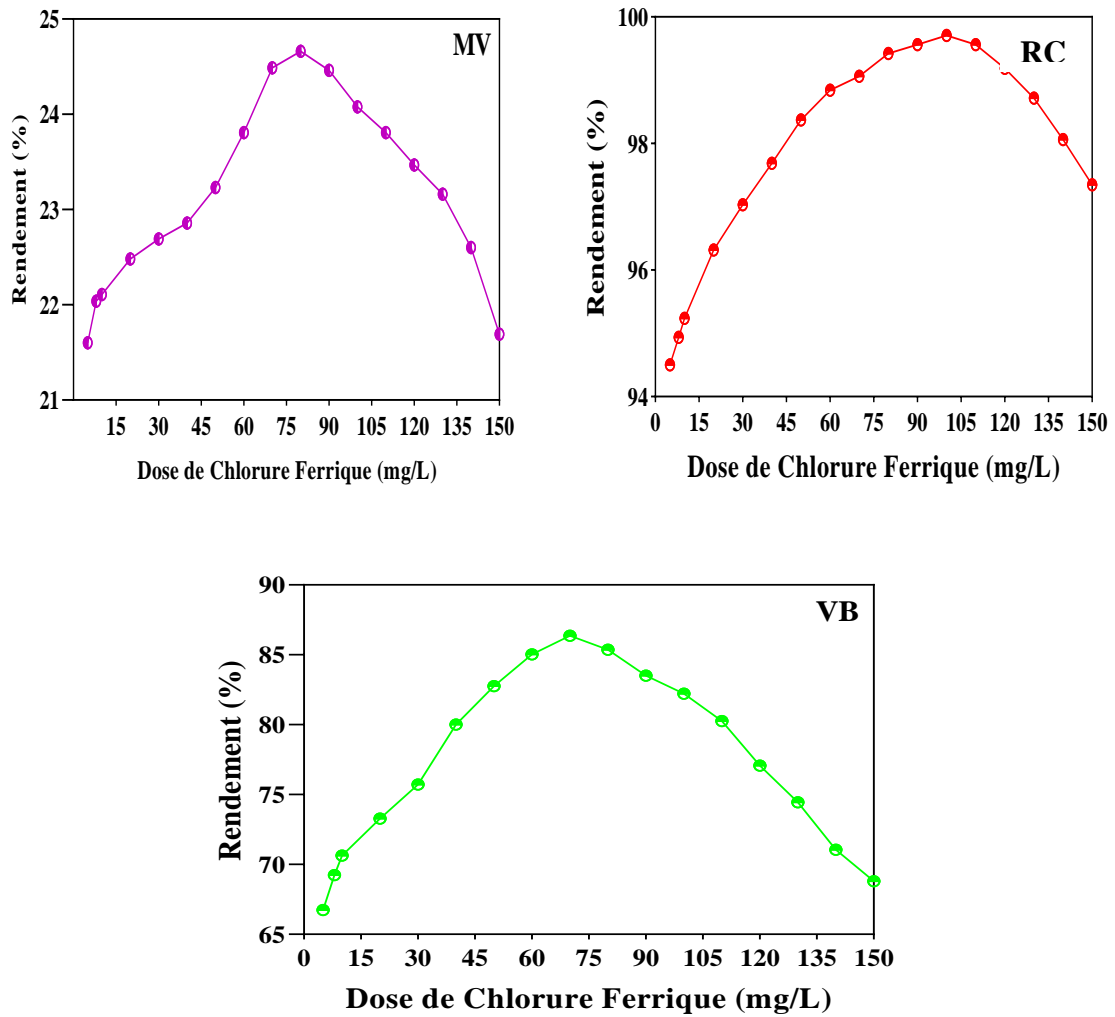
#### **II.2.1. Effet de la dose du coagulant**

L'étude de l'effet de la dose du coagulant est l'un des paramètres les plus importants à prendre en compte lors de la détermination des conditions optimales du processus de la coagulation-floculation, La détermination de la dose la plus favorable est réalisé d'une manière en assurant une minimisation du coût, de la formation de boues et également pour acquérir l'efficacité d'élimination optimale dans le processus du traitement (**Patel et Vashi, 2012**).

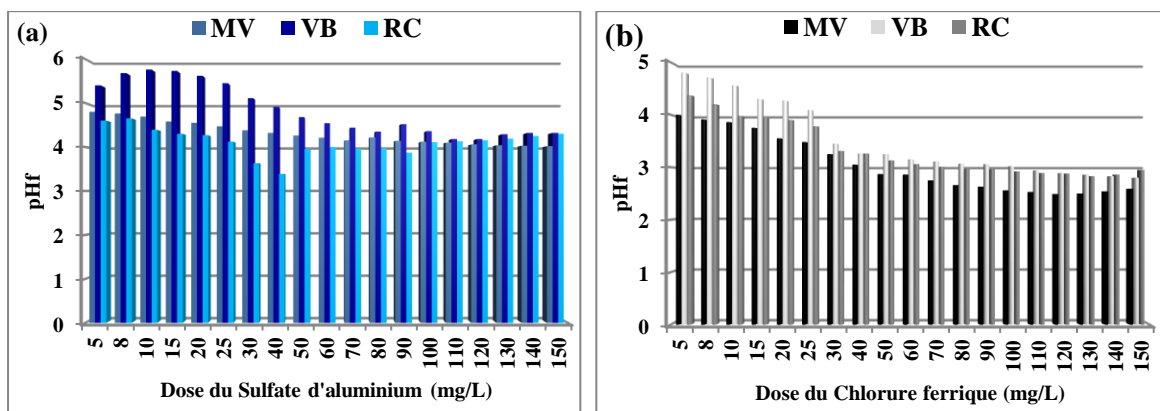
De ce fait, l'objectif de cette étape d'étude est d'observer et d'interpréter les types d'interactions entre le sulfate d'aluminium, le chlorure ferrique et les colorants testés. Les essais de coagulation-floculation sont conduits en solutions synthétiques d'eau distillée contenant une concentration constante de colorant (**30 mg/L**) en eau distillée (pH non ajusté). Des doses croissantes de coagulant (sulfate d'aluminium ou bien chlorure ferrique) sont introduites dans les différentes solutions varient entre **5 à 150 mg/L**. La **Figure II.1** présente les résultats obtenus.



**Figure II.1 :** Effet de la variation de la dose du sulfate d'aluminium sur l'élimination de chaque colorant [MV]=[RC]=[RC]=30 mg/L, pH non ajusté



**Figure II.2 :** Effet de la variation de la dose du chlorure ferrique sur l'élimination de chaque colorant  $[MV]=[RC]=[RC]=30$  mg/L. pH non ajusté



**Figure II.3 :** Valeurs de pH<sub>f</sub> en fonction des doses de sulfate d'aluminium(a) et de chlorure ferrique(b)

Les résultats obtenus (**Figures II.1 et II.2**) nous amènent à remarquer clairement que les rendements d'élimination de chaque colorant augmentent avec l'augmentation de la dose du coagulant, aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique, jusqu'à atteindre une valeur maximale, puis une diminution plus au moins importante est apparue. Ce qui implique une restabilisation des particules colloïdales existantes dans la solution (**Cardot, 1999**).

D'après les résultats que nous avons obtenu (**Figures II.1 et II.2**) nous remarquons que :

- ❖ Les meilleurs rendements ont été obtenus avec le RC dont l'élimination est de **97,24%** et **99,71%** qui correspondent à une dose de **40 mg/L** et **100 mg/L** pour le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique respectivement.

Cette forte élimination pourrait être expliquée par l'existence d'une proportion entre les charges négatives du RC (colorant anionique) et les charges positives du coagulant aussi bien du sulfate d'aluminium que celui du chlorure ferrique, Cette forte attraction des charges provoque l'apparition des floccs qui ont été observés dès les premières doses en particulier pour le sulfate d'aluminium (**Goudjil et al, 2021**).

- ❖ Pour le sulfate d'aluminium l'ordre de l'élimination des colorants testés est comme suit :

**Rendement<sub>RC</sub>(97,24%) > Rendement<sub>VB</sub>(57,39%) > Rendement<sub>MV</sub>(32,45%)**

Cet ordre est le même en utilisant le chlorure ferrique

**Rendement<sub>RC</sub>(99,71%) > Rendement<sub>VB</sub>(86,36%) > Rendement<sub>MV</sub>(24,66%)**

Au vu de nos résultats, on note que le MV était plus difficile à éliminer en comparaison avec RC et VB. Selon **Shi et al, (2007)**, ce phénomène implique que la capacité du traitement de différents colorants par coagulation en utilisant le sulfate d'aluminium ou le chlorure ferrique pourrait être associée aux propriétés des colorants eux-mêmes, telles que la taille moléculaire et la structure chimique.

L'ensemble de nos résultats pourraient être justifiés par certains travaux qui ont enregistré que : Les groupes chromophores et auxochromes des molécules de colorant jouent un rôle important dans la coagulation/floculation.

**Han et al,(1998; 1999)** ont constaté que les colorants amphotères dont les auxochromes sont constitués des molécules positives et des molécules négatives ne coagulent pas bien,

**Klimiuk et al, (1999)** ont indiqué que, les différentes structures des colorants font rendre le dosage optimal de coagulant diffère d'une structure à l'autre.

**Yu et al, (2002)** ont découvert que, plus le colorant contient de groupes acides (c'est-à-dire des groupes d'acide sulfonique tel que le cas du RC), plus l'interaction entre le coagulant et le colorant est importante, et donc plus l'élimination du colorant est élevée.

**Kim et al, (2004)** ont réalisé une étude sur l'élimination des colorants de type dispersés et réactifs tels que le bleu 106, le jaune 54, le Bleu 49 et le bleu 84 par coagulation-floculation au chlorure ferrique, ils ont constaté que pour des faibles concentrations en chlorure ferrique il y a des très bonnes efficacités d'élimination. Les efficacités d'élimination maximale pour les colorants dispersés le bleu 106 et le jaune 54 était de **97,7 %** et **99,6 %** respectivement ; ces rendements ont été obtenu par des faibles concentrations en chlorure ferrique (**0,93 mM** et **0,74 mM**). Tandis que, les efficacités maximales d'élimination des colorants réactifs le bleu 49 et le bleu 84 étaient de **60,9 %** et de **71,3 %** avec **2,78 mM** et de **1,85 mM** de chlorure ferrique. Dans cette étude, ils ont suggéré que les potentiels zêtas des solutions des colorants ont été fortement affectés par la dose de chlorure ferrique, Une augmentation de concentration de coagulant a entraîné une augmentation des valeurs du potentiel zêta. Ainsi l'ajout adéquat de coagulant chimique donne des valeurs de potentiel zêta proches de zéro.

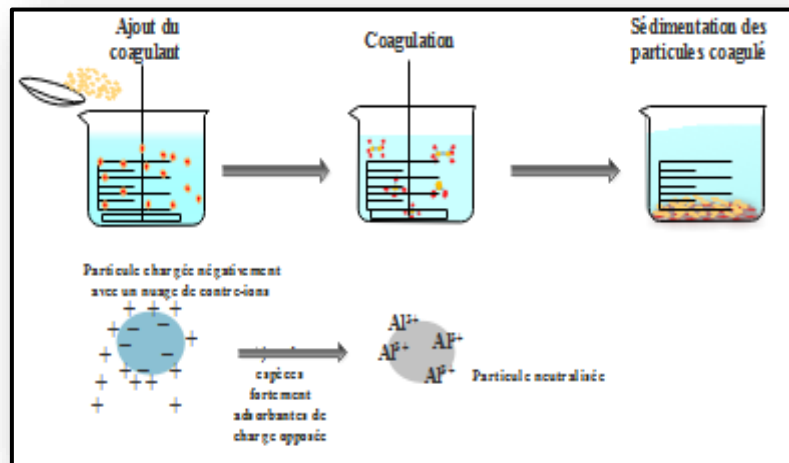
En outre, **Beltran-Heredia et Sanchez-Martin (2008)** ont rapporté qu'une charge anionique plus faible, une chaîne plus petite et la structure non linéaire des molécules de colorant diminuent l'efficacité de la coagulation.

En revanche, **Han et al, (1998 et 199)** ont signalé que le colorant acide triarylméthane contenant 4 groupes d'acide sulfonique est difficile à coaguler par rapport au colorant acide triarylméthane contenant seulement deux groupes d'acide sulfonique.

Finalement, **Zahrim et al, (2011)** ont suggéré que l'efficacité de la coagulation peut également être affectée par le type de chromophore de la molécule de colorant.

D'autre part, on a pu également enregistrer que les doses optimales obtenues par le sulfate d'aluminium sont assez inférieures à celles du chlorure ferrique. La différence est entre **10** et **20 mg/L** de coagulant respectivement pour le VB et le MV Tandis que, pour le RC est de **60 mg/L**.

Par conséquence, la diminution des rendements a été expliquée par la déstabilisation des particules colloïdales, provoquée par le surdosage du coagulant. Ce dernier, étant en excès, joue un rôle inverse, en neutralisant toutes les particules, qui se retrouvent des particules chargées positivement et des forces répulsives s'exercent de nouveau entre elles. On aura donc une eau très chargée par le coagulant avec une mauvaise coagulation ou clarification (Goudjil et al, 2021), Le phénomène est schématisé dans l'image de la **Figure II.4** cas du sulfate d'aluminium.



**Figure II.4:** Schéma explicatif du principe de la coagulation-floculation

Szygula et al, (2008) ont montré que les colorants de type anionique qui portent des groupements sulfoniques comme le Rouge Congo qui porte deux groupes sulfoniques (Amran et al, 2010) ont été électro-statiquement attirés par les groupes amines protonés permettant par conséquent une neutralisation des charges anioniques des colorants. Lorsque les groupes amines ont atteint la neutralisation complète de l'anionique charge, l'élimination des colorants atteint leur maximum alors que, l'excès en groupes amines protonés (charges cationiques) crée une restabilisation de la suspension entraînant par la suite une diminution de l'efficacité du processus.

Cependant, nos résultats peuvent être confirmés par des travaux similaires (Moghaddam et al, 2010, 2011) qui ont testé les résidus de traitement des eaux (RTE) comme coagulant sur un colorant acide, Ils ont montré que l'élimination de la couleur augmente avec une dose croissante de coagulant jusqu'à un rendement de **94,2%**. En outre, des études antérieures sur les colorants dispersés, en utilisant le sulfate d'aluminium comme

coagulant, ont rapporté que l'élimination a été effectuée dans une gamme de **80 à 90 %** à des doses de **40 à 200 mg/L** (El-Gohary et Tawfik, 2009; Merzouk et al, 2011). Tandis que l'utilisation de sel ferrique comme coagulant a permis d'éliminer **75%** de la couleur à une dose de **60 mg/L**. Kaur et Kaur, (2019); Mahesh et al, (2016); Puchana-Rosero et al, (2018) ont montré que l'élimination du colorant des eaux usées de tannerie augmente rapidement et atteint **100%** à une dose de **60 mg/L**. Hoong et Ismail, (2018) ont également soulevé les mêmes observations lors de leur étude sur l'élimination du colorant dans les eaux usées par un système combiné d'adsorption-coagulation avec de (l'hibiscussabdariffa) comme coagulant. Shi et al, (2007) ont testé la coagulation de trois colorants directs (Direct Black 19, Direct Red 28 et Direct Blue 86) avec trois coagulants différents à base d'aluminium (sel d'aluminium classique, chlorure de polyaluminium (PACl) et hydroxyde de polyaluminium appelé  $Al_{13}$  purifié). Leurs résultats ont montré que dans la plupart des cas, l' $Al_{13}$  avait la performance la plus élevée.

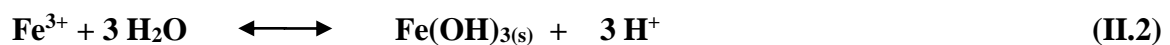
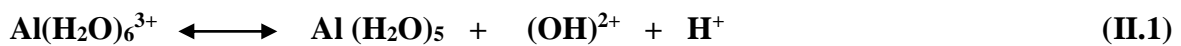
Dans le même état d'esprit Carvalho et al, (2002) ont montré que le chlorure ferrique s'est avéré efficace pour éliminer le Rouge Brillant mais n'était pas efficace avec Remazol Violet Brillant. Dans une autre étude réalisée par Kim et al, (2004) où ils ont étudié la coagulation de deux colorants réactifs par utilisation du chlorure ferrique, Ils ont observé que les éliminations maximales étaient à pH 7 de **23%** de la DCO, de **41%** du colorant le Réactive Blue 49 à pH 6 de **63%** de la DCO et de **44%** du colorant le Jaune réactif 84, Butt et al, (2005) ont bien montré que, le chlorure ferreux n'est capable de décolorer qu'environ **58 à 64%** des colorants, tandis que le chlorure ferrique éliminerait **79 à 82%** des colorants réactifs.

Cependant, Karthikeyan et al, (1990) ; Mohan et al, (1999) ; Gaydardzhiev et al, (2006) ont bien suggéré qu'en raison de la variété des molécules des colorants, l'élimination de ces derniers d'une solution est complexe et peut être due à des réactions physico-chimiques de type coagulation et/ou chélation/complexation.

Toutefois, il faut noter que le pH final diminue avec la variation de la concentration des doses de coagulant injectées aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique (Figures II.3). Ensuite, une légère augmentation apparaît en particulier pour le RC en présence du sulfate d'aluminium.



L'évolution du  $\text{pH}_f$  en fonction de l'accroissement de la dose de coagulant montre une diminution progressive de ce  $\text{pH}$ , Ce qui était prévisible compte tenu des réactions d'hydrolyse du sulfate d'aluminium qui permettent la libération d'ions  $\text{H}^+$  dans le milieu réactionnel, Les résultats révèlent que, les conditions optimales pour éliminer les colorants testés étaient pour, le sulfate d'aluminium dans la gamme de  $\text{pH}$  allant de **3,39** à **4,57** tandis que pour le chlorure ferrique l'intervalle varie de **2,66** à **3,11** (**Figures II,3**). Cette baisse du  $\text{pH}$  a été expliquée par le fait qu'en solutions aqueuses, l' $\text{Al}^{3+}$  et le  $\text{Fe}^{3+}$  sont des ions fortement hydratés et se trouvent entourés d'une couche d'eau, Les charges d' $\text{Al}^{3+}$  et du  $\text{Fe}^{3+}$  fortement positives des ions métalliques centraux provoquent une certaine polarisation des liaisons O-H et il y a une tendance à se dissocier pour donner une ou plusieurs espèces hydroxylées (**Saucier et al, 2015**). Les réactions chimiques représentent ce processus par les équations suivantes (**II.1-2**), Où les complexes d'ions  $\text{Al}^{3+}$  et  $\text{Fe}^{3+}$  dans l'eau agissent comme des acides faibles.



En plus, les colorants industriels ne sont pas des composés purs mais ils contiennent des additifs et des divers impuretés plus au moins dangereux. Leur degré de pureté varie d'un lot à l'autre, ce qui peut affecter la coagulation du colorant traité (**Zahrim et al, 2011**) et vu aussi la manière et le degré de solubilité des colorants, dont la poudre du colorant Méthyle violet est difficilement soluble lors de la préparation des solutions mères. Il apparaît qu'il est très concentré même à faibles concentrations (forte coloration) tous ces critères peuvent influencer d'une manière ou d'autre l'effet du procédé sur le taux d'élimination des colorants.

Ces résultats indiquent également que les molécules de MV sont probablement moins éliminé par rapport aux celles de VB en raison à une forte compétition avec les molécules de coagulant dont les sites et les ponts de ce dernier ont plus capable de créer une certaine liaison entre les particules colloïdales de MV.

D'après une recherche de **Lee et al,(2006)**, ils ont évalué la performance de la coagulation combiné avec le procédé d'adsorption sur l'élimination des colorants, ils ont conclu que la quantité des ions d'aluminium dans un coagulant détermine le degré de déstabilisation des colorants et que la dose de coagulant est capable de modifier la quantité de floccs formés et leur tendance à la sédimentation mais d'autre direction, l'efficacité d'élimination du

colorant a diminué avec l'augmentation de la dose du coagulant au-delà d'une certaine dose optimale et ils ont décrit aussi que l'effet de coagulation était fortement dépendant du pH de la solution.

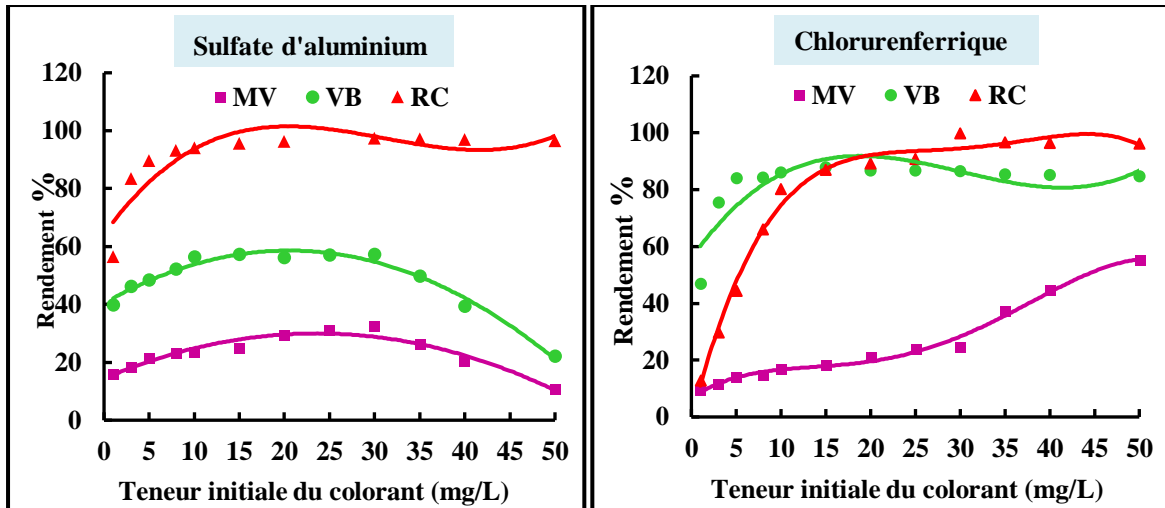
**Moghaddam et al, (2010)** ont montré la même théorie pour le chlorure ferrique d'après les résultats qu'ils ont trouvé sur l'élimination d'un colorant par des boues d'une station de traitement (boues de chlorure ferrique). À travers cette étude ils ont confirmé l'hypothèse qui considère que l'hydrolyse et la précipitation du métal d'hydroxyde sont contrôlées par le pH, La réaction de la dissociation lors de l'ajoute des ions  $Fe^{3+}$  est donnée par l'équation (II.2). Cette réaction représente la formation du précipité d'hydroxyde de fer ( $Fe(OH)_3$ ) par hydrolyse sachant que l'acidité libérée réagit ensuite avec les espèces de la solution.

Dans ce contexte, et d'après les résultats de cet essai, nous pouvons dire que la différence d'efficacité d'élimination des trois colorants étudiés peut provenir principalement des différentes structures chimiques de chaque colorant, de la différence de leurs solubilités et de la composition du coagulant. Cela mène à conclure que la composition chimique du coagulant et la structure du colorant sont deux paramètres si importants et qu'ils ont un effet direct sur le rendement d'élimination de colorant par la coagulation-floculation.

Ces résultats montrent aussi que le chromophore azoïque est le plus facile à coaguler. À la lumière de ce constat, la coagulation présente un plus grand potentiel en tant que traitement puisque 70% des colorants actuellement utilisés sont de type azoïque. De plus, **Yu et al, (2002)** et **Han et al, (1999)** ont rapporté que les colorants qui contiennent le plus grand nombre d'azoïques seront plus facilement coagulés.

### **II.2.2. Effet de la teneur initial du colorant**

Cet essai consiste à étudier l'influence de la teneur initiale de chaque colorant sur l'efficacité de son élimination par coagulation-floculation. Pour les conditions de l'essai nous avons gardé la dose optimale des coagulants (**SA= 40mg/L** (RC), **SA= 60 mg/L** (VB et MV), (**CF = 80 mg/L** ( MV), **CF = 70 mg/L** (VB) et **CF= 100 mg/L** (RC) le pH du milieu non ajusté, les conditions d'agitation rapide (vitesse d'agitation 150 tr/min pendant 3 min), et une agitation lente (vitesse d'agitation 45 tr/min pendant 17 min). La gamme de la variation de la teneur initiale des colorants testés est comprise entre **1** et **50 mg/L**. Les résultats obtenus sont présentés par la **Figure II.5**.



**Figure II.5 :** Effet de la variation de la teneur initiale du colorant,  $[Al_2SO_4] = [FeCl_3] =$  Dose optimale (mg/L). pH non ajusté

D'après la **Figure II.5** nous pouvons constater d'une manière globale que les rendements d'élimination de chaque colorant par les deux coagulants ont augmenté avec l'augmentation de la teneur initiale du colorant. Donc, l'efficacité d'élimination du RC, VB et le MV augmentent jusqu'à un optimum puis une diminution plus au moins importante est apparue. À l'exception le MV en présence du chlorure ferrique présente un autre phénomène, l'élimination de ce colorant augmente avec l'augmentation de sa teneur initiale. Par ailleurs, dans notre étude et quel que soit le coagulant que nous avons mis en œuvre, l'optimum correspond toujours aux rendements maximums obtenus au cours des essais de la variation de la dose des coagulants. De même, l'efficacité du sulfate d'aluminium dans l'élimination des colorants testés reste toujours moins élevée en comparaison avec le chlorure ferrique (**Figure II.5**). Suite aux travaux de [Gheraout et al, 2009 ; 2010; 2018](#), nous pourrions dire peut être que, les noyaux aromatiques qui contiennent des fonctions amino et phényle caractéristiques de la structure chimique de RC, de VB et de MV, ces catégories fonctionnelles ordinairement peuvent affecter l'efficacité du processus de la coagulation en facilitant leur élimination par : la neutralisation des charges, la formation, l'agrandissement et la décantation des floes.

Dans des tendances similaires, certains auteurs ont montré qu'il y a un optimum dans l'élimination des colorants et ensuite il y a une diminution dans les rendements. Parmi ces travaux, on peut citer le procédé de la coagulation-floculation pour l'élimination des colorants par des résidus du traitement de l'eau ([Mahesh et al, 2016](#)). Les résultats de ces

auteurs ont montré une plus grande élimination de la couleur à des valeurs de pH plus faibles. Des éliminations maximales de la couleur de **88,87** et **76%** ont été obtenues pour des concentrations initiales de colorant de **25,50** et **75 mg/L**, respectivement, à pH **3** avec une dose de résidu du traitement de l'eau de **3000 mg/L**. Des résultats identiques ont été obtenus par **Ghernaout et al, (2018)**, dans l'élimination de deux colorants par utilisation du sulfate d'aluminium et du chlorure ferrique.

D'autres travaux (**Yuan-Shing et Ha-Manh, 2014**), sur l'application de l'électrocoagulation avec une électrode en fer, ont montré qu'avec une variation de la concentration initiale du colorant de **30** à **140 mg/L**, les efficacités étaient supérieures à **40%**, pour les teneurs en colorants inférieures à **50 mg/L**. Juste après cette teneur (**50 mg/L**), l'efficacité d'élimination des colorants correspondant à **41,9%**. Mais avec l'accroissement de la teneur des colorants à **140 mg/L**, les rendements d'élimination tombent immédiatement autour de **24 %**.

En contrepartie, des résultats contradictoires ont également été obtenus lors de la décoloration des eaux résiduaires des teintures réactives telles que les colorants Bleu 19, Noir 5 et Rouge 195 par le polychlorure d'aluminium, les auteurs ont enregistré une diminution immédiate avec l'augmentation de la teneur initiale des trois colorants testés (**Yuan-Shing et Ha-Manh, 2014**).

**Kim et al, (2004)** au cours de leur étude, ils ont montré que plus la concentration des colorants testés augmente plus l'élimination est efficace et que les colorants réactifs (le bleu 106, le jaune 54) ont une élimination appréciable en comparaison avec les colorants dispersés (Bleu49 et le bleu 84). De ce fait, ils ont marqué aussi que, ce phénomène est dû au fait que, les particules de colorant dans l'eau sont chargées négativement sur leurs surfaces et les colorants réactifs sont plus fortement chargés que les colorants dispersés. Le sel ferrique agit en tant qu'acide en donnant des ions  $H^+$  aux molécules d'eau dans la solution, donc il y a une adsorption et/ou une précipitation (ligand et solution) qui se produit.

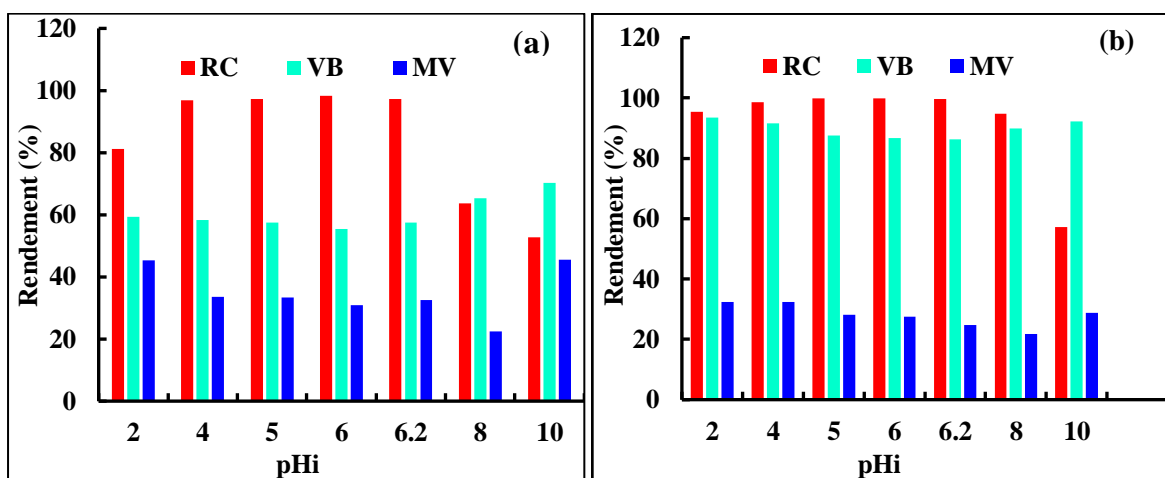
### **II.2.3. Effet de la variation du pH**

**Moghaddam et al,(2010) ; Aboulhassan et al,(2006) ; Nandi et PATEL, (2017)**, ont rapporté que, le pH est un élément indispensable et très important dans l'étude des performances du procédé de la coagulation-floculation, et plus particulièrement lors de

l'élimination des colorants, Il peut avoir un effet sur l'élimination du colorant en influençant sur la spéciation du coagulant, le comportement d'hydrolyse du colorant et les molécules de colorant en solution. En conséquence, cela aura un impact significatif sur le mécanisme d'élimination du colorant. **Wong et al, (2007) et Joo et al, (2007)** ont marqué que chaque coagulant est efficace dans la décoloration des colorants dans une plage spéciale de pH. De ce fait, l'utilisation d'un coagulant à son pH optimal donne une élimination maximale des polluants.

Pour étudier l'incidence de la variation du pH initial des solutions des colorants étudiés, une série des essais de la coagulation a été réalisée :

Une concentration fixe de colorant testé égale à **30 mg/L**, une dose de sulfate d'aluminium et du chlorure ferrique correspondre à la dose optimale. Pour aboutir à notre objectif nous avons varié le pH dans une gamme allant de **2 à 10**, le pH des solutions a été ajusté par l'acide chlorhydrique (HCl) à **0,1N** pour avoir un milieu acide et alcalin par l'utilisation de l'hydroxyde de sodium (NaOH) à **0,1N**. Les résultats trouvés sont illustrés sur les histogrammes de la **Figure II.6**



**Figure II.6 :** Effet de la variation du pH initial des solutions (a) sulfate d'aluminium (b) Chlorure ferrique  $[Al_2SO_4] = [FeCl_3] = \text{Dose optimale (mg/L)}$ ,  $[MV] = [RC] = [RC] = 30 \text{ mg/L}$

D'après les résultats que nous avons obtenu (**Figure II.6**), nous pouvons dire que, le même phénomène et/ou mécanisme est produit aussi bien pour l'aluminium ( $Al^{3+}$ ) que pour le fer ( $Fe^{3+}$ ). De ce fait :

Pour le VB : l'efficacité d'élimination du VB diminue dans la gamme de pH allant de **2 à 8**, Cela s'explique globalement par le fait que le VB est un colorant cationique en solution et

qu'il est chargé positivement. Le processus de coagulation-floculation peut être difficile à exécuter en raison des forces répulsives entre les charges du VB et de l' $\text{Al}^{3+}$  et le  $\text{Fe}^{3+}$  respectivement. Lorsque le pH augmente (8 à 10), la solution devienne basique et le milieu réactionnel de plus en plus négatif, Les forces électrostatiques sont envisagées pour améliorer le rendement de l'élimination du VB.

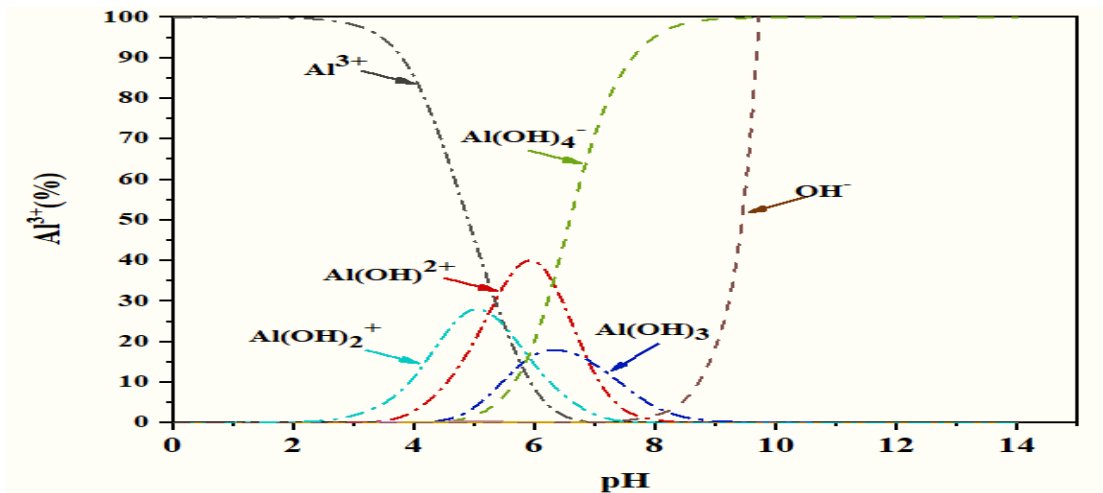
Nos résultats pour le MV montrent qu'il peut atteindre des rendements égale à **45,35 % et 45,52 %** pour l' $\text{Al}^{3+}$ , de **32,38% et 28,71%** pour le  $\text{Fe}^{3+}$  à des pH acides (pH=2) et basiques (pH = 10), respectivement. Ce colorant a subi une diminution à des pH allant de pH = 4 à 8, Ce qui implique que l'élimination du MV est moins favorable dans cette gamme, Ceci s'explique comme suit : Le MV est un indicateur coloré ayant des propriétés acido-basiques, avec des couleurs différentes pour les milieux acide et basique. La valeur pKa du MV étant de **7,67**, elle est à peu près égale au pH du milieu, On peut dire qu'à cette valeur de pH, les deux formes acide et basique (A-/AH) peuvent être dégradées, mais à pH <pKa, seule la forme acide (AH) peut être dégradée, et à pH >pKa, seule la forme basique peut être dégradée (A-) ([Benamara et al, 2021](#)).

Parallèlement aux VB et MV, les meilleures performances en termes d'élimination de la couleur pour le RC ont été atteintes à des pH compris entre 4 à 6,2. Cette gamme de pH correspond à la région dans laquelle il y'a formation des particules d' $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ ,  $\text{Al}_2(\text{OH})_2^{2+}$ , et  $\text{Al}(\text{OH})_3$ rajouter les espèces du fer tels que,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Fe}(\text{OH})_2^+$  et  $\text{Fe}_2(\text{OH})_2^{4+}$ , (les diagrammes d'hydrolyse de l'aluminium et du fer ferrique en fonction du pH a également été proposé ([Figure II.7 et 8](#)), Dans ces conditions (pH compris entre 4 à 6), le milieu de la coagulation est acide, une production d'une charge positive est effectué en augmentant la densité de cette charge ( $\text{H}^+$ ) autour des hydrolyses du coagulant, Ce qui a été confirmé par le travail de [Puchana-Rosero et al, \(2018\)](#).

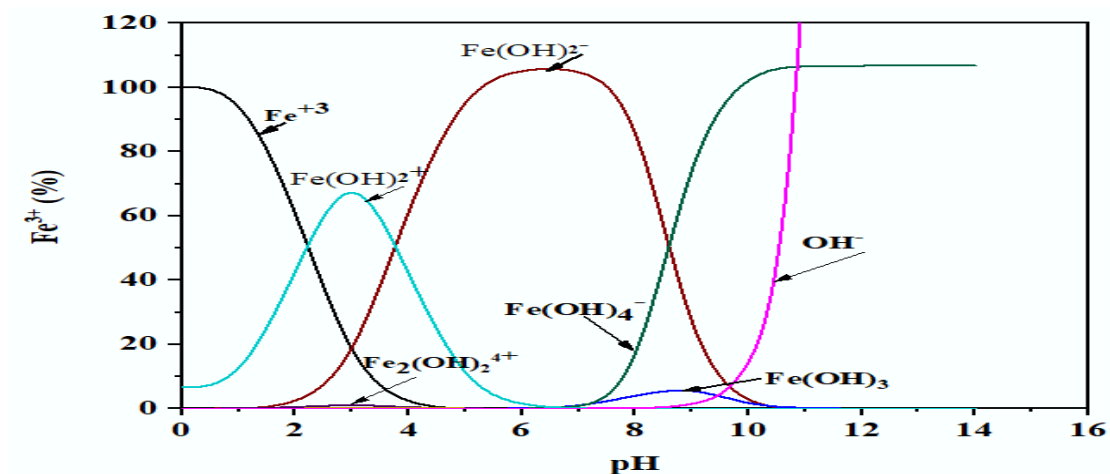
Le pH=6 est le pH optimal auquel **98,20%** et de **99,85%** d'élimination du RC a été observé respectivement pour le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique.

A pH > 6, l'efficacité d'élimination du RC a diminué, ce qui pourrait être dû à la formation des composés solubles d'ions aluminium. A ce stade, l'alcalinisation du milieu est évidemment défavorable à l'élimination du RC par d'aluminium et le fer. Cela était probablement dû à la concentration croissante de  $\text{Fe}(\text{OH})_4^-$  et d' $\text{Al}(\text{OH})_4^-$  qui se produit à ces valeurs de pH, ce qui réduit leur attraction pour les composés organiques anioniques.

Suite aux résultats que nous avons obtenu, nous pourrions dire peut être que, selon le degré d'ionisation des groupements fonctionnels de chaque colorant testé et le pH du milieu, l'ajout des sels de fer ou d'aluminium dans le milieu réactionnel peut entraîner la formation d'un complexe organique/espèces hydrolysées métalliques jouant un rôle promoteur ou bien inhibiteur du procédé de la coagulation-floculation.



**Figure II.7 :** Diagramme de répartition des espèces hydrolysées de l'aluminium en fonction du pH à l'aide du logiciel Visual MINTEQ (version 3,1).  $[Al] = 60 \text{ mg/L}$  à  $25^\circ\text{C}$



**Figure II.8:** Diagramme de spéciation du fer ferrique pour une dose optimale en fonction du pH à l'aide du logiciel Visual MINTEQ (version 3,1).  $[Fe^{3+}] = 70 \text{ mg/L}$  à  $25^\circ\text{C}$

L'ensemble de nos résultats rejoint les conclusions faites par les travaux suivants :

**Patel et Vashi, (2012)** ont observé que l'élimination de RC par coagulation-floculation était plus élevée dans des conditions acides, en particulier à pH égal à 4. L'élimination est de 84,5%, 81,2 % et 74,1% a été trouvée avec des coagulants en poudre préparés à partir

de la graine de Surjana (un produit végétale se trouve dans les pays d'Asie du sud-Est), graine de Maïs et le Chitosane, respectivement.

**Mahesh et al, (2016)** ont montré pour un pH acide (pH =3) l'élimination de RC est de **88, 87 et 76%** et **76%**, ces résultats ont été acquises pour des concentrations initiales de RC de **25,50 et 75 mg/L**, respectivement. Des résultats similaires (**Moghaddam et al, 2010; 2011**) ont été rapportés dans la littérature ont montrés que le pH optimal était d'environ de **4 et 5**, auquel l'élimination d'un colorant acide (Rouge 398) étaient de **94,2% à 96,5%** par le polyaluminium de chlorure et le chlorure ferrique respectivement.

**Mukhlis et al, (2016)** ont étudié l'élimination du colorant réactif (Rouge 3BS) par coagulation-floculation couplée à l'adsorption sur des feuilles de papayer dans la gamme de pH allant de **4 à 8**. Ils ont considéré que le pH de **5,5** est le pH optimal, auquel **83,64%** d'élimination du colorant a été observé. Ils ont indiqué aussi, que la performance de l'élimination du colorant à des pH très bas et élevés était très faible, seulement **3,6%** et **29,5%** à pH **2** et **10**, respectivement.

En contre partie, d'autres travaux ont des résultats contradictoires (**Puchana-Roseroa et al, 2018**) lors du processus de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium combiné à l'adsorption à l'aide d'un charbon actif préparé à partir des boues des eaux usées de tannerie. Ils ont montré que dans la gamme de pH acide entre 1 et 3, seulement **15,31%** d'élimination des colorants (noir acide 210 (AB-210)) ont été atteints. Mais, à pH=4, le pourcentage d'élimination du colorant augmente rapidement est atteint **62,80%**, à pH basique (pH =10) l'élimination était la plus efficace (**93,2 %**).

Dans le même contexte, un travail effectué par **Yuan-Shing et Ha-Manh,(2014)** sur la décoloration d'une solution de réactif Rouge 195 par le polyaluminium de chlorure. Ils ont indiqué que la plus faible élimination de la couleur a été enregistrée entre les pH **3** et **6**, avec des efficacités d'élimination inférieures à **18%**. Néanmoins, lorsque le pH des solutions de colorant a augmenté de **6** à **11**, la décoloration a considérablement augmenté et a atteint un pic à pH **11**, puis une chute d'élimination est apparue d'une manière significative dans la zone fortement basique (pH **12**).

Cependant, il est important de noter que d'autres chercheurs (**Hoong et Ismail, 2018 ; Ghernaout et al, 2018 ; Goudjil et al, 2021**), ont montré que dans les conditions acides la

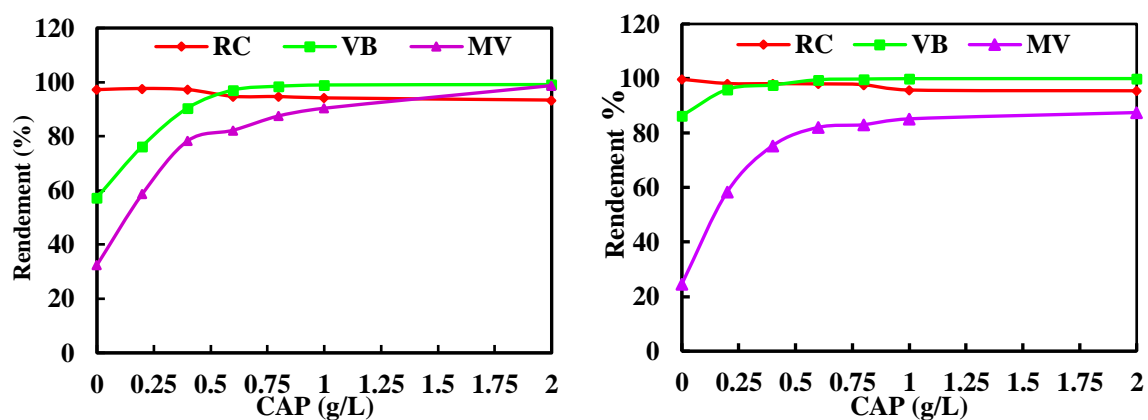


décoloration par coagulation-floculation est plus efficace et possède de nombreux avantages que dans la condition basique.

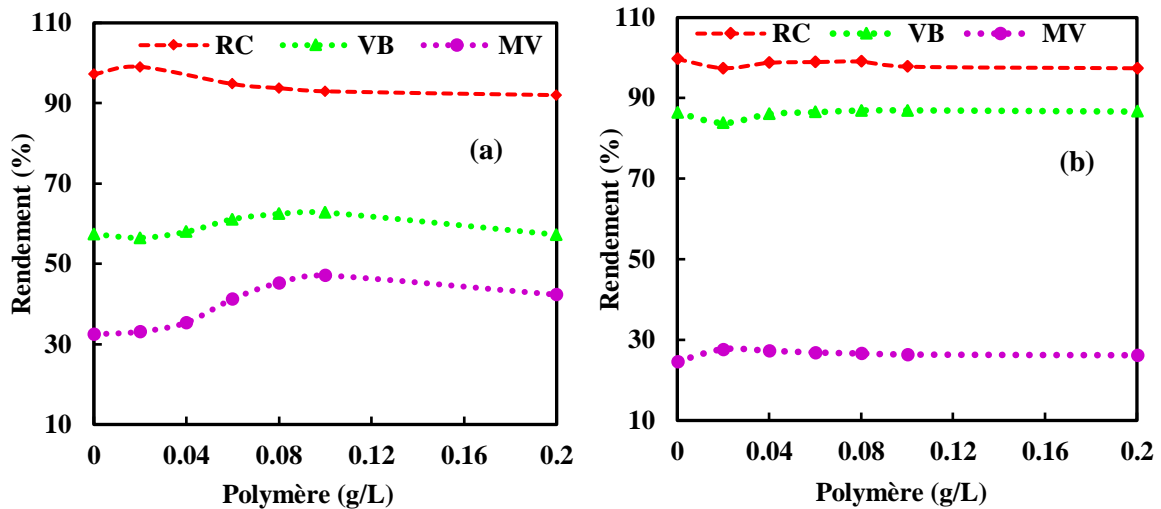
**Kim et al, (2004)** ont montré que le maximum d'élimination de bleu dispersé 106 et le jaune dispersé 54 étaient de **71,7%** à pH 6 et de **93,9%** à pH 5. De petits changements dans les efficacités d'élimination ont été observés dans la plage de pH allant de 5 à 8. Entre le pH 4 et 5 et le pH 8 et 9, les différences efficacité d'élimination des colorants étaient relativement importantes. Cependant, les éliminations maximales du bleu réactif 49 et du jaune réactif 84 étaient de **40,6%** à pH 7 et de **43,9%** à pH 6. Dans toutes les plages de pH, de petits changements dans les efficacités d'élimination ont été observés. L'élimination des colorants dispersés était plus élevée que celles des colorants réactifs.

#### II.2.4. Effet des adjuvants sur le procédé de la coagulation-floculation

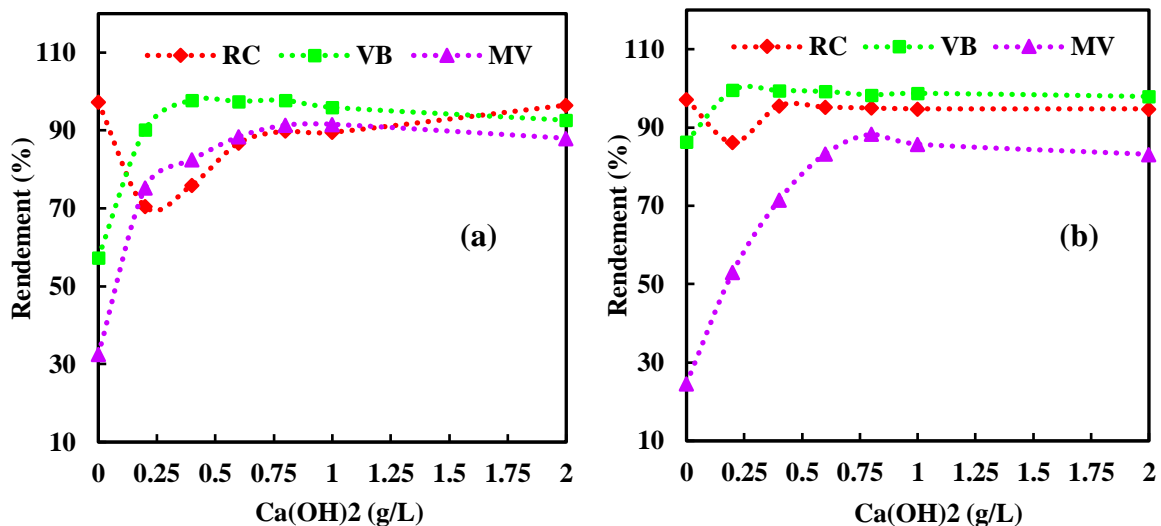
Pour améliorer l'efficacité d'élimination du RC, VB et MV par coagulation-floculation nous avons testé l'effet de trois adjuvants. Ceux-ci sont un charbon actif en poudre (CAP), un polymère agroalimentaire ramené de la station de traitement des eaux du barrage Koudiat Lamdaouar (dans la commune de Timgad-Batna) et la chaux ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ), Pour atteindre notre objectif, nos tests ont été réalisés avec le même protocole de Jar-test que les essais décrits antérieurement, aux doses optimales des coagulants ( $\text{SA} = 40 \text{ mg/L}$  pour le RC et de  $60 \text{ mg/L}$  pour le VB et MV,  $\text{FeCl}_3 = 70 \text{ mg/L}$  pour le VB,  $\text{FeCl}_3 = 80 \text{ mg/L}$  pour le MV et  $\text{FeCl}_3 = 100 \text{ mg/L}$  pour le RC) et avec une concentration fixe du colorant de  $30 \text{ mg/L}$ . Les doses des adjuvants ont été variées de 0 à 2 g/L pour les CAP, de 0 à 2 g/L pour la chaux ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) et de 0 et 0,2 g/L pour le polymère. Les résultats que nous avons obtenu sont présentés par les courbes des **Figures II.9–11**.



**Figure II.9 :** Effet de la variation du charbon actif en poudre CAP, (a) sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique.  $[\text{Al}_2\text{SO}_4] = [\text{FeCl}_3] = \text{Dose optimale (mg/L)}$ ,  $[\text{MV}] = [\text{RC}] = [\text{RC}] = 30 \text{ mg/L}$



**Figure II.10:** Effet de la variation du polymère, (a) Sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique.  $[Al_2SO_4] = [FeCl_3] =$  Dose optimale (mg/L),  $[MV] = [RC] = [RC] = 30$  mg/L



**Figure II.11:** Effet de la variation de la chaux ( $Ca(OH)_2$ ), (a) Sulfate d'aluminium (b) chlorure ferrique.  $[Al_2SO_4] = [FeCl_3] =$  Dose optimale (mg/L),  $[MV] = [RC] = [RC] = 30$  mg/L

À travers nos résultats (**Figures II.9 à II.11**), on observe qu'il y a une augmentation dans les rendements d'élimination des colorants le VB et MV jusqu'à une valeur optimale, puis une stabilité ou bien une diminution plus au moins remarquable. À l'exception dans le cas de la combinaison du coagulant, aussi bien le sulfate d'aluminium que celui du chlorure ferrique, avec la chaux dans le but d'éliminer le RC, le phénomène est apparu contradictoire. Il y a une diminution des rendements d'élimination du RC, puis une amélioration des rendements est exposée. L'amélioration des rendements d'élimination du RC est apparue progressivement à partir de la concentration **0,4 g/L** de  $Ca(OH)_2$ , le

rendement maximal est de **95,57%** et de **96,50%** respectivement pour le chlorure ferrique et le sulfate d'aluminium. Dans cet essai, il pourrait être un phénomène de précipitation, qui est apparu accompagné d'une augmentation des valeurs de pH (**Tableau II,1**). En effet, plus le pH est élevé, plus les espèces négatives du coagulant sont plus présentes dans la solution et les coagulants d'aluminium ont dû neutraliser et précipiter les espèces chargées.

Au vu de nos résultats, nous pourrions dire globalement que, la combinaison du sulfate d'aluminium avec les différents adjuvants testés est prédominante dans l'élimination du RC, VB et MV en comparaison avec le chlorure ferrique. De même, la combinaison du CAP aussi bien avec le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique est efficace dans l'élimination des colorants testés, le CAP joue le rôle d'un adsorbant. Tandis que, **0,02 g/L** de polymère enregistre une élimination quasi-totale du RC et atteint **99,06 %**.

En comparant les trois adjuvants entre eux, on constate que l'utilisation du polymère améliore l'élimination des trois colorants testés ou la décoloration est très bien marquée, ainsi que pour le CAP. Selon la théorie de la coagulation ([Zonoozi et al, 2009](#); [Mukhlis et al, 2016](#); [Bisht et La, 2019](#); [Ishak et al, 2020](#)), la bonne élimination pourrait être expliquée par le fait que le CAP et le polymère neutralisent la charge de la molécule de colorant et celle-ci se lie aux surfaces du CAP et du polymère par des forces faibles comme les forces de van der Waals et engendre la formation des floccs. Ces floccs sont combinés avec d'autres floccs, pour former des grosses floccs qui s'éliminent facilement.

En revanche, dans le cas où nous avons enregistré une diminution remarquable des colorants testés avec l'augmentation de la quantité des adjuvants combinés au coagulant, s'explique par la production et la restabilisation des colloïdes suite à un dosage excessif des réactifs.

[Pàpic et al,\(2004\)](#) ont aussi utilisé la coagulation-floculation combinée avec l'adsorption par CAP comme procédé de traitement des eaux usées textiles chargées par des colorants réactifs. Les résultats de leurs travaux expérimentaux montrent que cette combinaison offre un excellent moyen de décoloration avec une efficacité très élevée. Le résultat le plus significatif de ce test est que la combinaison a entraîné une décoloration dans les béchers des trois colorants étudiés et même aux petites quantités du CAP où le colorant n'était pas visible.

Cependant, nos résultats sont confirmés par les travaux suivants :

**Georgiou et al, (2003)** ont testé l'effet de la chaux sur l'élimination des colorants des eaux usées de textile par coagulation-floculation, Ils ont bien montrés que, malgré la quantité élevée des coagulants (chaux et sulfate ferreux) utilisée, seule une très légère amélioration de la couleur et de la DCO est observée. La destruction de la couleur et de la DCO a atteint son maximum (**85-95%** et **70%**), respectivement lorsque la chaux et le sulfate ferreux ont été appliqués à une concentration de **800** et **1000 mg/L**, et **1000 mg/L** respectivement.

**El-Gohary et Tawfik, (2009)** ont varié la dose de polymère cationique (cytec) de **1** à **5 mg/L** pour étudier son effet sur la décoloration et la réduction de la DCO des eaux colorées (disperse et réactive) en association avec une dose constante de sulfate d'aluminium (**200 mg/L**), à un pH initial **6,6** par le procédé coagulation et ils ont trouvé que la dose optimale de est de **1,0 mg/L**, cette dernière a éliminé environ de **94%**. Cependant, lorsque la dose de polymère augmente au-dessus de **1 mg/L**, l'amélioration de la décoloration était négligeable. Ils ont conclu que cette diminution est peut-être due au mécanisme de pontage.

D'après (**Mahr et al, 2019**), le pourcentage d'absorption du colorant méthyle violet a été augmenté avec l'augmentation de la quantité d'adsorbant de **0,04** à **0,1 g** à adsorbant non modifié et modifié (à base des noyaux de palmes); le pourcentage n'était pas significativement modifié en augmentant la quantité d'adsorbant de **0,1** à **0,15 g** où il a resté constant. Cela est dû à certains facteurs initiaux y compris l'occupation de la quasi-totalité sites d'adsorption à l'aide de MV et l'équilibre créé entre le colorant absorbé sur la surface de l'adsorbant et la quantité du MV restant dans la solution. Cela confirme nos résultats dans la deuxième partie de l'évolution des courbes où les rendements sont presque constants après des certaines quantités du CAP.

De la même sorte (**Mall et al, 2006**) ont trouvé au cours de l'élimination des colorants orange-G (OG) et Méthyle Violet (MV) par adsorption sur la bagasse que l'effet du dosage de l'adsorbant sur l'élimination de divers colorants augmente le pourcentage d'élimination proportionnellement jusqu'à une certaine limite puis il atteint une valeur constante. Dosages optimaux des cendres volantes de bagasse étaient de **0,1** et **0,2 g** par **50 mL** de solution d'OG et MV respectivement. L'augmentation de l'adsorption des colorants avec le

dosage d'adsorbant était due à la disponibilité d'une plus grande surface de l'adsorbant pour adsorption.

Nos résultats sont conformes à plusieurs études déjà réalisées dans la même direction mais avec une certaine variabilité dans les conditions expérimentales, (El-Gohary et Tawfik, 2009) ont étudié la décoloration et la réduction de la DCO des eaux colorées (disperse et réactive) par le même procédé en utilisant la chaux comme adjuvant. Où ils ont montré que l'efficacité d'élimination des colorants augmente avec l'augmentation des doses de la chaux mais cette dernière provoque également une augmentation des valeurs de pH<sub>f</sub> des solutions dont à **600 mg/L** de chaux le pH<sub>f</sub> atteint à **11,7**.

Dans ce test, il y a un phénomène de précipitation, qui est apparu accompagné d'une augmentation de valeurs de pH (**Tableau II.1**), cette augmentation est le résultat de la solubilité de Ca(OH)<sub>2</sub> dans l'eau qui provoque la formation des ions H<sup>+</sup> et donc par conséquent l'augmentation des valeurs de pH final des solutions. En effet, plus le pH est élevé, plus les charges négatives portées par la solution sont élevées et les coagulants d'aluminium ont dû neutraliser et précipiter les espèces chargées. Et donc, on a constaté que les valeurs élevées de pH<sub>f</sub> des solutions sont attribuées par la dissolution partielle de la chaux.

De même Georgiou et al, (2003) ont pareillement testé l'effet de la chaux sur l'élimination des colorants des eaux usées de textile par coagulation. Leur étude a prouvé l'efficacité de ce composé pour la dégradation de couleur dont les rendements d'élimination ont été très élevés à toutes les longueurs d'onde des colorants existants dans les échantillons étudiés mais ils ont noté aussi que le seul résultat indésirable de cet adjuvant est l'augmentation du pH<sub>f</sub> des solutions traitées ce qui nécessite une certaine neutralisation pour atteindre les normes de rejets.

Le **Tableau II.1** illustre les pH<sub>f</sub> des solutions traitées par la combinaison (Coagulant-La chaux) :

**Tableau II.1 :** Valeurs de  $pH_f$  des solutions des colorants testés éliminés par la combinaison (Coagulant-Chaux)

La Chaux (g/L)	0	0,2	0,4	0,6	0,8	1,0	2,0
<b>Rouge Congo (RC)</b>	<b>Sulfate d'aluminium</b>						
	4,25	6,75	9,85	10,59	11,8	11,91	12,19
	<b>Chlorure ferrique</b>						
	1,62	2,66	6,43	6,47	6,48	10,91	12,93
<b>Vert Brillant (VB)</b>	<b>Sulfate d'aluminium</b>						
	4,95	10,88	11,74	11,37	11,17	10,8	12,21
	<b>Chlorure ferrique</b>						
	5,71	6,5	6,69	7,12	10,97	11,43	11,52
<b>Méthyle violet (MV)</b>	<b>Sulfate d'aluminium</b>						
	4,18	4,84	9,94	11,72	11,76	11,99	12,55
	<b>Chlorure ferrique</b>						
	4,5	9,01	9,76	10,20	10,76	11,03	11,43

Notons que l'utilisation des aides coagulants a pour but d'obtenir une plus grande efficacité de traitement et notamment pour réduire la quantité de coagulant, et pour former plus fort et plus décantable floes, les résultats obtenus dans cette partie lors l'exploitation des trois aides coagulants au cours de l'élimination de trois colorants de différentes structure chimique, nous constatons que dans certains cas, les aides coagulantes ont un effet positif sur élimination des certains colorants et alors dans d'autres cas, ils jouent un rôle inhibiteur et réduit l'efficacité d'élimination.

### II.2.5. Etude comparative entre l'effet des deux coagulants sur l'élimination des colorants

Le but principal de cette partie est d'évaluer l'effet de chaque coagulant sur l'élimination des trois colorants étudiés, donc au vu des résultats présentés et discutés précédemment, les valeurs des rendements de décoloration obtenues par  $Al_2(SO_4)_3$  ont été comparé à celles obtenues par  $FeCl_3$  dont nous avons essayé de faire cette comparaison entre les deux coagulants à partir de l'effet de la variation de leurs doses arrivants à leur effet en présence des différents paramètres réactionnels. Les principaux rendements d'élimination obtenus

sont illustrés dans les tableaux récapitulatifs (**Tableau II.2** ; **Tableau II.3** et **Tableau II.4**)

En notant que la fiabilité de cette comparaison impose que les milieux des essais doivent être les mêmes, pour cette raison-là que nous avons suivi les mêmes conditions opératoires à savoir les concentrations initiales des colorants, le pH non ajusté ainsi les gammes de doses de coagulants et d'adjuvants ont été identiques.

**Tableau II.2** : Doses et rendements d'élimination du Méthyle Violet par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels

Paramètres réactionnels	Méthyle Violet			
	Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		FeCl <sub>3</sub>	
	Valeur	R(%)	Valeur	R(%)
Dose optimale du coagulant (mg/L)	60	32,45	80	24,66
Teneur initiale du colorant (mg/L)	30	32,45	30	24,66
pH optimal	10	45,51	2	32,38
Dose optimale de CAP (g/L)	0,5	98,74	0,5	87,52
Dose optimale de la chaux (g/L)	1	91,60	0,8	88,27
Dose optimale de Polymère (g/L)	0,02	47,1	0,02	27,69

D'après le **Tableau II. 2**, nous avons constaté que :

**60 mg/L** d'Al<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> a éliminé plus de **30%** de MV alors que **80mg/L** n'a pu éliminer que **24,66%** du même colorant, les deux coagulants ont une certaine efficacité pour éliminer les fortes concentrations de MV, **pH =10** est le milieu favorable pour l'élimination de ce colorant par le SA et à **pH = 2** pour le chlorure FeCl<sub>3</sub>. La dégradation du MV par la combinaison du sulfate d'aluminium avec les adjuvants est très efficace en comparaison avec celle enregistrée par le chlorure ferrique.

Donc le sulfate d'aluminium est le coagulant le plus performant pour l'élimination de **30 mg/L** de MV des solutions simples en eau distillée et en présence des conditions opératoires citées précédemment.

**Tableau II.3** : Doses et rendements d'élimination du Rouge Congo par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels

Paramètres réactionnels	Rouge Congo			
	Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		FeCl <sub>3</sub>	
	Valeur	R(%)	Valeur	R(%)
Dose optimale du coagulant (mg/L)	40	97,24	100	99,71
Teneur initiale du colorant (mg/L)	30	97,24	30	99,71
pH optimal	6	98,2	6	99,86
Dose optimale de CAP (g/L)	0,05	97,68	0,05	98,18
Dose optimale de la chaux (g/L)	2	99,5	0,6	98,47
Dose optimale de Polymère (g/L)	0,02	99,06	0,08	99,06

D'après le **Tableau II.3**, pour éliminer **30 mg/L** de RC il suffit d'injecter seulement **40 mg/L** de sulfate d'aluminium dont cette dose a une efficacité d'éliminer plus de **97%** de coloration (un très bon rendement), la même concentration de colorant a exigé **100 mg/L** de chlorure ferrique pour éliminer **99,71%** de RC. Il est donc préférable d'utiliser seulement le sulfate d'aluminium lors de l'élimination de ce type de colorant. Ce dernier est presque totalement éliminé par le FeCl<sub>3</sub> à **pH=6 (R=99,86%)**. Selon les résultats de l'effet des adjuvants, nous avons enregistré que ce type de colorant est très bien éliminé par les deux coagulants avec une efficacité très élevée (élimination presque totale et formation des floes même aux faibles concentrations de coagulants), donc cela ne nécessite pas l'amélioration de l'élimination par l'ajout des adjuvants.

**Tableau II.4** : Doses et rendements d'élimination du Vert Brillant par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Effet des paramètres réactionnels

Paramètres réactionnels	Vert Brillant			
	Al <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		FeCl <sub>3</sub>	
	Valeur	R(%)	Valeur	R(%)
Dose optimale du coagulant (mg/L)	60	57,39	70	86,36
Teneur initiale du colorant (mg/L)	30	57,39	30	86,36
pH optimal	2	84,80	2	93,61
Dose optimale de CAP (g/L)	0,5	99,11	0,5	99,97
Dose optimale de la chaux (g/L)	0,4	87,81	0,2	99,56
Dose optimale de Polymère (g/L)	0,1	62,78	0,1	86,97

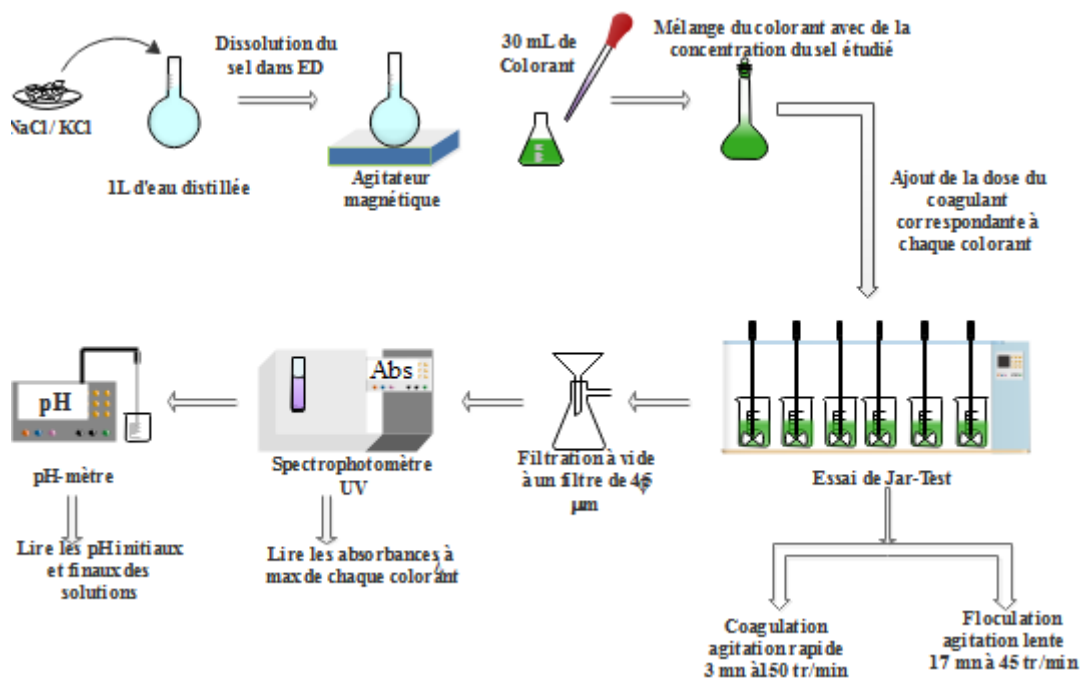


L'efficacité de SA est inférieure à celle des sels de fer pour éliminer **30 mg/L** de VB dont **60 mg/L** de SA a éliminé **57,39%** de couleur alors que **70 mg/L** de  $\text{FeCl}_3$  a décoloré les solutions avec un rendement de l'ordre de **86,36%**. Les deux coagulants ont donné une très bonne décoloration du VB sous l'effet des paramètres présentés dans le **Tableau II.4** à l'exception en présence de **0,1 g/L** de polymère, le sulfate a éliminé **62,78%** de VB alors le chlorure ferrique est de **86,97%**.

### II.3. Incidence de la force ionique (la minéralisation) sur l'efficacité d'élimination des colorants

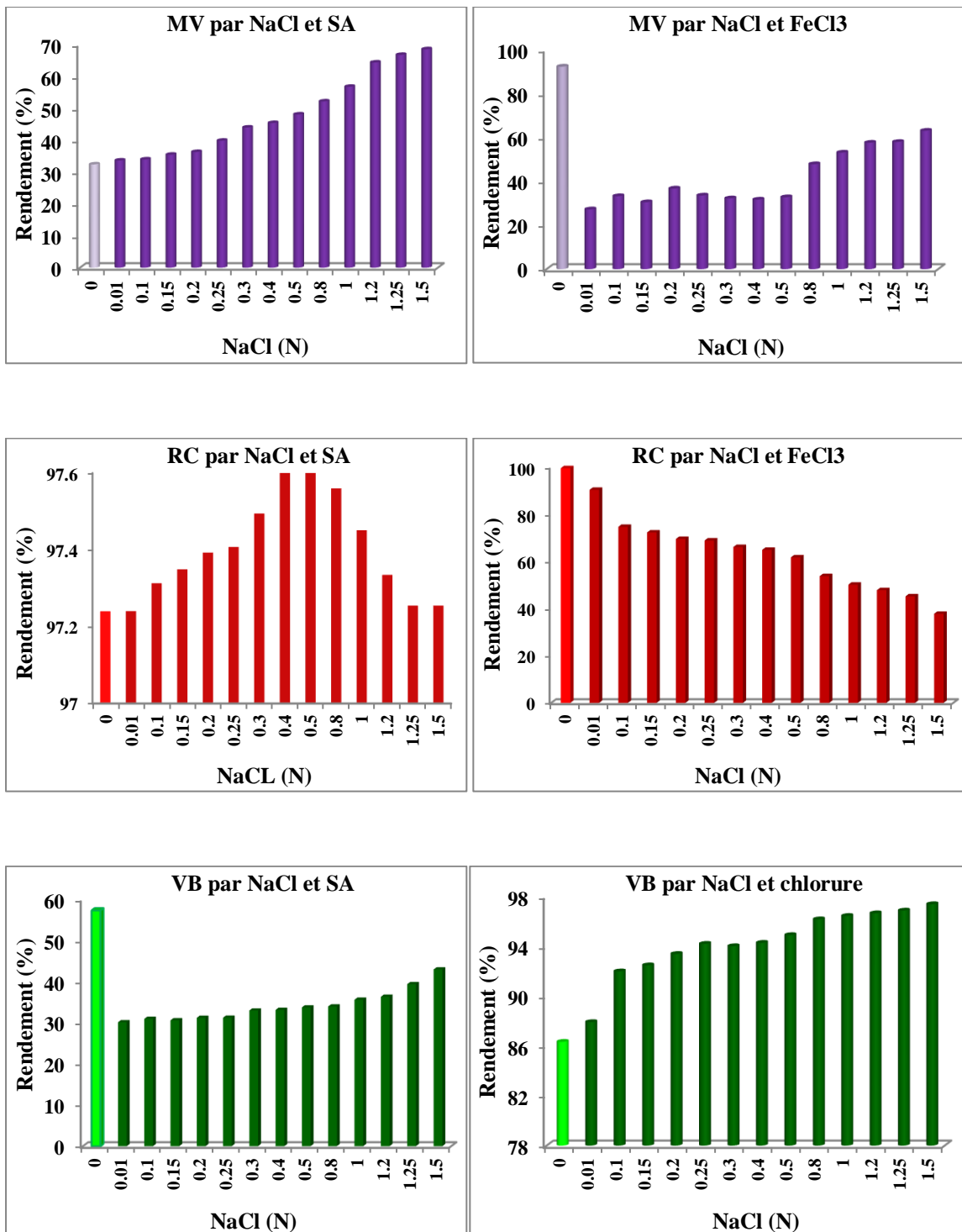
Pour mieux comprendre l'impact de la force ionique sur le processus de la coagulation-floculation, en vue d'éliminer les trois colorants testés (RC, VB et MV) par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique, pris individuellement. Nous avons testé deux types de sels monovalents à base de chlorure : le Chlorure de sodium ( $\text{NaCl}$ ) et le chlorure de potassium ( $\text{KCl}$ ). De ce fait, nous avons considéré les conditions opératoires suivantes : La force ionique varie de **0,01** à **1,5 mol/L**, les doses optimales de coagulants obtenues antérieurement pour chaque colorant et une concentration fixe de colorant de **30 mg/L**.

Le protocole suivi dans cette partie d'étude est expliqué par la **Figure II.12**.

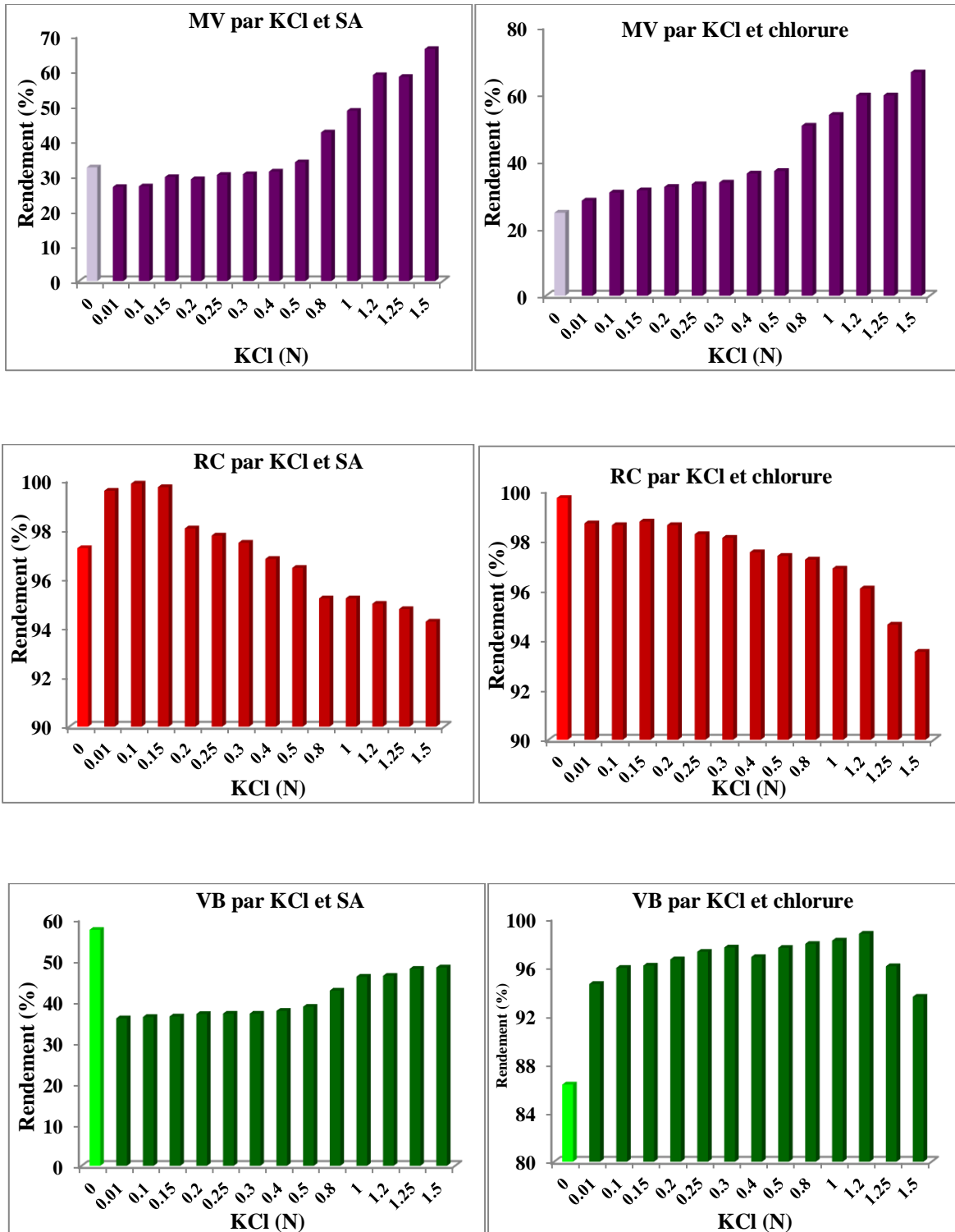


**Figure II.12** : Protocole suivi lors de l'étude de l'effet de la minéralisation sur l'élimination des colorants MV, RC et VB

Les résultats que nous avons obtenus sont présentés sur les histogrammes des **Figures II.13 et II.14**.



**Figure II.13** : Effet de NaCl sur l'élimination de MV,RC et VB en présence de la dose optimale de sulfate d'aluminium et de chlorure ferrique correspondante à chaque colorant



**Figure II.14 :** Effet de KCl sur l'élimination de MV,RC et VB en présence de la dose optimale de sulfate d'aluminium et de chlorure ferrique correspondante à chaque colorant

Les **Figures II.13 et II.14** permettent de visualiser les effets variables de la force ionique des sels minéraux testés sur l'élimination du RC, VB et MV par coagulation-floculation aux sulfates d'aluminiums et aux chlorures ferriques.

Selon les résultats que nous avons obtenus on observe qu'il y'a une diminution dans les rendements d'élimination des colorants testés dans certaines doses de sel en comparaison avec leur élimination en présence du coagulant seul. Pour expliquer cette diminution, nous pouvons noter que, l'effet inhibiteur des anions ( $\text{Cl}^-$ ) dans le milieu réactionnel prend de l'importance, ce qui va se traduire par une diminution du potentiel Zêta et un déplacement du point isoélectrique qui empêche la coagulation des colorants (Marzouk et al, 2011).

Suite à nos résultats on observe d'une part que l'inhibition est remarquable pour le RC (anionique) en comparaison avec le VB et MV qui sont des colorants cationiques, aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique, Ceci pourrait être dû à l'augmentation des forces électrostatiques répulsives avec l'accroissement de la force ionique ; ce qui réduit les performances du processus de la coagulation-floculation.

D'autre part, l'effet inhibiteur est appréciable avec le sulfate d'aluminium en comparaison avec le chlorure pour l'ensemble des colorants testés. Parce que l'ion sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) bivalent est un ion inhibiteur des processus de traitement des eaux, prouvé par certains travaux d'oxydation par le chlore (Achour et Guergazi, 2001), adsorption et coagulation-floculation (Afoufou et al, 2007). Cela peut être justifié par les résultats d'autres études qui ont montré que certains éléments minéraux ont un effet inhibiteur lors de la coagulation-floculation de la matière organique de type humique tels que les sulfates et les chlorures (Achour, 2001; Afoufou et al, 2007). D'autres ont un effet promoteur tels que les éléments participant à la dureté totale, et en particulier le calcium (Letterman et Vanerbrook, 1983 ; Wais-Mossa et Mazet, 1991; Hecini et Achour, 2010).

Parallèlement à l'ensemble de ces travaux de Merzouk et al, (2011) au cours d'une étude sur l'élimination d'un colorant rouge dispersé dans des eaux usées synthétiques par coagulation chimique et électrocoagulation en système continue. Ils ont bien montré que l'ajout du sel du chlorure augmente la conductivité de l'eau et par conséquent, il provoque une légère diminution dans les rendements d'élimination du colorant passant de **91,8 %** à **88,10%**.

Des travaux (Al-Degs et al, 2008) permettant l'élimination des colorants par d'adsorption ont bien montré que l'augmentation de la concentration de NaCl conduit à une diminution importante des rendements d'élimination des colorants réactifs (Bleu 2, Rouge 4 et le Jaune 2).

De l'application de l'adsorption (Al-degs et al, 2008; Hu et al, 2013; Dahri et al, 2016; De Farias Silva et al, 2019).

Selon Al-degs et al (2008), l'ajout du NaCl dans une solution contient un colorant réactif engendre l'augmentation de certaines forces telles que Van der waals, qui consiste à forcer l'agrégation des molécules de colorants par les ions de sel ajouté et donc l'élimination de l'efficacité d'élimination, Sachant que cette dernière est faite par une dose déterminée (0,1 M).

Hu et al (2013) ont conclu que la diminution de l'élimination d'un colorant étudiés est à cause de la répulsion électrostatique entre le colorant et l'adsorbant, alors que l'augmentation d'élimination d'autre colorant en présence de que est dû à la suppression de la répulsion électrostatique et le renforcement de l'attraction hydrophobe.

D'après Dahri et al, (2016), le pourcentage d'élimination du MV par adsorption a été réduit de 81% (0 M) de NaCl à 61 et 58% (0,1 et 0,8 M) respectivement.

De Farias Silva et al, (2019) ont observé que l'augmentation des concentrations de sel engendre une diminution d'efficacité à cause de la compétition crée entre les ions cationiques de  $\text{Na}^+$  et ceux du colorant MB sur la surface de l'adsorbant,

### II.3.1. Effet de la force ionique sur le $\text{pH}_i$ et $\text{pH}_f$ d'une solution

Il est connais théoriquement que l'ajout des sels à une solution a un effet sur le pH final de cette solution, Le (Tableau II.5) illustre les résultats des  $\text{pH}_f$  des solutions testées

D'après une comparaison entre les valeurs de  $\text{pH}_i$  et  $\text{pH}_f$  présentés précédemment (Tableau II.5) il est nettement clair que la présence d'un sel que ce soit le NaCl ou le KCl dans les trois solutions étudiées fait diminuer leurs  $\text{pH}_f$  en comparaison avec ceux initiaux. La présence de la force ionique avec le chlorure ferrique diminue le pH des échantillons étudiés dont cette diminution améliore le rendement d'élimination (Mercer et Tobiason, 2008). Ceci a été remarqué dans les autres cas (Doses des sels). Sachant que, l'augmentation de la minéralisation d'une solution affecte l'activation des ions hydrogène ( $\text{H}^+$ ) et hydroxyde ( $\text{OH}^-$ ) et cela peut affecter par la suite le pH de la solution. Donc, pour diminuer la concurrence de ( $\text{OH}^-$ ), une diminution du pH est nécessaire, cette dernière va augmenter la charge positive de la surface de l'hydroxyde de coagulant (Fer), améliorant

ainsi l'élimination des espèces anioniques de l'échantillon étudié (Mercer et Tobiason, 2008).

Tableau II.5 : Valeurs de  $pH_i$  et  $pH_f$  des solutions étudiées (avant-après) l'ajout des sels

Dose (N)	Sulfate d'aluminium											
	NaCl						KCl					
	MV		RC		VB		MV		RC		VB	
	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$
0	3,86	1,17	4,3	3,39	5	4,54	5,07	4,51	4,8	3,79	4,78	4,12
0,01	4,26	1,95	6,14	4,35	6,15	4,65	5,37	4,65	6,25	4,23	4,81	4,2
0,1	4,57	1,94	6,2	4,42	6	4,71	5,5	4,73	6,28	4,26	4,65	4,28
0,15	4,47	1,89	6,35	4,36	5,68	4,73	5,5	4,73	6,3	4,29	4,92	4,36
0,2	4,49	1,87	6,38	4,34	5,44	4,74	5,56	4,76	6,4	4,37	4,98	4,37
0,25	4,49	1,76	6,45	4,32	5,35	4,76	5,66	4,77	6,45	4,4	5,01	4,42
0,3	4,93	1,64	6,61	4,4	5,16	4,76	5,7	4,79	6,51	4,43	4,99	4,44
0,4	4,93	1,60	6,67	4,5	5,19	4,79	5,72	4,79	6,62	4,47	5,04	4,45
0,5	4,92	1,53	6,67	4,34	5,19	4,78	5,75	4,82	6,68	4,47	5,06	4,45
0,8	4,87	1,41	6,73	4,36	5,27	4,77	5,93	4,84	6,81	4,52	5,12	4,48
1	4,85	1,27	6,67	4,36	5,27	4,73	6,03	4,82	7,18	4,52	5,17	4,49
1,2	4,84	1,05	6,69	4,34	5,29	4,76	6,12	4,82	7,44	4,54	5,24	4,48
1,25	4,83	0,97	6,71	4,31	5,3	4,77	6,19	4,83	7,53	4,54	5,26	4,48
1,5	4,77	0,92	6,71	4,29	5,27	4,72	6,33	4,84	7,64	4,54	5,34	4,49
Dose (N)	Chlorure Ferrique											
	NaCl						KCl					
	MV		RC		VB		MV		RC		VB	
	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$	$pH_i$	$pH_f$
0	5,12	2,62	3,15	2,92	4,6	3,48	4,74	3,1	5,97	3,02	4,75	3,17
0,01	5,12	2,66	7,29	2,22	4,68	3,26	4,68	3,07	6,33	3,19	4,84	3,19
0,1	5,35	2,81	6,49	2,22	4,94	3,26	5,02	3,15	6,44	3,28	5	3,22
0,15	5,36	2,84	6,51	2,25	4,98	3,33	5,07	3,16	6,49	3,13	5,11	3,26
0,2	5,68	2,88	6,37	2,25	5,03	3,29	5,19	3,15	6,54	3,13	5,2	3,24
0,25	5,37	2,91	6,55	2,26	5,09	3,25	5,32	3,14	5,58	3,14	5,15	3,23
0,3	5,56	2,93	6,76	2,29	5,23	3,29	5,44	3,2	6,68	3,19	5,01	3,25
0,4	5,57	2,94	6,78	2,29	5,27	3,24	5,49	3,19	6,74	3,2	5,05	3,26
0,5	5,65	2,92	6,87	2,28	5,35	3,21	5,63	3,19	6,76	3,19	5,32	3,27
0,8	5,67	2,87	6,91	2,26	5,38	3,19	5,91	3,17	6,86	3,2	5,52	3,28
1	5,72	2,84	6,98	2,22	5,4	3,23	6,06	3,15	7,36	3,18	5,54	3,26
1,2	5,75	2,8	7,09	2,19	5,42	3,17	6,16	3,12	7,57	3,16	5,57	3,3
1,25	5,81	2,82	7,35	2,2	5,5	3,22	6,18	3,17	7,74	3,16	5,59	3,36
1,5	6	2,79	7,44	2,21	5,4	3,14	6,12	3,14	7,8	3,15	5,62	3,39

#### **II.4. Conclusion**

Ce chapitre avait pour objectif d'évaluer l'élimination des colorants Vert Brillant, Rouge Congo et le Méthyle Violet en solutions synthétiques d'eaux distillées par coagulation-floculation en utilisant le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique comme coagulants.

L'effet de paramètres réactionnels de processus comme la dose du coagulant, la concentration initiale du colorant, pH initial des solutions et les adjuvants sur l'efficacité de la dégradation des colorants des solutions ont été étudiés et il a été constaté que la coagulation du colorant sur les deux coagulants utilisés dépend principalement de ces paramètres.

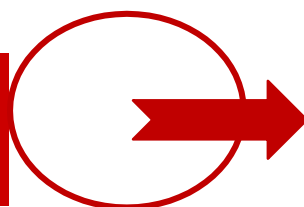
Les résultats des essais expérimentaux effectués nous ont permis de conclure que:

- Le procédé de coagulation floculation est très efficace pour la dégradation du RC. Mais, il est moins performant pour l'élimination du VB et MV avec des rendements moins importants que ceux du RC ce qui nécessite l'ajout des autres produits aidants comme les adjuvants ;
- L'utilisation des aides coagulants à savoir le CAP, la chaux et le polymère améliore les rendements d'élimination des trois colorants, mais à des doses optimales différentes dépendent principalement du type d'adjuvants ainsi de leur réaction avec la structure chimique du colorant en présence du coagulant ;
- Pour l'effet de la minéralisation (la force ionique) sur l'élimination des trois colorants nous avons confirmé la littérature de certains chercheurs que la présence des sels dans une solution joue un rôle promoteur comme elle peut aussi jouer le rôle inhibiteur. Ceci dépend principalement des forces électrostatiques créées entre le coagulant, le sel ajouté et le polluant étudié.

Cependant, on peut dire que le type et la structure du colorant et la quantité de coagulant présent dans l'eau affectent le processus de coagulation-floculation.

## *Partie II : Partie Expérimentale*

### **Chapitre III : Effet de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants dans les systèmes binaires et optimisation des résultats par le logiciel statistique RSM**

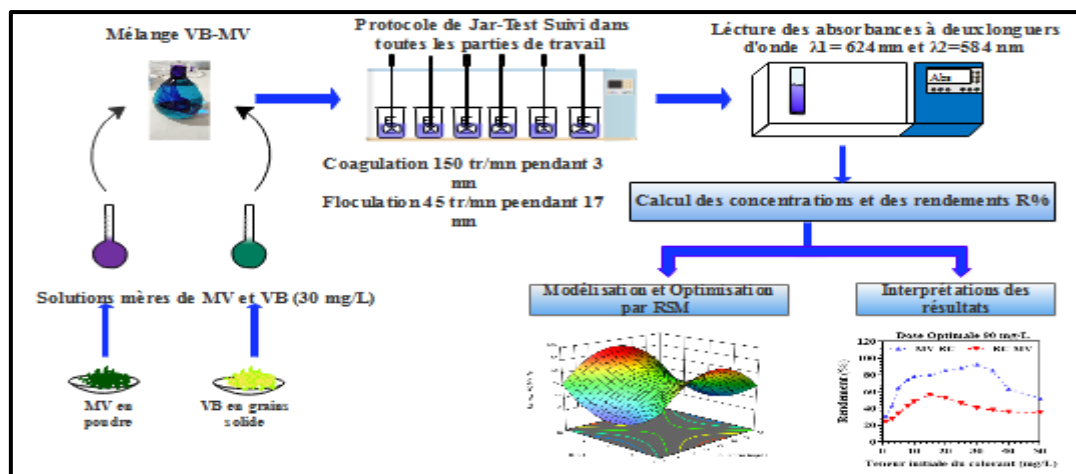




### III.1. Introduction

Dans les industries textiles on trouve rarement des eaux usées contenant un seul composé, leurs effluents sont des matrices complexes contenant plusieurs contaminants chimiques et notamment plusieurs colorants. Pour cela, ce chapitre est effectué pour étudier en premier lieu l'effet du procédé met en question sur l'élimination des trois colorants dans les systèmes binaires en solutions synthétiques d'eau distillée. En deuxième lieu, nous allons adopter la méthodologie de recherche expérimentale, selon l'approche du plan d'expérience (Goupy, 1999). C'est une prévision ainsi calculée doit être aussi proche que possible des valeurs qui seraient obtenues par expérimentation.

Dans ce contexte, le présent chapitre est composé de deux parties, une pour étudier l'effet de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants (MV, RC et VB) existant dans un système binaire, en étudiant l'effet des paramètres réactionnels qui influencent le procédé tels que le dosage du coagulant, la teneur initiale du colorant et le pH des solutions. Alors que, la deuxième partie est une modélisation permettant de déterminer les conditions opératoires optimales pour un système donné ou bien de déterminer des domaines de variations des paramètres satisfaisant pour les besoins opératoires, dans les meilleurs délais et pour le moindre coût. Dans notre cas, nous allons utiliser un logiciel statistique RSM dans le but d'optimiser nos résultats de la coagulation-floculation sur l'élimination des colorants dans un système binaire. Une comparaison des résultats entre les deux systèmes (individuel et binaire) sera également présentée dans l'effet de la variation des doses de coagulant. Le principe de ce chapitre est schématisé par la **Figure III.1**.



**Figure III.1** : Schéma présentatif du principe de l'évaluation et la modélisation des rendements d'élimination des colorants dans les systèmes binaires

### III.2. Première étape

Cette partie a pour but d'étudier l'efficacité du procédé de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium des colorants dans le système binaire avant l'application du logiciel statistique RSM

#### III.2.1. Coagulation-floculation des colorants dans le système binaire

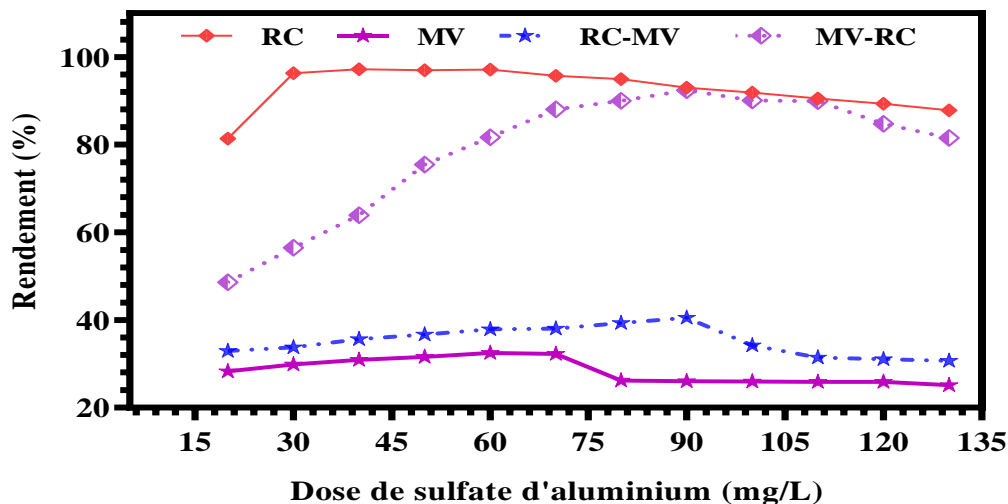
Rappelant, dans le chapitre de la méthodologie expérimentale (**Chapitre I Partie II**), nous avons marqué, pour étudier les performances du procédé de la coagulation-floculation dans les systèmes binaires (élimination d'un colorant en présence d'un autre), nous avons appliqué la méthode PLS connue par (Partial Least Squares Regression). Cette méthode repose sur un modèle des méthodes d'étalonnage multi variées, dont elle est utilisée principalement pour déterminer la relation entre deux composants à savoir, la concentration et l'absorbance. Dans cette étude, nous nous sommes intéressés uniquement à la coagulation par le sulfate d'aluminium ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ ) largement utilisée dans le secteur industriel notamment dans les stations de traitement des eaux.

##### III.2.1.1. Effet de la dose du coagulant

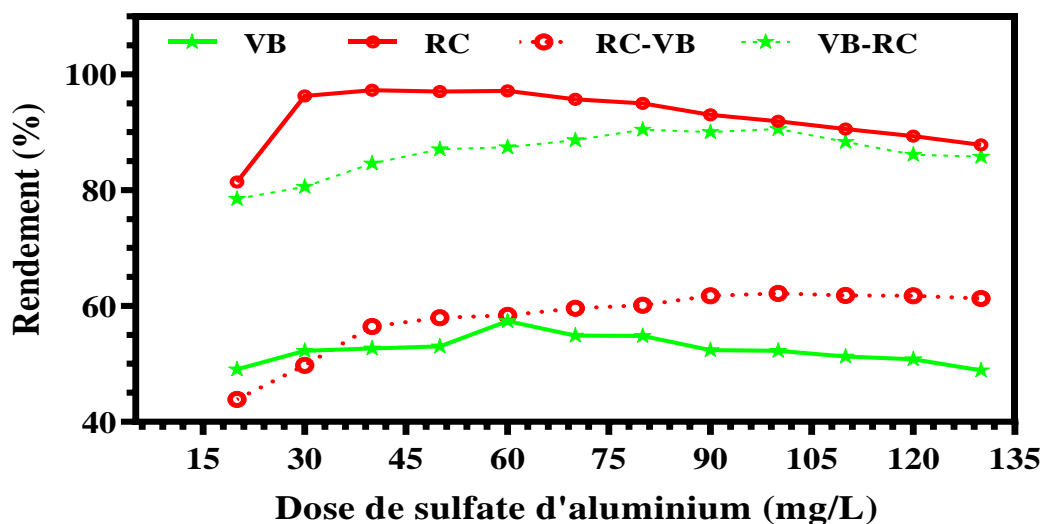
Pour étudier l'efficacité de la décoloration/élimination d'un colorant dans un système binaire, l'un des paramètres importants de la coagulation-floculation à tester est l'effet de la dose de coagulant. L'effet de ce paramètre sur les performances du procédé a été analysé sans ajustement du pH, avec un rapport massique du colorant RC, MV et VB (**1:1**) équivalent à une concentration du chaque colorant égale à **30 mg/L**. Dans cet essai nous avons débuté avec des doses de sulfate d'aluminium ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ ) allant de **20** à **130 mg/L**. Le fait que, dans le système MV-VB, la dose optimale n'était pas claire à cause de la forte concurrence créée entre les colorants cationiques, ce qui nous a amené dans ce cas à élargir la gamme des doses où nous avons testé des basses et des hautes doses dans un intervalle allant de **5** à **150 mg/L**. L'ensemble des résultats que nous avons obtenu sont présentés sur les courbes des **Figures III.2 à 4**.

Parallèlement au système individuel, on observe dans le binaire d'une part, qu'il y'a une augmentation de l'abattement de la couleur avec l'augmentation de la dose du sulfate d'aluminium, jusqu'à un optimum et se diminue après une certaine dose optimale de coagulant, dont la valeur de la décoloration est faible. D'autre part, on a marqué que la dose optimale du

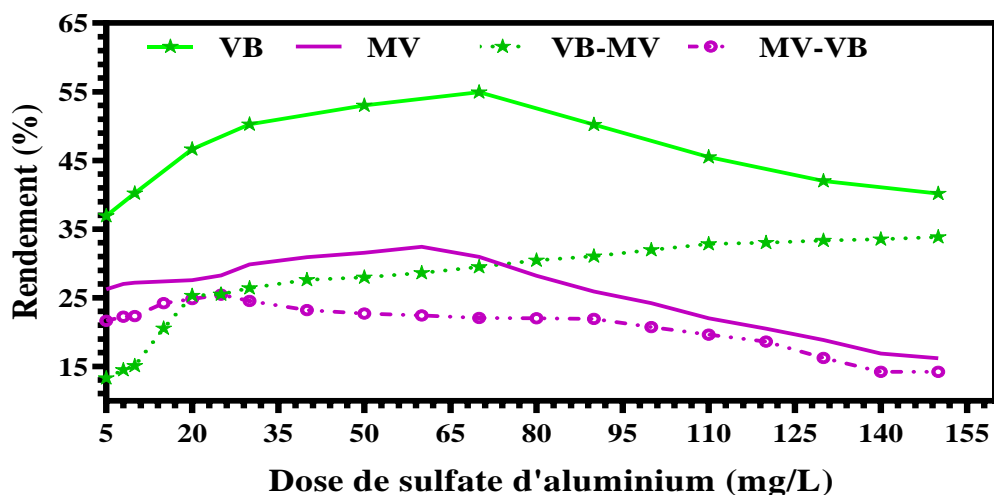
coagulant varie d'un mélange de deux colorants à un autre. Ce qui explique que, la nature du mélange à savoir son état dissous ainsi que son masse moléculaire et dimensions influent probablement le mécanisme de la coagulation et donc sur le pourcentage de la décoloration.



**Figure III.2 :** Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants(MV-RC) dans les systèmes simple et binaire ( $[MV]=[RC] = 30$  mg/L, pH=5,3)

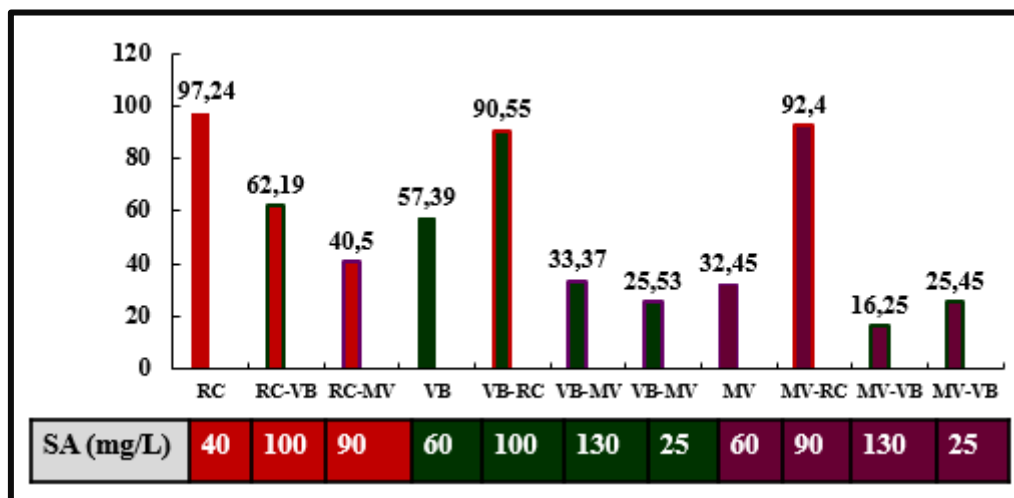


**Figure III.3 :** Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants(VB-RC) dans les systèmes simple et binaire ( $[VB]=[RC] = 30$  mg/L, pH=5,3)



**Figure III.4 :** Evolution de l'effet du dosage de coagulant sur l'élimination des colorants (MV-VB) dans les systèmes simple et binaire ( $[MV]=[VB] = 30 \text{ mg/L}$ ,  $\text{pH}=5,3$ )

La comparaison de nos résultats entre l'élimination des colorants dans le système simple (individuel) et le système binaire a abouti aux histogrammes de la (Figure III.5)



**Figure III.5 :** Rendements et doses optimaux de sulfate d'aluminium d'élimination des colorants testés en systèmes simple et binaire

À travers cet histogramme (Figure III.5) on observe dans le système simple, le taux d'abattement du colorant est préjudiciable pour le RC et dépassant légèrement les 50% pour le VB. Par contre, le couplage et/ou la combinaison des deux colorants (système binaire) globalement perturbe la décoloration de leur homologue. Cette perturbation est approuvée par :

Une diminution dans la capacité d'élimination de la coloration. Cette diminution varie de **35,05%** à **56,74%** pour les colorants couplés avec le RC, de **24,02%** à **31,86** et de **7%** à **16,20%** pour ceux qui sont respectivement avec le VB et le MV.

Tandis que, pour le VB et le MV avec le RC présente une augmentation dans le pourcentage de décoloration respectivement de **33,16%** et de **59,95%**. De ce fait, la diminution pourrait être dû, à un effet inhibiteur corrélable à une interaction de nature compétitive entre les colorants anioniques et cationiques. De même, la diminution des rendements d'élimination des colorants testés dans le système binaire est due probablement aux mécanismes de coagulation prédominants, qui seraient essentiellement des mécanismes de surface, représentés par une complexation avec les espèces hydrolysées cationiques ou anioniques de l'aluminium aboutissant à des formes organoaluminiques solubles ou insolubles selon le pH des solutions ([Rezeg et Achour, 2009](#) ; [Afoufou, 2023](#)).

Au vu de l'ensemble de nos résultats nous pouvons dire aussi, dans un système binaire, si le mélange est caractérisé par deux colorants à charges opposés, le procédé de la coagulation-floculation est influencé par deux phénomènes, soit un effet synergique (rendement d'élimination appréciable), soit un effet antagoniste (faible rendement d'élimination) : Ceci a été également observé au cours de l'élimination de MV et le VB (cationique) en présence de RC (anionique) ce qui révèlent des taux de décoloration remarquable en comparaison avec un mélange caractérisé par des charges identiques (effet synergique). Par contre, l'élimination du RC (anionique) en présence de MV et VB (cationique), illustrent un effet antagoniste.

Il est important de signaler aussi, que la dose optimale du coagulant dans le système binaire globalement subit une augmentation dans la quantité mise en œuvre. À l'exception, dans le cas du MV en combinaison avec le VB ou les résultats aboutissent à une diminution de l'ordre de 35% par rapport à la dose optimale du MV dans le système simple.

Cependant, nos résultats pourront être confirmés par les travaux de :

[Benmani et al, \(2019\)](#), au cours de l'élimination de deux colorants cationique le vert de méthyle et le jaune basique 28 par électrocoagulation dans un système simple et binaire, les résultats qui ont obtenus ont bien montré de façon claire que le rendement de décoloration des deux colorants en système simple, a atteint le pourcentage de **100%** et que les cinétiques de disparition varient selon la nature de colorant étudié. Dans une seconde partie, l'élimination de ces deux colorants dans un mélange binaire. Les résultats ont montré que l'ajout de jaune

basique 28 affecte positivement l'élimination de vert de méthyle. Ils ont expliqué leurs résultats par un phénomène d'adsorption compétitive par effet synergique.

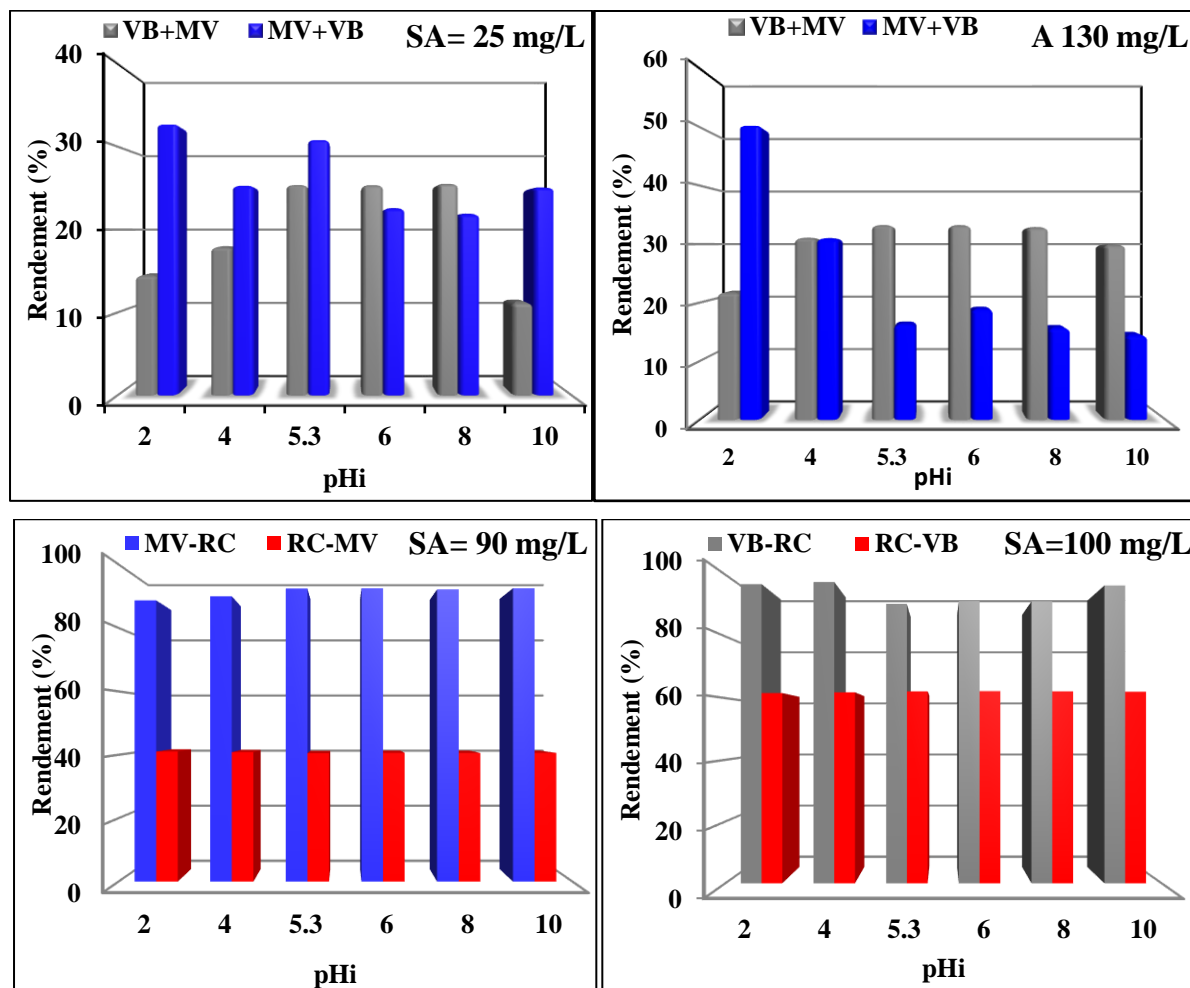
Dans le même état d'esprit, les travaux qui ont été réalisés avec [Issa Hamoud et al, \(2016\)](#) sur l'élimination des mélanges de colorants (Orange II/Vert acide 25) avec des charges opposées, dans un système binaires et similaires par adsorption, coagulation/floculation et oxydation catalytique en présence de système de type Fenton  $\text{CeO}_2/\text{H}_2\text{O}_2$ . Dans les essais de la coagulation-floculation ces auteurs ont suggéré que l'interaction de l'Orange II avec le Vert acide 25 se manifeste principalement par une diminution frappante des intensités de bande pour les deux colorants. Ceci peut être lié à un processus d'association, via une attraction électrostatique entre l'Orange II chargé négativement et le ver acide 25 chargé positivement, à  $\text{pH}=3$  conduisant à un phénomène de coagulation/floculation. Une image analogue a été observée avec [Serghey et al, \(2005\)](#), lors de l'association de la sulfonephthaléine anionique (groupes sulfone chargés négativement) avec des cations indopolyméthine-cyanine (positivement groupements ammonium chargés) grâce à l'analyse UV-Vis. Ces auteurs ont enregistré que les colorants en solution aqueuse ont souvent tendance à s'associer. L'association de différents colorants peut être qualifiée d'interaction (les interactions électrostatiques, Van der Waals et hydrophobes sont considérées comme des forces motrices de l'association). Cette interaction a été le plus souvent observée entre des colorants de charges opposées. Les forces en jeu sont liées aux interactions électrostatiques entre les colorants de charges opposées, ce qui entraîne la formation de microflocs. Avec le temps, ces microflocs grossissent pour former des floccs visibles permettant la sédimentation. C'est le processus de coagulation-floculation. Ils ont confirmés aussi que la présence du colorant peut fortement affecter l'élimination de l'autre, ce qui suggère l'apparition d'une compétition soit par effet synergique, soit par effet antagoniste.

Certaines études dans ce contexte ([Mishra et Bajpai, 2005](#) ; [Moussavi et Khosravi, 2011](#) ; [Anirudhan et Ramachandran, 2015](#); [Kılıç et Orhan, 2019](#)) ont démontré les mêmes explications sur l'élimination du colorant dans des systèmes simples ou binaires via l'adsorption et la coagulation-floculation.

#### III.2.1.2. Effet du pH initial

Le pH est un paramètre critique dans l'efficacité du processus de la coagulation floculation. Ce paramètre influence les charges des colorants et des composants chimiques utilisés pour la coagulation (coagulants) ([Szyguła et al, 2009](#)). Ce qui fait que les propriétés chimiques des

colorants et du coagulant varient avec le pH. Donc, l'élimination de la couleur est hautement dépendue de ce facteur (El-Gohary et Tawfik, 2009). La gamme des pH testés allant de 2 à 10 qui nous va permettre d'étudier l'effet des milieux acides et alcalin sur l'élimination des colorants dans un système binaire. Le rapport massique de la combinaison des colorants dans ce test était 1:1. Les résultats trouvés sont présentés par les histogrammes de la Figure III.6.



**Figure III.6:** Effet de la variation de pH initial sur l'élimination des colorants (MV, RC et VB) dans les systèmes binaires (Dose optimale,  $C[\text{colorant 1}] = C[\text{colorant 2}] = 30 \text{ mg/L}$ )

Globalement, nous pouvons observer d'après les histogrammes de la Figure III.6, que l'optimum d'abattement de la coloration dans les systèmes binaires testés correspond à des pH très acides entre 2 et 4, ainsi qu'à des pH proche de la neutralité (pH du milieu = 5,3 et pH = 6). On a remarqué aussi qu'au pH optimal, l'amélioration des rendements présente deux catégories antagonistes :

- La première catégorie présente des systèmes binaires dont l'abattement du taux de la coloration est supérieur ou bien quasi égal à **50%**. Cette catégorie regroupe les systèmes binaires suivant :

*VB-RC (pH= 4, R= 97.64%), RC-VB (pH=5.3, R= 62.27%); MV-RC (pH=6, R=92.46%) et MV-VB (pH=2, R= 50.58%).*

- La deuxième catégorie regroupe les combinaisons binaires dont l'abattement du taux de la coloration est très inférieur à 50%. Cette catégorie regroupe les systèmes binaires suivant :

*VB-MV (pH=5.3, R=26.44%) ; MV-VB (pH=2, R=32.95%); VB-MV (pH=5.3 R=33.37%) et RC-MV (pH=4, R= 40.84%).*

À ce stade de nos résultats, il est important de rappeler toutefois, qu'à pH acide, les espèces cationiques de l'aluminium sont prépondérantes et une des réactions possibles est la formation de complexes insolubles entre le colorant et les composés hydroxo-aluminiques solubles. La présence de nombreux groupements carboxyles dans la structure du colorant favorise cette réaction. A ces conditions particulières le mécanisme d'élimination prédominant serait une neutralisation par compression de la double couche. Cela va nous permettre de supposer que ce mécanisme est plus efficace pour éliminer les colorants testés par rapport aux autres mécanismes. Dans le cas des systèmes binaires (**VB-RC, RC-VB et MV-RC**), les histogrammes de la **Figure III.6** (**SA=90 et 100 mg/L**) montrent que l'abattement de la coloration est meilleure à pH acide et notamment pour des pH compris entre (**4 et 6**). Ces valeurs du pH optimal que nous avons obtenues confirment les résultats cités dans la bibliographie (**Bayramoglu et al, 2007 ; Can et al, 2006 ; Merzouk et al , 2009 ; Tiaiba et al, 2022**). À ces pH les réactions mises en jeu sont probablement nombreux compte tenu de la présence simultanée de plusieurs espèces hydrolysées d'aluminium (solubles et insolubles) et de la forme dissociée des colorants à ce pH voisin de **6**. Toutefois, les espèces cationiques de l'aluminium sont prépondérantes et une des réactions possibles est la formation de composés hydroxo-aluminiques solubles. Bien que minimes, d'autres réactions peuvent compétitivement apparaître à ce pH, notamment avec les floes constitués par un mélange de  $\text{Al}(\text{OH})_3$  amorphe et d'espèces chargées telles que  $\text{Al}(\text{OH})_2^+$  et  $\text{Al}(\text{OH})_3^+$  (**Wais-Mossa et Mazet, 1991**). La dimension de Colorant ne permettant pas la neutralisation complète de leurs charges négatives (**Tiaiba et al, 2022**), il reste un certain nombre de charges négatives non



neutralisées. Un autre mécanisme pourrait alors intervenir et consisterait un échange de ligand à la surface des floes, entre les ions OH<sup>-</sup> du floe et les ions négatifs du colorant peut avoir lieu (Greenland, 1971). A des pH neutres ou basiques, l'élimination des colorants en eau distillée (système binaires) est beaucoup moins efficace qu'à pH = 2 à 6. Elle s'expliquerait par une complexation compétitive des OH<sup>-</sup> du milieu avec l'aluminium, ce qui réduit l'affinité de l'aluminium pour les ligands organiques (Chow, 1992 ; Van Benschoten et Edzward, 1990, Afoufou, 2023).

Une étude comparative entre les rendements optimaux que nous avons obtenus en système individuel et binaires sont présentés dans le **Tableau III.1**

**Tableau III.1** : Rendements, pH optimaux et écart des rendements entre les deux systèmes des colorants testés

Colorant	Individuel	Binaires		
RC	98,20	RC-VB (SA=100 mg/l)	RC-MV(SA=90 mg/l)	
R%		62,27	41,03	
pHoptimal	6	6	6	
$\Delta R\%$		35,93	57,17	
MV	45,52	MV-RC (SA= 90 mg/L)	MV-VB (SA= 130 mg/l)	MV-VB (SA=25 mg/L)
R%		92,46	50,58	32,95
pHoptima	10	6	2	2
$\Delta R\%$		46,94	5,07	12,56
VB	70,25	VB-MV (SA=25 mg/L)	VB-MV (SA=130 mg/L)	VB-RC (SA=100 mg/L)
R%		25,68	33,37	97,64
pHoptima	10	8	6	4
$\Delta R\%$		44,57	36,88	27,39

L'étude comparative entre les différents rendements des deux systèmes montre que :

La présence du VB et MV ainsi que MV et le RC au cours de l'élimination du RC et VB respectivement n'améliorent pas leurs éliminations. De ce fait, nous avons enregistré un écart entre les rendements dans le système simple (individuel) et binaire de l'ordre de **57,59%** pour le RC et de **44,57%** pour le VB en présence de MV. Par contre, le RC et le VB améliorent l'élimination du MV à un écart  $\Delta R\%$  allant de **5,07%** à **46,94%**. Ceci pourrait être dû à un

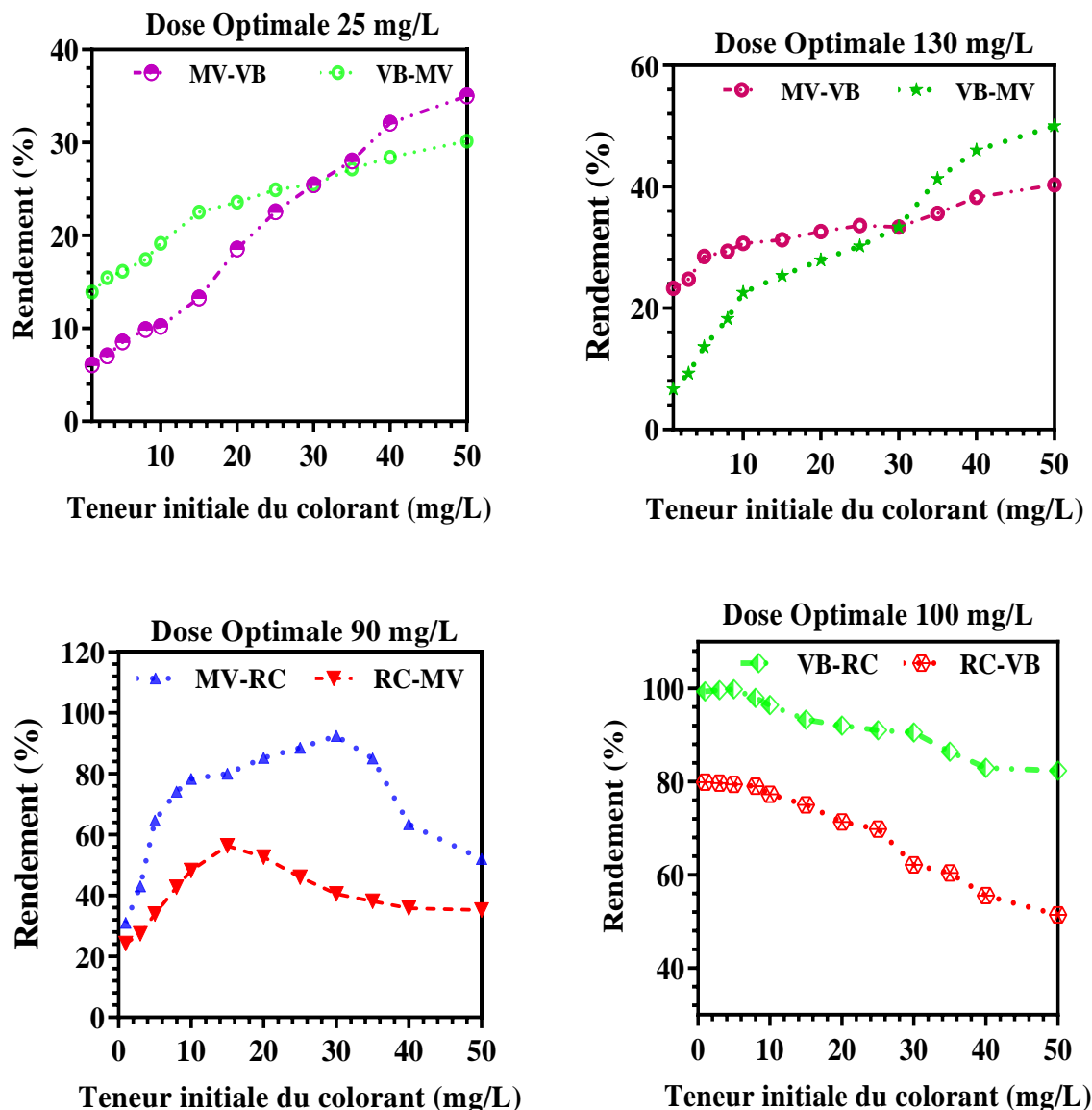
effet inhibiteur corrélable à une interaction de nature compétitive entre **RC/VB** ; **RC/MV** et **VB/RC** ; **VB/MV**, résultant à la fois.

- D'une compétition sur les mêmes sites d'élimination. Sachant que, RC et le VB ayant une meilleure élimination dans le système simple.
- De la diminution de la tension superficielle de la suspension, ce qui provoquerait une meilleure solvatation du colorants en présence.

### III.2.1.3. Effet de la teneur initiale du colorant

Cette partie de travail consiste à fixer la concentration initiale du premier colorant (**30 mg/L**), tout en faisant varier celle du deuxième colorant dans un intervalle allant de (**1-à 50 mg/L**), qui correspond à un rapport massique allant de (**1/30 (0,033) à 30/50 (0,6) mg/mg**). À un pH non ajusté et en présence de la dose optimale déterminée pour chaque système binaire. La **Figure III.7** illustre les résultats obtenus.

Au regard de nos résultats (**Figure III.7**), nous observons que les rendements d'élimination de VB et MV augmentent avec l'augmentation de leurs concentrations initiales, en présence d'une concentration fixe du deuxième colorant, aussi bien en présence d'une dose de **25 mg/L** que pour une dose (**130 mg/L**) de sulfate d'aluminium. De même, l'efficacité d'élimination du vert brillant est mieux importante que celle du MV. Cela est probablement expliqué par le rôle du poids moléculaire du colorant (VB) ou par la présence de certains groupes fonctionnels jouant un rôle dans l'amélioration du traitement. Ceci pourrait être confirmé par les travaux d'[Allen et al, \(1989\)](#) ; [El Kassimi et al, \(2020\)](#) ; [Liu et al, \(2020\)](#) ou ils ont trouvé que l'efficacité d'élimination des colorants cationiques, dans un système binaire, augmente avec l'augmentation de la teneur initiale des colorants étudiés.



**Figure III.7:** Effet de la teneur initiale sur l'élimination des colorants (MV, RC et VB) dans les systèmes binaires (Dose de SA=Dose optimale, pH=5,3)

Tandis que, pour les colorants ayant des charges opposés (cationique/anionique) tels que le cas (VB-RC) et (MV-RC) les résultats obtenus sont apparus contradictoire: Dans le système (VB-RC), les rendements d'élimination des deux colorants diminuent avec l'augmentation de leurs concentrations initiales alors que, dans la deuxième combinaison (MV-RC), les pourcentages d'élimination augmentent jusqu'à atteindre un maximum correspond à la concentration **15 mg/L** pour RC et **30 mg/L** pour MV. Puis, les rendements ont subi une diminution. Dans ce contexte, nous avons également marqué que les rendements

d'élimination des colorants cationiques sont supérieurs à celui du RC (anionique). Ceci explique peut être par la forte concurrence entre les particules des colorants de différentes charges pour être en contact avec celles du coagulant, résultant dans un système binaire, qui est un mélange de plus d'un composé, dans lequel la réaction d'un colorant est différente à celle dans le système simple (un seul composé) (Fu et al, 2016).

### III.3. Deuxième étape

Application de la modélisation et optimisation des résultats des paramètres réactionnels obtenus pour l'élimination des colorants dans le système binaire par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium par utilisation d'une technique Expert Design RSM.

#### III.3.1. Modélisation des résultats

L'objectif de cette partie de notre travail est de confirmer d'une part, les résultats que nous avons obtenus au cours de l'évaluation des paramètres réactionnels de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium sur l'élimination des trois colorants (MV, RC et VB) dans les systèmes binaires, en se basant sur la technique statistique du logiciel Expert design version 11 RSM (Response Surface Methodology). Cette technique repose sur l'analyse des données d'une part, par la construction des modèles empiriques (ANOVA) pour les essais (Ghafari et al, 2009 ; Betiku et al, 2016 ; Elhalil et al, 2016). D'autre part, pour contrôler l'effet des facteurs influençant les procédés de traitement et de mieux comprendre les interactions créées entre eux, dans le but de la détermination des conditions optimales prédéterminés, et notamment la minimisation du nombre des essais à effectuer au laboratoire (Maran et Priya, 2015).

Il est important d'indiquer que, dans notre cas d'étude, nos essais (élimination des colorants dans le système binaire par coagulation-floculation au le sulfate d'aluminium) ont été effectués sans aucun modèle prédéterminé par le logiciel, ce qui nous a conduit à exploiter une option de ce logiciel, il s'agit de **Historical Data**. Cette option repose sur la création d'un modèle empirique selon les résultats que nous insérons. L'analyse des caractéristiques du modèle obtenu nous permet d'évaluer l'efficacité des résultats que nous avons obtenus de la méthode de travail suivie, les gammes ainsi des paramètres choisis. Nous avons appliqué ce concept pour estimer l'effet d'un paramètre réactionnel (Dosage de coagulant, teneur initiale du colorant et pH initial) et étudier les principales interactions créées entre eux sur l'efficacité de l'élimination des trois colorants dans le système binaire.

Les résultats que nous avons obtenus et présentés dans la première partie du présent chapitre ont été soumis à une analyse plus approfondie. Des modèles quadratiques et quartiques d'ANOVA ont été utilisés pour étudier les interactions, les effets directs (linéaires) et indirects (quadratiques) de chaque facteur sur l'élimination des colorants étudiés.

Les coefficients de régression des modèles quadratiques des colorants testés dans le système binaire à savoir le (MV-VB ; VB-MV), (MV-RC ; RC-MV) et (VB-RC ; RC-VB), ainsi que les représentations graphiques tridimensionnelles données par le logiciel RSM pour les interactions étudiée sont présentés dans les **Tableaux III.2-5** et les **Figures III.8-11**

### III.3.1.1. Effets des facteurs de dosage du coagulant et de pH sur l'élimination des colorants testés dans les systèmes binaires

D'après les **Tableaux III.2-5**, les effets du dosage et du pH sur l'élimination du (MV-VB ; VB-MV), (MV-RC ; RC-MV) et (VB-RC ; RC-VB) montrent que les modèles quadratiques de chaque combinaison étaient significatifs (valeur  $P < 0,05$ ). Les données montrent aussi que le dosage et le pH ont des effets linéaires et quadratiques sur l'élimination du MV-VB aux deux doses **25** et **130 mg/L** (valeur  $P < 0,05$ ). Selon l'analyse ANOVA, le dosage affectait l'élimination des combinaisons (MV-RC ; VB-RC ; RC-VB ; MV-VB et VB-MV à **25** et **130 mg/L**) de manière linéaire et quadratique, alors qu'il a eu qu'un effet quadratique sur l'élimination de RC-MV. En revanche, le facteur pH n'a pas d'effet sur l'élimination des (RC-MV ; RC-VB et VB-MV) ni linéairement ni quadratiquement. De même, nos résultats montrent aussi que, le facteur pH avait un effet non linéaire et quadratique sur l'élimination du VB-RC et VB-MV à SA=25 mg/L.

**Tableau III.2 :** Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et VB dans le système binaire MV-VB et VB-MV, SA =25 mg/L

Système	Élément	Source	Valeur P	Commentaire	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup> <sub>adjusted</sub>	R <sup>2</sup> <sub>predicted</sub>
MV-VB à SA=25 mg/L	MV-VB	Model	< 0,0001	Significatif	0,8409	0,8090	0,7924
		A : Dose	< 0,0001				
		B : pH	< 0,0028				
		A <sup>2</sup>	0,0034				
		B <sup>2</sup>	0,0008				
	VB-MV	Model	< 0,0001	Significatif	0,8844	0,8612	0,3982
		A : Dose	< 0,0001				
		B : pH	0,7661				
		A <sup>2</sup>	0,0009				
		B <sup>2</sup>	< 0,0001				
	MV-VB	Model	< 0,0001	Significatif	0,9644	0,9534	0,9249
		A :Teneur	< 0,0001				
		B : pH	0,0075				
		A <sup>2</sup>	0,2653				
		B <sup>2</sup>	0,0232				
	VB-MV	Model	< 0,0001	Significatif	0,9208	0,8964	0,1762
		A :Teneur	< 0,0001				
		B : pH	0,9705				
		A <sup>2</sup>	0,1031				
		B <sup>2</sup>	< 0,0001				

**Tableau III.3 :** Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et VB dans le système binaire MV-VB et VB-MV. SA= 130 mg/L

Système	Élément	Source	Valeur P	Commentaire	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup> <sub>adjusted</sub>	R <sup>2</sup> <sub>predicted</sub>
MV-VB à SA=130 mg/L	MV-VB	Model	< 0,0001	Significatif	0,9460	0,9352	0,9082
		A : Dose	< 0,0001				
		B : pH	< 0,0001				
		A <sup>2</sup>	0,0032				
		B <sup>2</sup>	< 0,0001				
	VB-MV	Model	0,0007	Significatif	0,6010	0,5212	0,2431
		A : Dose	0,0004				
		B : pH	0,0850				
		A <sup>2</sup>	0,0286				
		B <sup>2</sup>	0,6142				
	MV-VB	Model	0,0024	Significatif	0,6956	0,6019	0,5021
		A : Teneur	0,0426				
		B : pH	0,0002				
		A <sup>2</sup>	0,2824				
		B <sup>2</sup>	0,2979				
	VB-MV	Model	< 0,0001	Significatif	0,9640	0,9529	0,9123
		A : Tenur	< 0,0001				
		B : pH	0,0568				
		A <sup>2</sup>	0,3173				
		B <sup>2</sup>	0,0002				

**Tableau III.4 :** Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de MV et RC dans le système binaire MV-RC et RC-MV, SA=90 mg/L

Système	Élément	Source	Valeur P	Commentaire	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup> <sub>adjusted</sub>	R <sup>2</sup> <sub>predicted</sub>
MV-RC à SA=90 mg/L	MV-RC	Model	< 0,0001	Significatif	0,9909	0,9882	0,9799
		A : Dose	< 0,0001				
		B : pH	0,0489				
		A <sup>2</sup>	<0,0001				
		B <sup>2</sup>	0,2900				
	RC-MV	Model	0,0003	Significatif	0,7848	0,7185	0,5550
		A : Dose	0,2263				
		B : pH	0,9077				
		A <sup>2</sup>	<0,0001				
		B <sup>2</sup>	0,1072				
	MV-RC	Model	< 0,0001	Significatif	0,9033	0,8735	0,6978
		A :Teneur	0,5419				
		B : pH	0,6203				
		A <sup>2</sup>	<0,0001				
		B <sup>2</sup>	0,9737				
	RC-MV	Model	0,0703	Non Significatif			
		A :Teneur	0,5587				
		B : pH	0,8299				
		A <sup>2</sup>	0,0057				
		B <sup>2</sup>	0,4082				



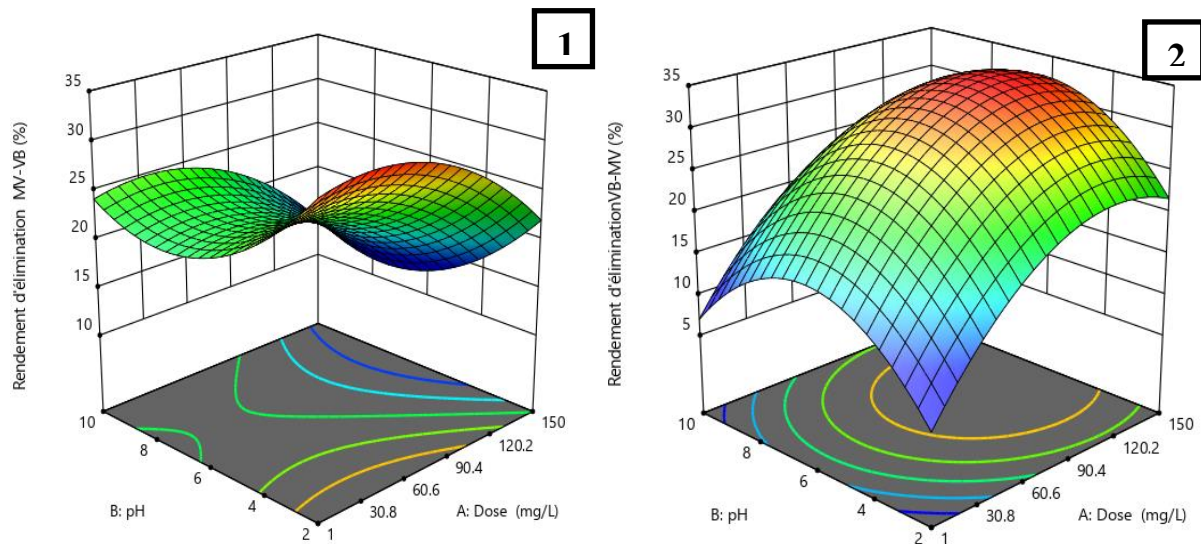
**Tableau III.5** : Coefficients de régression et leurs significations du modèle quadratique pour l'élimination de VB et RC dans le système binaire VB-RC et RC-VB. SA=100 mg/L

Système	Élément	Source	ValeurP	Commentaire	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup> <sub>adjusted</sub>	R <sup>2</sup> <sub>predicted</sub>
VB-RC à SA=100 mg/L	VB-RC	Model	< 0,0001	Significatif	0,8990	0,8679	0,6289
		A : Dose	0,0002				
		B : pH	0,4580				
		A <sup>2</sup>	< 0,0001				
		B <sup>2</sup>	0,0004				
	RC -VB	Model	< 0,0001	Significatif	0,9446	0,9275	0,8716
		A : Dose	< 0,0001				
		B : pH	0,8528				
		A <sup>2</sup>	< 0,0001				
		B <sup>2</sup>	0,5224				
	VB- RC	Model	0,0008	Significatif	0,7468	0,6689	0,1090
		A :Teneur	0,0013				
		B : pH	0,4024				
		A <sup>2</sup>	0,0765				
		B <sup>2</sup>	0,3657				
	RC -VB	Model	0,0449	Significatif	0,5040	0,3513	0,1791
		A :Teneur	0,0275				
		B : pH	0,5874				
		A <sup>2</sup>	0,0930				
		B <sup>2</sup>	0,0635				

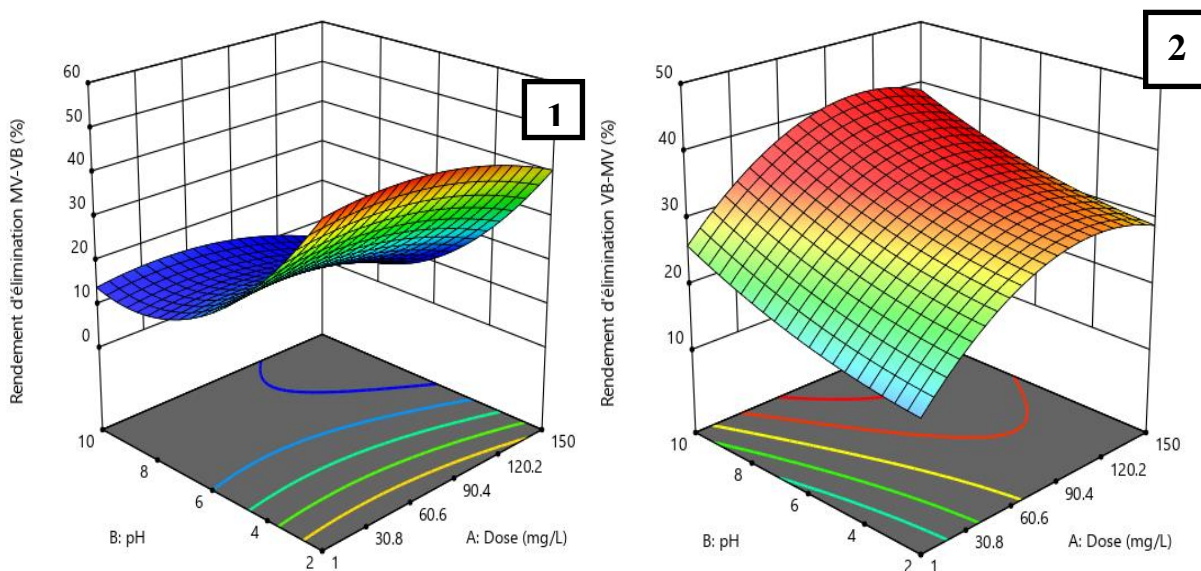
Dans le même contexte, nos résultats présentés dans les **Figures III.8-11 (1 et 2)** montrent que :

- De la **Figure III.8 (1)**, le dosage a eu un impact significatif sur le MV-VB à de faibles concentrations (**15-50 mg/L**). Le facteur de pH affectait également l'élimination du MV-VB dans les solutions acides (pH=2). Alors que, la **Figure III.8 (2)** montre l'effet indirect du pH sur l'élimination du VB-MV, où les expériences ont enregistré un effet sur l'élimination du VB-MV dans la gamme pH (**4-8**). Cependant, un léger impact a été obtenu pour le dosage sur l'élimination de VB-MV dans la plage (**80 -150 mg/L**).

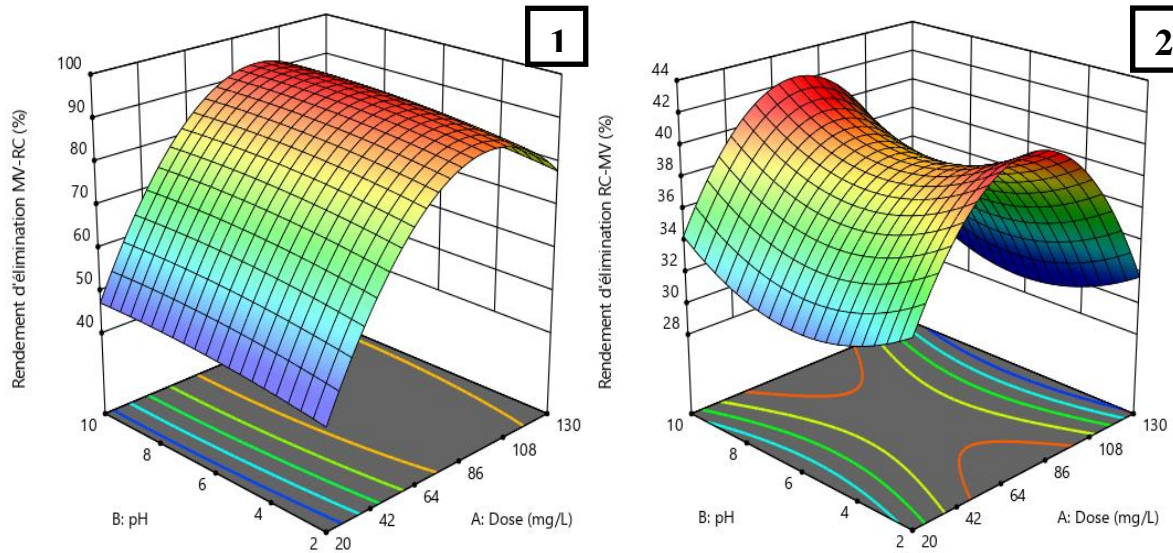
- La **Figure III.9 (1)** montre que l'élimination du MV-VB a été augmentée des plages faibles à moyennes de dosage (**1-120 mg/L**) et de pH (acide), où l'élimination la plus élevée a été obtenue à **25 mg/L** et un pH de **2**. La **Figure III.9 (2)** indique que le facteur pH affecte directement l'élimination du VB-MV, où il a un impact sur l'élimination au niveau acide à alcalin (pH=**4-10**), alors que le dosage avait un effet direct sur l'élimination dans la plage (**60-150 mg/L**).
- La **Figure III.10 (1)** montre que l'élimination du MV-RC a été augmentée progressivement avec l'augmentation du dosage jusqu'à atteindre l'optimum, alors qu'il avait un léger effet du pH sur l'élimination. De plus, une interaction entre les facteurs obtenue à la dose élevée variait entre **86** et **130 mg/L**. La **Figure III.10 (2)** indique que l'élimination optimale de RC-MV a été enregistrée avec un dosage de moyen à **90%**, indiquant l'effet indirect du dosage. Le facteur de pH n'avait aucun impact sur l'élimination du RC-MV.
- La **Figure III.11 (1)** montre l'effet direct du dosage sur l'élimination de VB-RC, les rendements d'élimination ont été augmenté jusqu'à arriver à la dose optimale **100 mg/L** puis il s'est diminué. Nos résultats montrent l'effet indirect de pH sur l'élimination de VB-RC dans les milieux acide (**2-4**) et alcalin (**10**). La **Figure III.11 (2)** montre l'effet direct du dosage où l'élimination du RC-VB a augmenté en augmentant le dosage. Cependant, le dosage affecte indirectement l'élimination du RC-VB, ce qui peut être observé à un dosage élevé (l'élimination a diminué après **110 mg/L**). Le pH n'avait aucun effet sur l'élimination du RC-VB.



**Figure III.8 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium ( $SA=25$  mg/L (MV-VB (1), VB-MV (2))

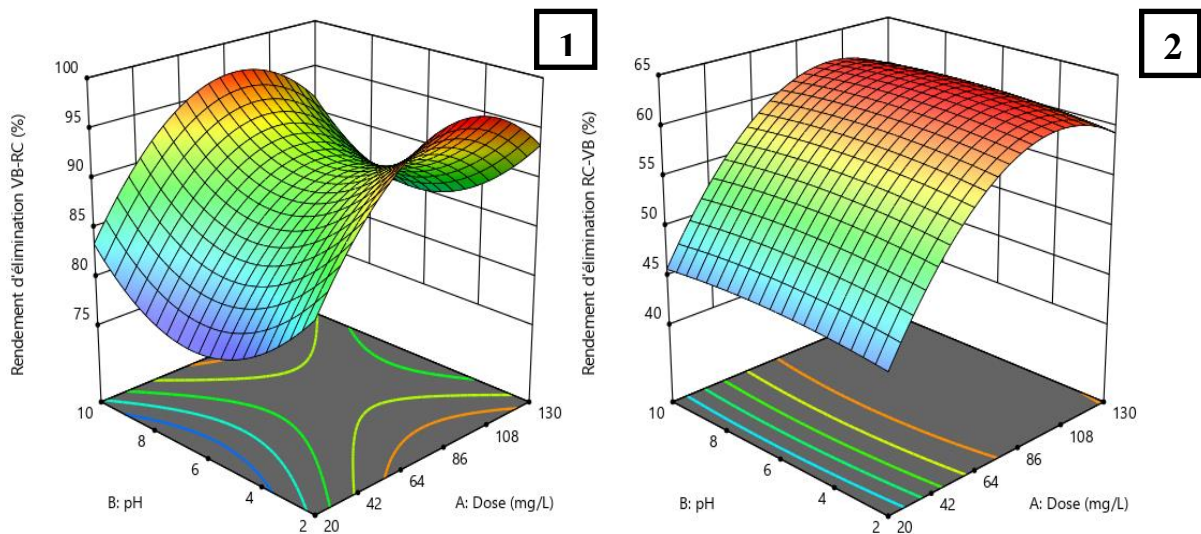


**Figure III.9 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA : Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium ( $SA=130$  mg/L (MV-VB (1), VB-MV (2))



**Figure III.10 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :

(1) Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium ( $SA= 90 \text{ mg/L}$  (MV-RC (1), RC-MV (2))

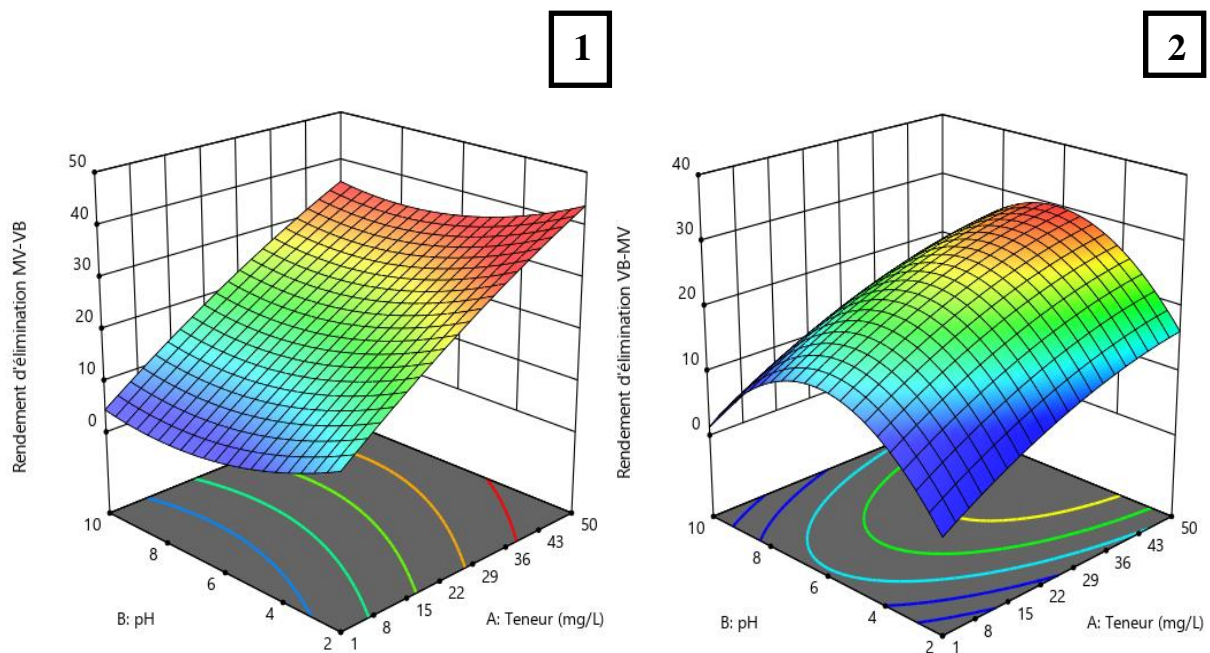


**Figure III.11 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :

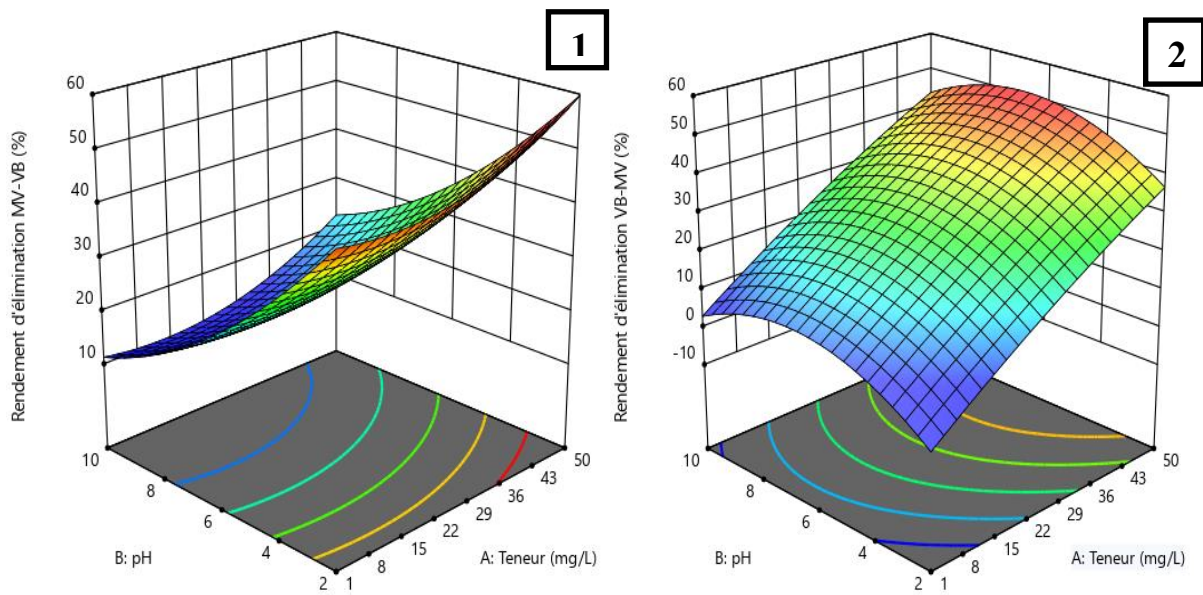
Effets des facteurs de dosage (A) et de pH (B) sur l'élimination des colorants dans le système binaire en présence de la dose optimale du sulfate d'aluminium ( $SA= 100 \text{ mg/L}$ , (VB-RC, (1) ; RC-VB (2))

### III.3.1.2. Effets des facteurs de teneur initiale et de pH sur l'élimination des colorants testés dans les systèmes binaires

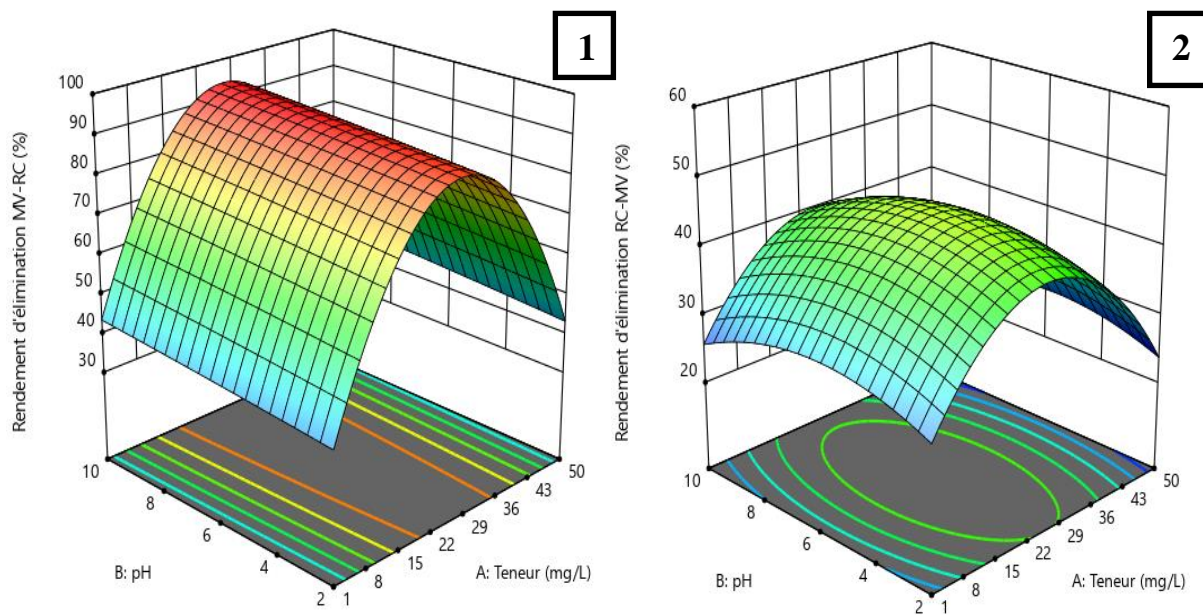
Parallèlement à nos résultats de l'effet des facteurs de dosage et de pH sur l'élimination des colorants testés dans les systèmes binaires. Les résultats que nous avons déduits des modèles du logiciel RSM sur l'effet des facteurs de la teneur initiale et de pH sur l'élimination des mêmes colorants testés dans les mêmes systèmes binaires ont été également présentés dans les **Tableaux III.2-5** et sur les **Figures III. 12-15**.



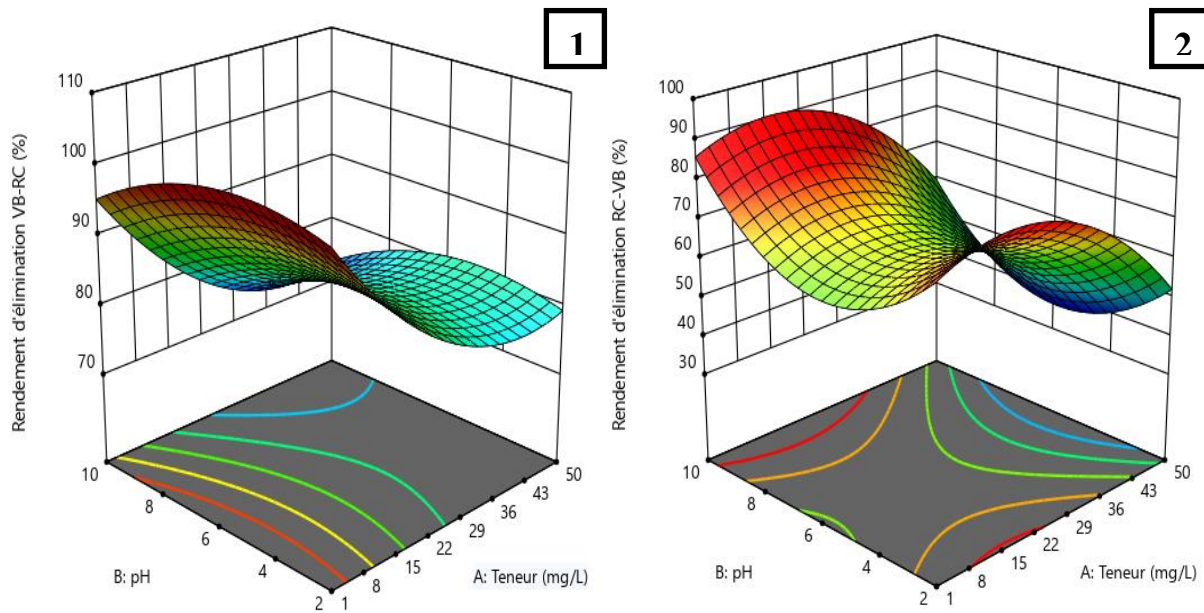
**Figure III.12 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :  
 (1) Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-VB,(2)  
 Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-MV En  
 présence de la dose optimale **25 mg/L**



**Figure III.13 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :  
 (1) Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-VB, (2)  
 Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-MV En  
 présence de la dose optimale **130 mg/L**



**Figure III.14 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :  
 (1) Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du MV-RC, (2)  
 Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du RC-MV En  
 présence de la dose optimale **90 mg/L**



**Figure III.15 :** Représentation graphique tridimensionnel du modèle quadratique ANOVA :  
**(1)** Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du VB-RC, **(2)**  
 Effets des facteurs de la teneur initiale (A) et de pH (B) sur l'élimination du RC-VB En  
 présence de la dose optimale **100 mg/L**

D'après les résultats présentés dans les **Tableaux III.1-4**, les effets de la teneur et du pH sur l'élimination du (MV-VB ; VB-MV), (VB-RC ; RC-VB) MV-RC montrent que le modèle quadratique était significatif (valeur  $P < 0,05$ ). Tandis que, le modèle RC-MV n'était pas significatif dans les modèles quadratique de l'ANOVA ( $P = 0,0703$ , valeur  $P > 0,05$ ). L'analyse ANOVA montre que :

**Dans les systèmes MV –VB et VB-MV :**

- ❖ La teneur initiale du colorant a un effet linéaire sur l'élimination du MV-VB et du VB-MV (Valeur  $P < 0,05$ ), et que le facteur pH affectait de manière quadratique l'élimination du MV-VB, VB-MV à  $SA = 25 \text{ mg/L}$  et VB-MV à  $SA = 130 \text{ mg/L}$ , mais, il n'affecte pas l'élimination du MV-VB. Ce facteur a montré un léger impact sur l'élimination du MV-VB et du VB-MV dans les solutions alcalines et acides.

**Dans les Systèmes MV-RC, RC-MV, VB-RC et RC-VB**

- ❖ La teneur affectait l'élimination dans les systèmes binaire (VB-RC, RC-VB) de manière linéaire et n'a pas d'effet quadratique. Tandis qu'elle affectait l'élimination de MV-RC quadratiquement. Les résultats montrent également qu'il n'y ait eu aucun

effet du facteur pH dans les deux modèles ni linéairement ni quadratiquement (Tableau III.3 et 4).

- La **Figure III.12 (1)** montre que la teneur a eu des impacts directs significatifs sur la MV-VB d'où les rendements d'élimination augmentent avec l'augmentation de la Teneur. Tandis que, le pH affectait l'élimination MV-VB linéairement et quadratiquement. Alors que la **Figure III.12 (2)** montre l'effet direct de la teneur sur l'élimination de VB-MV, où l'élimination a été augmentée progressivement avec l'augmentation de la teneur. Le pH avait un effet quadratique où l'élimination a été observé entre **5,3-8**.
- La **Figure III.13 (1)** montre l'absence d'impacts de la teneur sur l'élimination du MV-VB alors qu'elle indique l'effet direct (quadratique) du pH sur l'élimination de MV-VB au milieu acide (PH=2). Tandis que, la (**Figure III.13 (2)**) montre l'effet direct du Teneur sur l'élimination de VB-MV entre (**40-50 mg/L**), où l'élimination a été maximale. Le pH a eu un effet indirect sur l'élimination du VB-MV à pH (**5,3-8**).
- La **Figure III.14(1)** montre l'effet quadratique de la teneur, où l'élimination de MV-RC a été maximale lorsque la teneur était entre **15 et 35 mg/L**. alors que le pH n'avait aucun effet sur l'élimination du MV-RC ni linéairement ni quadratiquement. L'analyse ANOVA de la **Figure III.14 (2)** montre l'absence d'effets pour les deux facteurs sur l'élimination de MV-RC, ce qui pourrait être référé à l'utilisation d'une dose initiale élevée.
- Les **Figure III.15 (1) et (2)** montrent l'effet linéaire de la teneur, où l'élimination de VB-RC et de RC-VB ont été diminuées lorsque la teneur augmente. La figure ne montre également aucun effet obtenu à partir du facteur pH.

### III.3.2. Optimisation des résultats

Comme il est mentionné précédemment (Chapitre 1, partie expérimentale), le logarithme du logiciel RSM nous a permis de prédire les conditions optimales pour une série des essais et de calculer notamment le rendement maximal possible à fournir par ces conditions où l'étape clé après la modélisation d'un processus, est l'optimisation ([Betiku et al, 2016](#)). Le principe de cette dernière est d'exploiter un modèle de régression développé par refaire certains nombres d'essais selon les conditions optimales trouvées. Puis on compare les résultats expérimentaux obtenus par la suite avec ceux prédites afin d'améliorer l'efficacité du travail (Si la différence est d'environ **5%**, nous pouvons dire que les conditions prédites sont optimales).



Selon les modèles quadratiques représentatifs de chaque système de combinaison, nous avons constaté les propositions suivantes pour l'optimisation de nos résultats :

**MV-VB :** A des faibles doses de coagulant et à pH acide (2), l'élimination est d'environ 50% ; tandis que pour une teneur initiale du colorant dans la gamme 40 à 50 mg/L et un pH acide (=2) en présence de 25 mg/L de coagulant, l'élimination pourra arriver à 44 %. Cependant, en présence de la dose optimale 130 mg/L, 50 mg/L de la teneur initiale et un pH 2, le rendement arrive à 59,39%.

**VB-MV :** A des pH allant de 6-10 et une dose de coagulant 80-130 mg/L, l'élimination peut arriver à 40,18% ; l'interaction de la haute gamme de teneur initiale (40 à 50 mg/L) avec le pH 6 en présence de 25 mg/L de SA, peut offrir un rendement environ de 31 %. Tandis que, une teneur de 50 mg/L et pH=6 avec une dose de SA=130 mg/L, l'efficacité d'élimination peut atteindre 51%.

**MV-RC:** Pour 95 mg/L de SA et un pH alcalin, l'élimination est environ de 92,5 %. Alors que, pour une teneur de 25 mg/L avec un pH alcalin (10) et en présence de 90 mg/L de SA, le rendement d'élimination dépasse 93%.

**RC-MV :** Une dose de 65-85 mg/L de coagulant avec un pH de 10 peuvent éliminer plus de 42%, alors qu'aucune optimisation n'est proposée pour l'interaction de la concentration initiale avec le pH (le modèle est non significatif).

**VB-RC:** Une dose entre 80 et 100 mg/L de SA et dans un des pH acide et alcalin (2 et 10), ont la capacité d'éliminer plus de 98%. Le RSM estime qu'une faible teneur avec des pH de l'eau en présence de la dose optimale du coagulant (100 mg/L) peuvent éliminer le RC d'une manière totale (R(%)=100).

**RC-VB:** Une dose de 110 mg/L de coagulant et un milieu de pH=6, ont la capacité d'éliminer environ de 62,5% de RC. Alors qu'une faible teneur avec des pH alcalins en présence de la dose optimale du coagulant (100 mg/L) peut éliminer d'environ 90%.

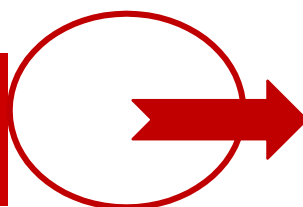
### III.4. Conclusion

L'objectif de ce chapitre était d'une part, d'étudier les performances de la coagulation-floculation des colorants (MV, RC et VB) dans des systèmes binaires en utilisant le sulfate d'aluminium comme coagulant. Quelques paramètres réactionnels ont été étudiés à savoir, le dosage du coagulant, le pH initial et variation de la teneur initiale du colorant. D'autre part, une application de la modélisation de nos résultats (systèmes binaires) par exploitation de logiciel statistique RSM. De ce fait, le présent chapitre présente les conclusions suivantes :

- Dans le système binaire il y'a une augmentation de l'abattement de la couleur avec l'augmentation de la dose du sulfate d'aluminium, jusqu'à un optimum et se diminue après une certaine dose optimale de coagulant, dont la valeur de la décoloration est faible ;
- Globalement, le couplage et/ou la combinaison des deux colorants (système binaire) perturbe la décoloration de leur homologue ;
- La variation du pH du milieu présente deux catégories : La première catégorie présente un taux d'abattement de la coloration est supérieur ou bien quasi égal à **50%**. La deuxième catégorie regroupe les combinaisons binaires dont l'abattement du taux de la coloration est très inférieur à **50%** ;
- Le pH optimal du traitement se localise dans les milieux très acides et ceux qui sont proches de la neutralité. Dans la gamme du pH choisi, un effet inhibiteur de l'élimination est apparu pour le RC en combinaison avec le VB et le MV et pour le VB en présence RC et VB ;
- Très bonne élimination a été enregistrée avec la variation de la teneur initiale du colorant ;
- L'application de la modélisation par RSM confirme les résultats obtenus dont la majorité des modèles ont été significatifs.

# *Partie II : Partie Expérimentale*

## **Chapitre IV : Etude de la décoloration des eaux résiduelles par coagulation-floculation**



### IV.1. Introduction

Au cours de ce présent chapitre nous nous sommes intéressés à l'application de la coagulation-floculation en étudiant son effet sur la décoloration de deux types d'eaux résiduaires. Rappelant que la première eau est une eau résiduaire synthétique collectée au niveau du Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (**LARHYSS**), de l'Université de Biskra. Tandis que, la deuxième eau est une eau résiduaire provenant d'un rejet d'une unité de production de peinture située à Barika (W. Batna). Ces deux types d'eaux contenant des concentrations plus au moins importantes des colorants synthétiques que nous avons déjà étudiés (Méthyle violet (MV), Rouge Congo (RC) et le vert Brillant (VB). En prenant en considération que l'élimination des colorants synthétiques des eaux usées résiduaires peut être un défi en raison de la complexité des molécules de colorant et de leur résistance à la dégradation.

Dans ce contexte, les principaux paramètres opératoires du procédé que nous allons étudier en vue d'évaluer leurs effets sur le taux de traitement à savoir, les doses des coagulants et des adjuvants ainsi le pH initial du milieu sur l'abattement des concentrations des colorants synthétiques dans des milieux assez complexes.

### IV.2. Résultats et discussion

Nos essais de la coagulation-floculation sur les deux types d'eaux résiduaires sont effectués selon le protocole de Jar-Test suivi aux chapitres précédents (chapitre II et chapitre III partie expérimentale), pour que nous puissions évaluer les performances du procédé sur l'élimination des colorants synthétiques (MV, RC, VB) dans un milieu assez complexe chargé par des composés chimiques organiques et inorganiques pourront jouer un rôle promoteur ou inhibiteur sur les performances du procédé de la coagulation-floculation. Après décantation et filtration, les échantillons seront passés à l'évaluation. A ce moment on déterminera les absorbances selon la longueur d'onde de chaque colorant ainsi que celle du mélange, et nous allons également étudier la demande chimique en oxygène (DCO), la turbidité et le titre d'alcalinité complet (TAC) dans le but de déterminer le pourcentage de la réduction de ces trois paramètres. L'ensemble de nos résultats vont être comparés avec des travaux de certains chercheurs.

Le principe du chapitre est schématisé dans la **Figure IV.1** :

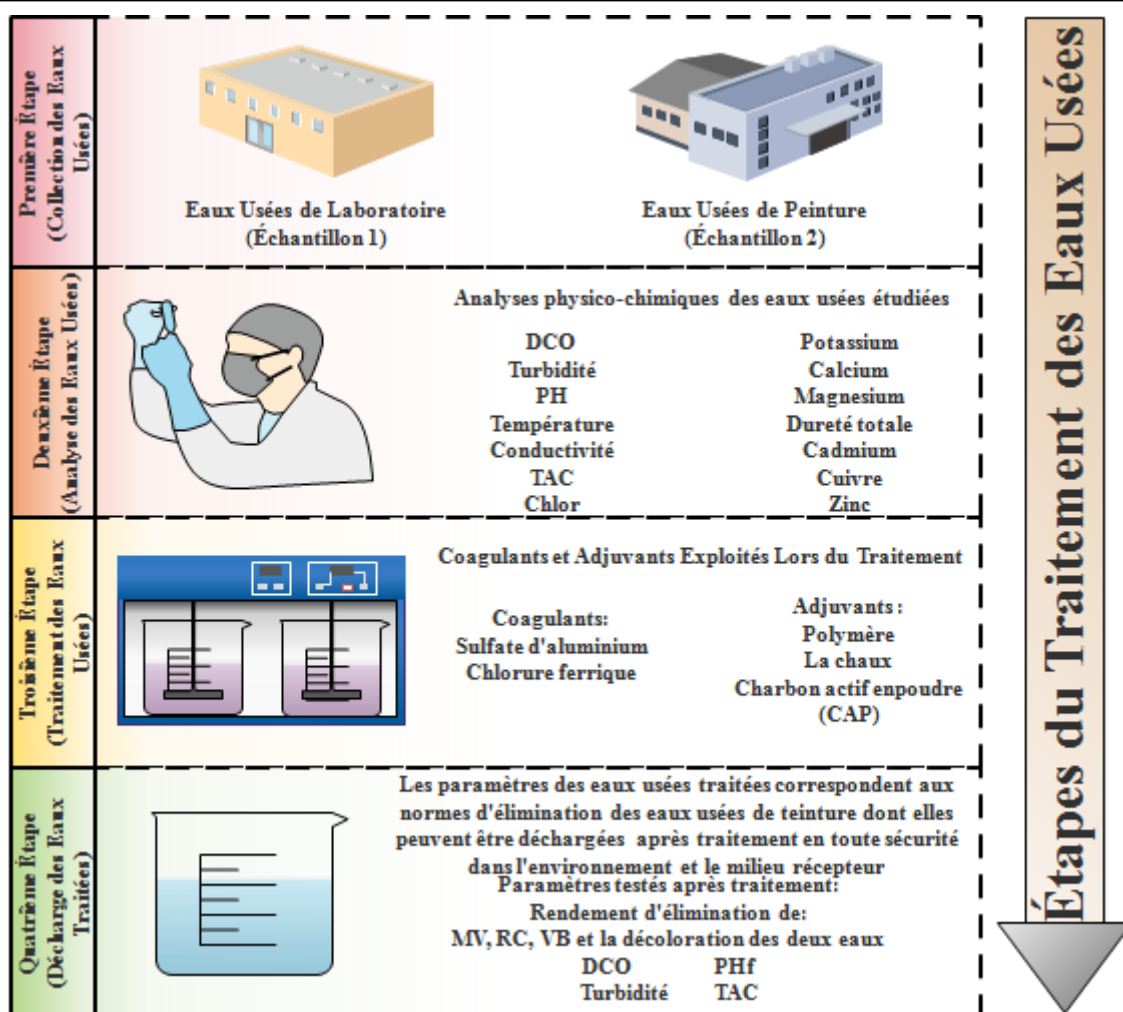
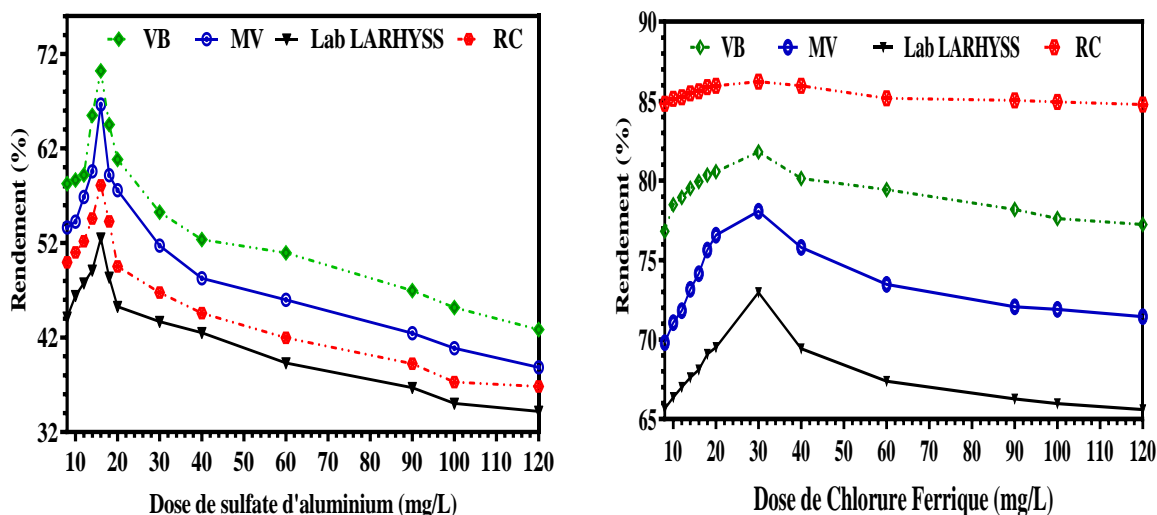


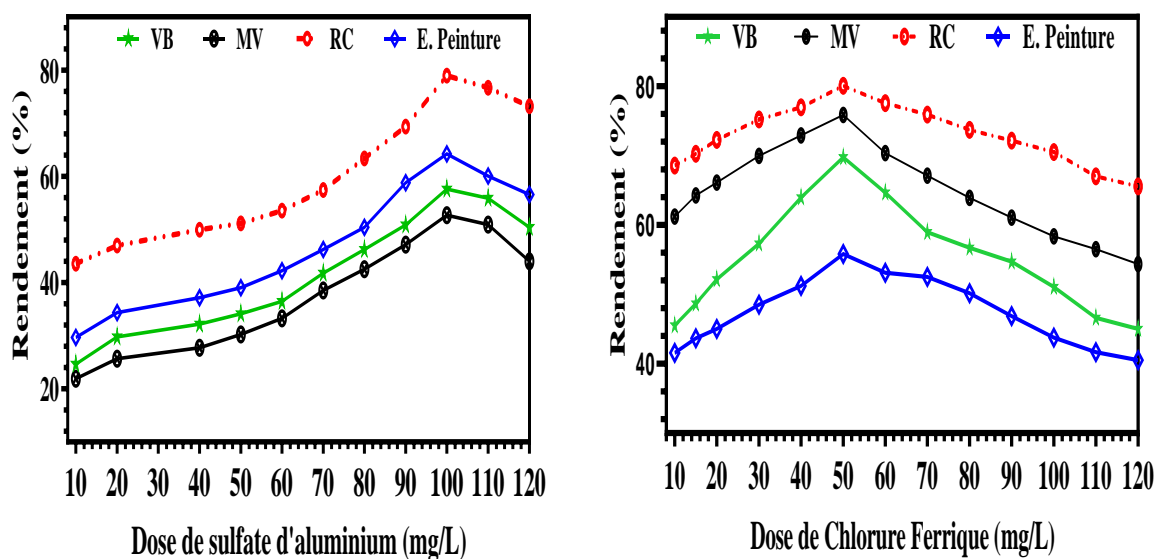
Figure IV.1 : Schéma présentatif des étapes suivies et le protocole appliqué lors du traitement des eaux usées de laboratoire et de l'unité de production de peinture

#### IV.2.1. Etude de la variation de la dose du coagulant

Nous savons que les doses nécessaires pour éliminer les colorants peuvent varier en fonction de la concentration des colorants dans l'eau et du type de coagulant utilisé. En voyant la composition des deux eaux résiduaires étudiées, nous avons choisi d'étudier l'effet de la variation des doses de sulfate d'aluminium et de chlorure ferrique sur une large gamme des doses et qui varie de **8 à 120 mg/L**. Sans ajustement du pH, les résultats que nous avons obtenus sont présentés par les courbes des **Figures IV.2 et IV.3**.



**Figure IV.2 :** Effet de la variation de sulfate d'aluminium et chlorure ferrique sur l'élimination du MV, RC, VB et le mélange des eaux de laboratoire (Lab. LARHYSS)



**Figure IV.3 :** Effet de la variation de sulfate d'aluminium et chlorure ferrique sur l'élimination du VB, MV, RC et le mélange des eaux résiduaires (E. Peinture)

Selon les résultats présentés dans les **Figures IV.2 et IV.3** nous remarquons tout d'abord que, les courbes de chaque milieu s'évaluent de la même façon. Une augmentation des rendements est enregistrée jusqu'à un optimum, puis, une diminution est apparue. Cela est peut être dû au surdosage du coagulant qui provoque la restabilisation des particules de colorant/mélange par un excès d'espèces d'hydrolyse d'aluminium/fer et empêche par conséquent la formation des ponts intra-particulaires (Wong et al, 2007).

Au vu de nos résultats, nous pouvons marquer d'une part que, les rendements maximaux d'élimination du RC, MV, VB et la décoloration du mélange sont globalement supérieurs à **50%** (**Tableau IV.1**) aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique. Cette élimination est accompagnée par une faible dose de coagulant allant de **16 et 30 mg/L** pour les eaux du laboratoire LARHYSS et de **100 et 50 mg/L** pour les eaux de la production de peinture respectivement pour le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. D'autre part, que le coagulant chlorure ferrique est prioritaire dans l'abattement de la coloration qui se trouvent dans les deux types d'eaux résiduaires testées en comparaison avec le sulfate d'aluminium.

**Tableau IV.1** : Rendements maximums d'élimination des colorants des eaux résiduaires par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique

	RC %	MV %	VB %	Mélange %
Sulfate d'aluminium ( $Al_2(SO_4)_3$ )				
Lab. LARHYSS SA = 16 mg/L	58,1	66,63	70,19	52,52
E. Peinture (Barika) SA = 100 mg/L	78,95	52,69	57,61	64,19
Chlorure ferrique ( $FeCl_3$ )				
LARHYSS $FeCl_3$ = 30 mg/L	86,23	78,08	81,8	72,96
E. Peinture (Barika) $FeCl_3$ = 50 mg/L	80,08	75,87	69,76	55,81

À partir de nos résultats des **Figures IV.2 et 3** et du **Tableau IV.1**, il nous est apparu très clair qu'en présence de ces deux différents coagulants, les rendements d'élimination des trois colorants sont supérieurs à ceux des mélanges. Cette inefficacité de la décoloration des mélanges en comparaison avec les colorants synthétiques pourra être due à l'existence d'autres composés d'origines organiques et/ou inorganiques peuvent jouer un rôle inhibiteurs diminuant les performances du coagulant sur la dégradation de la coloration du mélange tels que les chlorures dont les concentrations sont de **7,99 et 12,49 g/L**, les conductivités **2,5 et 3,23 ms/cm** respectivement pour les eaux du laboratoire LARHYSS et de l'unité de production de la peinture. De même, les essais de la coagulation ont été réalisés au pH du milieu n'est pas ajusté ( $pH_{LARHYSS}=8,28$  ;  $pH_{production\ peinture}=7,27$ ) dans ces conditions de pH, le mécanisme prédominant lors de l'introduction du sulfate d'aluminium et du chlorure dans l'eau est le piégeage des colloïdes par adsorption sur les floes d'hydroxyde d'aluminium

$\text{Al(OH)}_3$  et d'hydroxyde de fer  $\text{Fe(OH)}_3$ . De ce fait, selon (Mazet et al, 1990) d'autres réactions peuvent compétitivement apparaître notamment avec les floccs constitués par un mélange amorphe et d'espèces chargées positivement produit par les coagulants tels  $\text{Al(OH)}^{2+}$ ,  $\text{Al(OH)}_2^+$  et  $\text{Fe(OH)}_4$ ,  $\text{Fe}_2(\text{OH})_2^{+4}$  et  $\text{Fe}_3(\text{OH})_4^{+5}$ . Un mécanisme électrostatique poly-anioniques du colorant peut alors se produire et conduit généralement à une variation importante du potentiel Zêta. Dans ce cas, il reste un certain nombre de charges négatives non neutralisées, parce que la dimension de colorant ne permettant pas la neutralisation complète de leurs charges négatives (Achour et Guesbaya, 2005).

Parallèlement à l'élimination des colorants des eaux résiduaires le suivi de l'abattement de la matière organique sous forme, de demande chimique en oxygène (DCO) et de turbidité ont été illustrés par courbes de la **Figure IV.4**. Ces courbes montrent que, l'abattement de l'élimination de la matière organique sous forme de la DCO a enregistré un autre phénomène. Il y'a une élimination optimale avec **8 mg/L** du coagulant aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour celui du chlorure ferrique pour les eaux du laboratoire LARHYSS accompagné respectivement par un taux d'abattement de **89,4%** et **80%**. De même, les eaux de la peinture présente avec **10 mg/L** et **20 mg/L** du coagulant, un taux d'abattement de **69,60%** et de **74,32%** respectivement pour le chlorure ferrique et le sulfate d'aluminium. Subitement une diminution dans l'élimination est apparue. Cette diminution dans le taux d'abattement est accompagnée par un autre mécanisme qui présente une augmentation progressive dans l'élimination de la DCO. Mais cette augmentation ne dépassant pas le rendement maximal. A ce stade de nos résultats, il est important de noter que le sulfate d'aluminium présente une légère performante dans l'abattement de la DCO que le chlorure ferrique.

Par contre, pour la turbidité on a enregistré une perturbation dans les taux d'abattement, tantôt une augmentation et parfois une diminution avec la variation de la dose des deux coagulants aussi bien pour les eaux du laboratoire LARHYSS que des eaux de la production de la peinture (**Figure IV.5**). Notons que, les taux d'abattement de la turbidité dans les eaux du laboratoire LARHYSS sont presque totaux et sont de l'ordre de **87,29%** pour le SA (SA = **100 mg/L**) et de **99,95%** pour le  $\text{FeCl}_3$  ( $\text{FeCl}_3 = 30 \text{ mg/L}$ ). Pour les eaux de la peinture les bons rendements sont de **89,20%** et de **78,8%** obtenus avec **120 mg/L** de SA et de  $\text{FeCl}_3$ . Dans cet état d'esprit, il est important de dire que les doses nécessaires à l'abattement de la turbidité sont supérieures, ce qui implique que la matière organique est en grande partie sous forme dissoute.



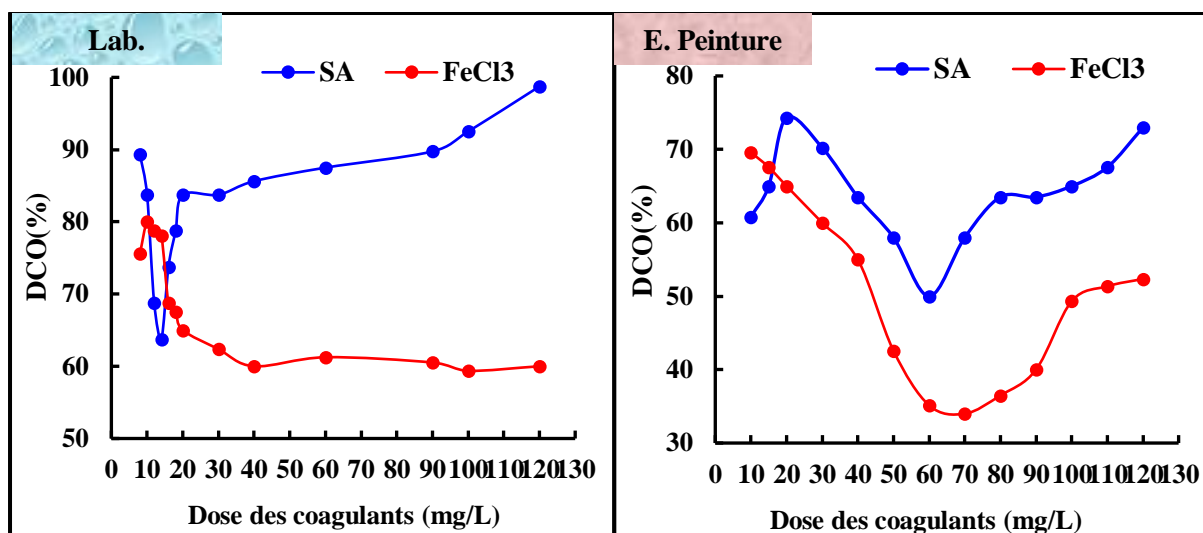


Figure IV.4 : Pourcentages de la réduction de la DCO des eaux étudiées avec la variation des doses des coagulants

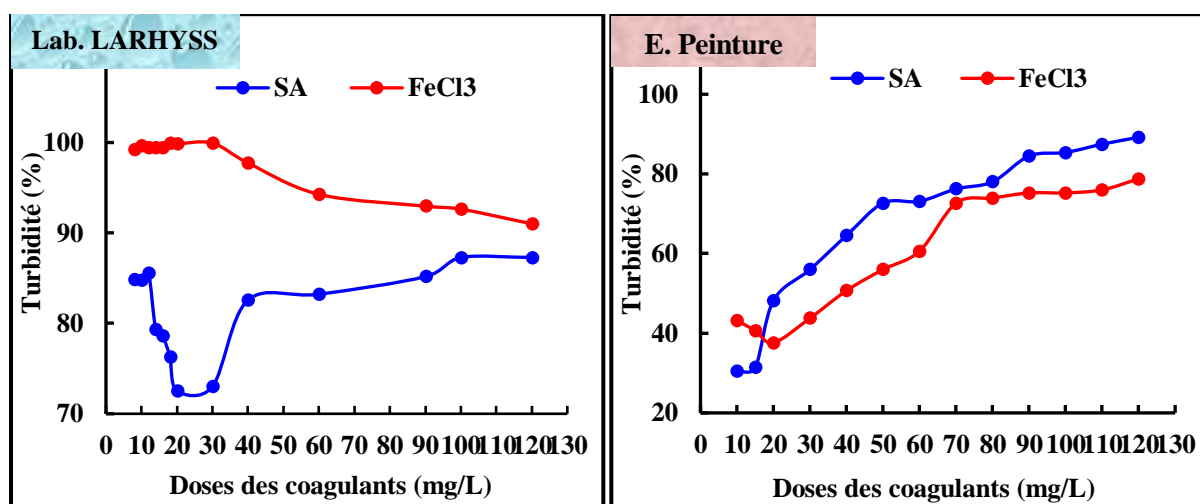


Figure IV.5 : Pourcentages de la réduction de la turbidité des eaux étudiées avec la variation des doses des coagulants

D'après nos résultats et selon le taux du traitement des deux échantillons on supporte les conclusions de [Verma et al, \(2012\)](#) et [Yu et al, \(2002\)](#) qui ont témoigné que, la coagulation-floculation des colorants des eaux industrielles pouvait être très efficace dans certains cas mais, le pourcentage d'élimination peut aussi se diminuer, cela est dû principalement aux structures complexes des colorants qui posent des difficultés lors de la sélection de coagulant approprié au type du colorant (sa solubilité). De plus, l'efficacité de la coagulation peut être améliorée par une sélection appropriée de coagulant, de temps de floculation, d'optimisation des paramètres de processus tels que le pH, le dosage du coagulant/floculant, le temps de mélange ([Verma et al, 2012](#)).

L'ensemble de nos résultats pourront être confirmés par certains travaux ([Dayarathne et al, 2020](#); [Kumar et al, 2008](#); [Aziz et al, 2007](#)), qui ont révélé que le  $\text{FeCl}_3$  élimine efficacement les composants organiques de poids moléculaire faible et élevé en comparaison avec les autres coagulants en particulier le sulfate d'aluminium. De même, [Gao et al, \(2007\)](#) ; [wang et al, \(2002\)](#) ont bien montré que les performances de la décoloration par coagulation-floculation dépendent principalement des caractéristiques des colorants et des coagulants et que les rendements ne sont pas très élevés dans la plupart des cas.

L'application d'autres coagulants dans le traitement des eaux usées colorées a prouvé que le procédé de la coagulation-floculation est efficace dans la décoloration et l'élimination de la DCO et de la turbidité à savoir.

[Stephenson et Duff, \(1995\)](#) ont montré qu'ils ont obtenu **88%** ; **90%** et de **98%** d'élimination du carbone total, de la couleur et de la turbidité d'un effluent d'eau usée, après coagulation par utilisation du sels, de chlorure et de sulfate de fer et d'aluminium.

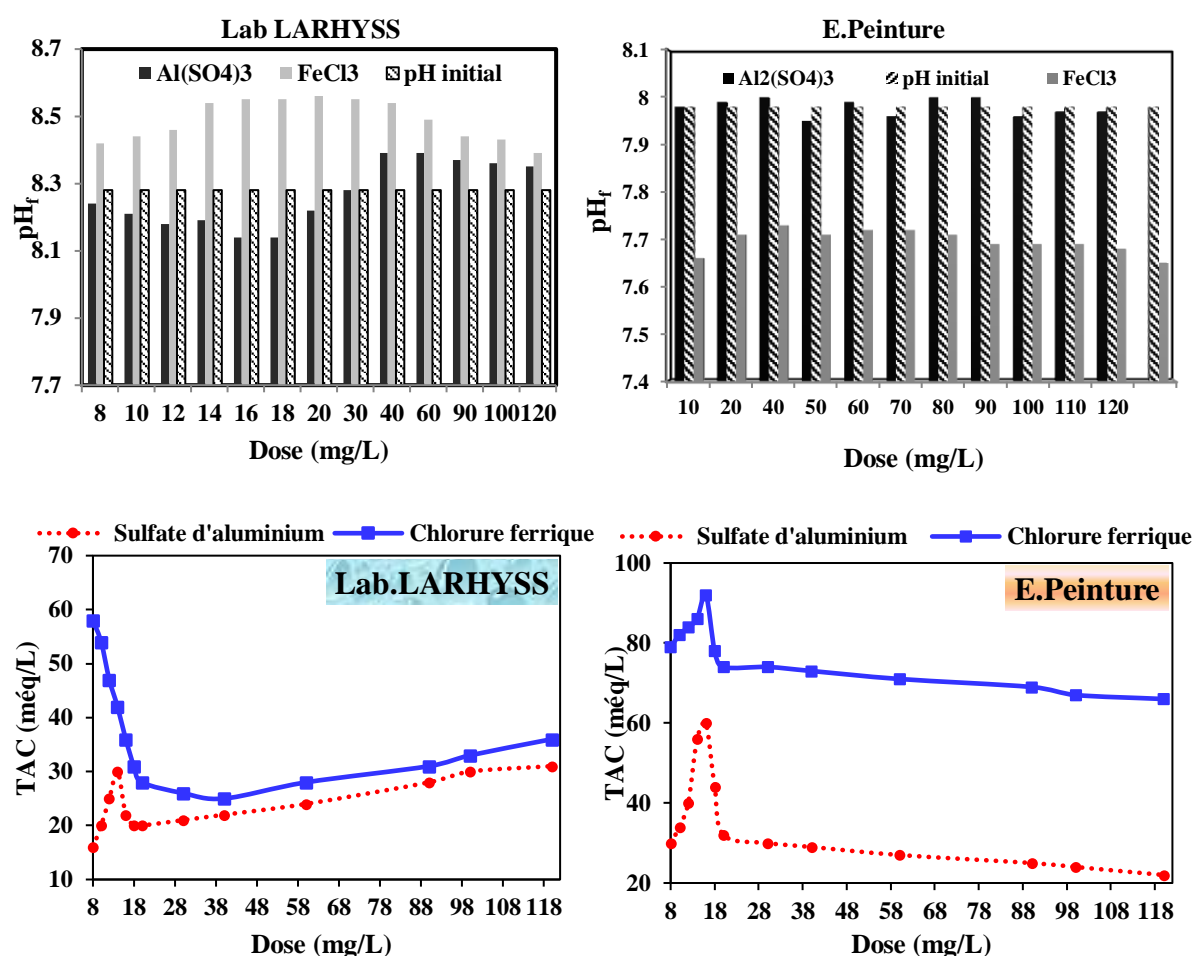
[Farajnezhad et Gharbani, \(2012\)](#) ont procédé au traitement par coagulation des eaux usées d'une industrie pétrolière par utilisation du polychlorure d'aluminium et de chlorure ferrique. Ils ont bien confirmé qu'avec **10 mg/L** de coagulant, il y'a **78** et **88%** d'élimination de la couleur des effluents par le chlorure ferrique et le polychlorure d'aluminium respectivement.

[Radin et al, \(2014\)](#) ont montré qu'avec **60 mg/L** de *Moringa Oleifera*, il y'a une élimination de **60%** de la DCO et que **150 mg/L** de sulfate ferreux a entraîné un pourcentage de réduction de la DCO de l'ordre de **71%**. Dans la littérature de cette étude, [Malhotra et al, \(1964\)](#) ont montré que les réductions de la DCO étaient de **77,3 %** ; **84,6%** et **48,8%** par le sulfate ferreux dans le traitement des eaux usées.

Cependant, et d'après la **Figure IV.6**, le suivi des pH finaux a affirmé qu'une légère diminution a été observée aux eaux de laboratoire, en présence de  $(\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3)$ , puis une augmentation. Le premier phénomène exprime la présence des ions  $\text{H}^+$  qui provoquent l'acidité du milieu ([Ye et al, 2007](#)). Alors que le deuxième est peut-être s'exprimé par la libération du  $\text{Al}(\text{OH})_4^-$  (Diagramme de la répartition des espèces hydrolysées de l'aluminium (**Chapitre II, partie I**)). Avec le chlorure ferrique, les résultats sont apparus contradictoire. Pour les eaux de Barika, le  $\text{pH}_f$  n'a pas été très influencé par le sulfate cependant que le chlorure où les valeurs sont toutes moins de celle de  $\text{pH}_i$

Nous constatons aussi de la **Figure IV.6** que le TAC des deux eaux résiduaires réagit différemment avec les deux coagulants testés. Une très bonne réduction du TAC initial (**40 méq/L**) des eaux de laboratoire accompagne les petites doses de sulfate d'aluminium. En revanche le chlorure ferrique augmente le TAC à l'exception dans la zone de la dose optimale, le TAC subit à une diminution.

Le TAC des eaux de peinture subit à une diminution dans la zone des grandes doses de sulfate d'aluminium. Tandis que, l'ajout du chlorure ferrique provoque des TAC supérieures à celle de TAC initial (**60 méq/L**).



**Figure IV.6** : Variation des pH finaux et TAC des eaux étudiées après traitement avec la variation des doses de coagulants

#### IV.2.2. Effet de la variation du pH

Rappelant que plusieurs études ont montré que le pH est également un facteur pratiquement important pour l'efficacité de la coagulation lors du traitement des eaux usées contenant des colorants (Olthof et Eckenfelder, 1976; Li et al, 2010, Matilainen et al, 2010 ; Radin Mohamed et al, 2014). Car le pH optimal du coagulant renforce l'élimination des colorants encore mieux (Aboulhassan et al, 2006). Ce paramètre est suggestionné généralement par le

type de coagulant et du polluant étudié, ainsi que la qualité des eaux à traiter. Globalement, un pH compris entre 6 et 8 est optimal pour le procédé de la coagulation floculation (Aziz et al 2007).

En vue d'étudier la décoloration des eaux usées par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium et au chlorure ferrique en fonction de la variation du pH, nous avons choisi d'étudier l'effet de ce paramètre dans une gamme allant de 2 à 10. L'ajustement de pH voulu est effectué par l'acide chlorhydrique (HCl) et l'hydroxyde de Sodium (NaOH) à 0,1 N. Les essais de la coagulation-floculation ont été réalisés en présence des doses optimales des deux coagulants. Les résultats obtenus pour les deux échantillons sont illustrés sur la Figure IV.7 et la Figure IV.8.

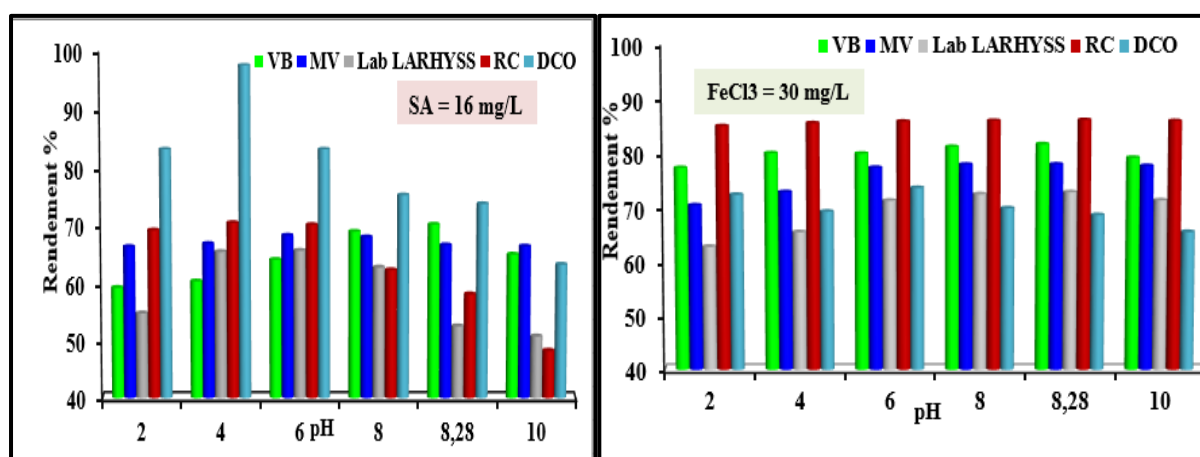


Figure IV.7 : Effet de la variation de pH initial sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et le mélange des eaux résiduaires (LARHYSS) en présence de (SA=16 mg/L; FeCl<sub>3</sub>= 30 mg/L)

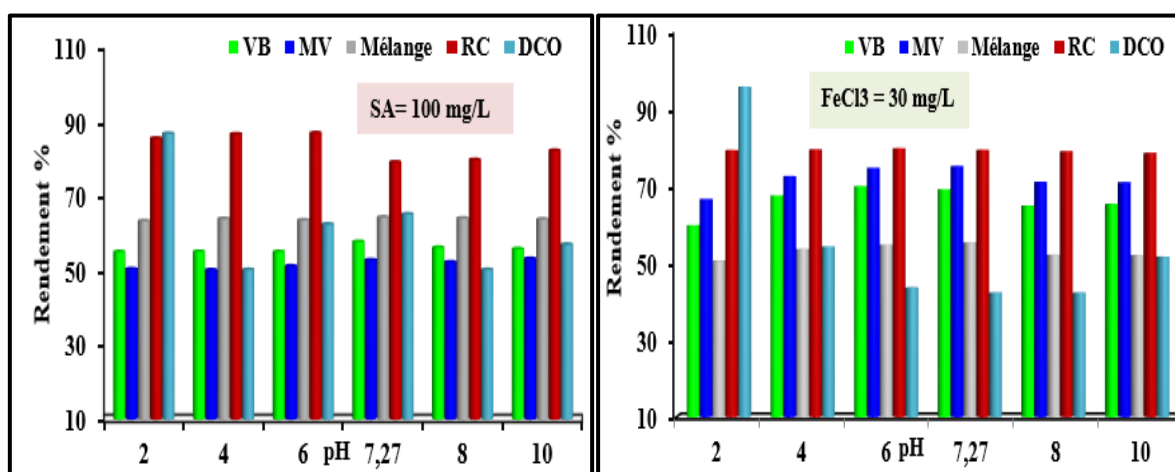


Figure IV.8 : Effet de la variation de pH initial sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et le mélange des eaux résiduaires (E. Peinture) en présence de (SA=100 mg/L ; FeCl<sub>3</sub>= 50 mg/L)

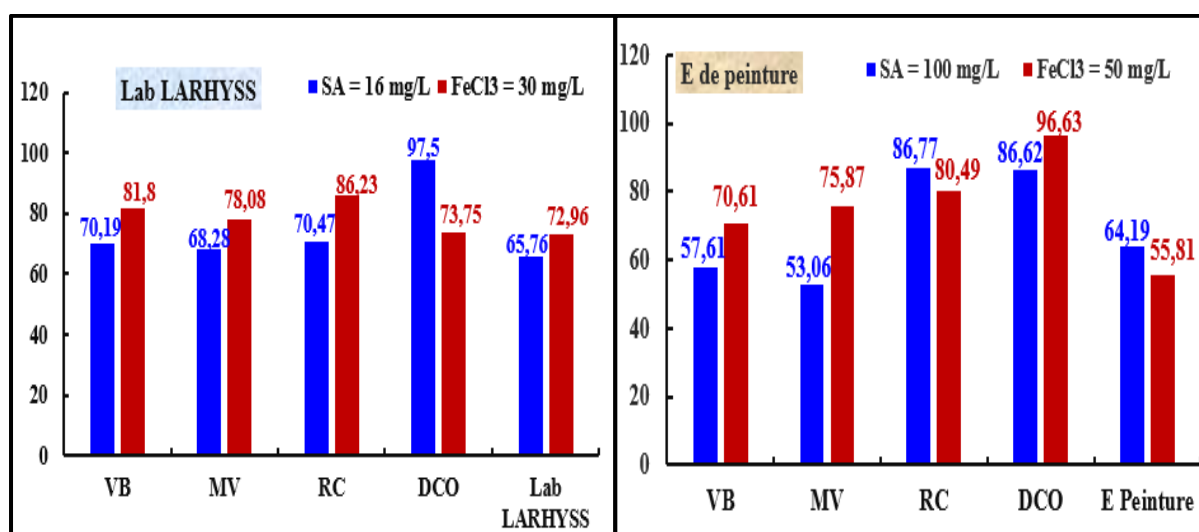
D'après les résultats présentés par les histogrammes des **Figures IV.7 et IV.8**, nous pouvons observer que l'optimum d'élimination du VB, MV, RC contenus dans les eaux de laboratoire LARHYSS et de la peinture, ainsi que la décoloration de ces mêmes eaux testées et l'abattement de la charge de la DCO aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique correspondent à des pH qui oscillent entre l'acidité, la basicité (**2, 4, 6 et 10**) et aux pH non ajustés des eaux testées. On remarque qu'à pH optimal, l'amélioration des rendements est appréciable. Ainsi, la valeur du rendement optimal passe de **73,75%** à pH non ajusté (**pH=8,28**) à **97,50 % (pH =2)** pour le sulfate d'aluminium (**Lab. LARHYSS**) et de **42,57** pH non ajusté (**pH = 7,25**) à **96,63 (pH =2)** pour le chlorure ferrique (**E. Peinture**). Dans cet intervalle des pH les espèces d'aluminium,  $Al^{3+}$ ,  $Al(OH)_2^+$ ,  $Al_2(OH)_2^{2+}$ , et  $Al(OH)_3$  rajouter ceux du fer tels que,  $Fe^{3+}$ ,  $Fe(OH)_2^+$ ,  $Fe_2(OH)_2^{4+}$  et  $Fe(OH)_3$ , prédominent. Selon **Desjardins, (1999)** à ces conditions particulières le mécanisme d'élimination prédominant serait une neutralisation par compression de la double couche. Cela va nous permettre de supposer que ce mécanisme est plus efficace pour l'élimination des colorants par rapport aux autres mécanismes.

Il est important de signaler qu'à ces pH les réactions mises en jeu sont probablement nombreux comptes tenus de la présence simultanée de plusieurs espèces hydrolysées d'aluminium et du fer (solubles et insolubles) et de la forme dissociée des colorants à ces pH (pKa RC = environ 4 ; pKa MV = 5,31 et 8,64 et pKa VB = 2,62-4,93). Toutefois, les espèces cationiques de l'aluminium et du fer précités sont prépondérantes et une des réactions possibles est la formation de composés hydroxo-aluminiques et /ou ferrique solubles. Bien que minimes, d'autres réactions peuvent compétitivement apparaître à ces pHs, notamment avec les floes constitués par un mélange amorphe et d'espèces chargées telles que  $Al(OH)_2^+$ ,  $Al_2(OH)_2^{2+}$  (**Wais-Mossa et Mazet, 1991**) et du fer  $Fe(OH)_2^+$  et  $Fe_2(OH)_2^{4+}$ . Un échange de ligand à la surface des floes peut avoir lieu (**Greenland, 1971, Afoufou, 2023**).

Il est important de signaler que les pHs optimaux que nous avons obtenus entrent dans le même intervalle que celui de l'élimination du RC, VB et MV par sulfate d'aluminium en solutions synthétiques d'eau distillée (Partie II, **II.2.3**. Chapitre II, P 80). Ceux-ci pourraient être indiqués que sous l'effet du pH, le même mécanisme qui est apparue aussi bien pour les colorants dans les eaux résiduaires testées que celui en solutions synthétiques d'eau distillée. Rappelant que les pHs optimaux en solutions synthétiques sont comme suit : Pour le RC sont

de 4 et 6. Tandis que, le VB et MV sont de 2 et 10 dont le pourcentage de la décoloration dépassant les 50%.

À ce stade de nos résultats, les histogrammes de la **Figure IV.9** présentent une comparaison des rendements optimaux entre le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique. Ces histogrammes montrent que, les taux de décoloration du RC, MV et VB obtenus par le chlorure ferrique sont supérieurs à ceux du sulfate d'aluminium, à l'exception l'abattement de la DCO dans les eaux de laboratoire LARHYSS et la décoloration des eaux de la peinture, le sulfate d'aluminium est prédominant. L'écart d'élimination entre le chlorure ferrique et le sulfate d'aluminium varie de **9,8** à **15,75** et de **13** à **22,81**% respectivement pour les colorants contenus dans les eaux de laboratoire LARHYSS et la peinture. Ceci nous a permis de supposer l'influence de plusieurs paramètres organiques et minéraux ont un effet inhibiteur et /ou promoteur sur le processus de la coagulation-floculation aussi bien par le sulfate d'aluminium que par le chlorure ferrique. Donc, le type du coagulant utilisé et la composition des eaux traitées, puissent influencer le taux d'élimination des colorants.



**Figure IV.9** : Rendements optimaux sur l'élimination du VB, MV, RC, DCO et les résiduaux testées par sulfate d'aluminium et chlorure ferrique en fonction du pH du traitement optimal

Signalant, que les valeurs du pH optimal que nous avons obtenu confirment les résultats cités par :

**Papic et al, (2004)**, ont suggéré que l'effet du pH sur l'élimination d'un colorant pourrait s'expliquer pratiquement par l'effet de la combinaison d'ionisation des groupes amino, hydroxy et sulfo dans les molécules du colorant qui augmente avec le pH dans la gamme acide avec la diminution de la concentration des produits d'hydrolyse dissous.

Dans l'étude de [Shi et al, \(2007\)](#), à pH de 7, l'efficacité de décoloration était de **98 %**. Étant donné que les colorants réactifs appartiennent à la catégorie des colorants anioniques et les groupes fonctionnels de ces colorants contiennent des groupes anioniques tels que sulfonique, hydroxyle et amine, donc la présence de groupes anioniques sur ces colorants conduit à des charges négatives portées en dissolvant dans l'eau. Pour la coagulation, leur charge négative doit être neutralisée. Par conséquent, on s'attend à ce qu'avec la diminution du pH, la neutralisation de la charge négative se produit avec une plus grande sévérité.

D'après [Gao et al, \(2007\)](#), l'efficacité de la décoloration ou du traitement d'une eau usée de textile est fonction du pH de la solution, ce qui signifie que, le mécanisme de la neutralisation de charge peut être considéré comme une force motrice pour l'élimination de la couleur.

[Assadi et al, \(2013\)](#) qui ont rapporté que le sulfate et le chlorure ferrique ont une efficacité d'élimination plus élevée à pH 7, et dans les conditions optimales (pH de la solution=7) où l'application de sulfate et de chlorure ferrique entraînent une d'élimination respectivement de **89** et **90 %** des colorants.

[Tiaiba et al, \(2018\)](#), ont rapporté que l'un des principaux facteurs affectant la formation des complexes métalliques est le pH de la solution, où la solubilité d'hydroxyde d'aluminium,  $Al(OH)_3(s)$  et de fer  $Fe(OH)_3$  se passe à l'intervalle pH (5,0-8,5) alors qu'au-delà de cette plage de pH, la formation de floccs devient plus difficile. Ce qui fait donc de l'intervalle précité, un milieu optimum pour le traitement des eaux usées colorées.

#### IV.2.3. Effet de la variation des adjuvants

Pour un certain type des eaux usées industrielles, le procédé coagulation-floculation ne peut être suffisant pour éliminer toutes les particules colloïdales/qui composent ces eaux car leur charge de la surface est maintenue par des forces soit électriques soit celle du Van Der Waals en composant la couche diffuse d'ions qui empêche la formation des floccs de ces particules ([Borchate et al, 2012](#)). Dans ce cas, d'autres techniques de traitement peuvent être nécessaires pour améliorer la déstabilisation des particules par la réduction de leurs charges pour que l'élimination soit complète telles que, la combinaison avec d'autres procédé de traitement ou également l'ajout des adjuvants (aides coagulant) qui améliorent le processus de la coagulation en favorisant la formation des floccs([Aboulhassan et al, 2006 ;Georgiou et al, 2003](#)).Parmi les adjuvants couramment utilisés, nous avons choisi de tester l'effet de du

charbon actif en poudre CAP (0-2 g/L), le polymère (0-0,2 g/L) et la chaux (Ca(OH)<sub>2</sub>) (0-2 g/L). L'ajout des adjuvants a été effectué pendant l'étape rapide de la coagulation. Avec la dose optimale du coagulant sulfate d'aluminium et chlorure ferrique et suite aux essais de JART-Test, les résultats que nous avons obtenus sont présentés sur les courbes des Figures IV.10 à IV.14.

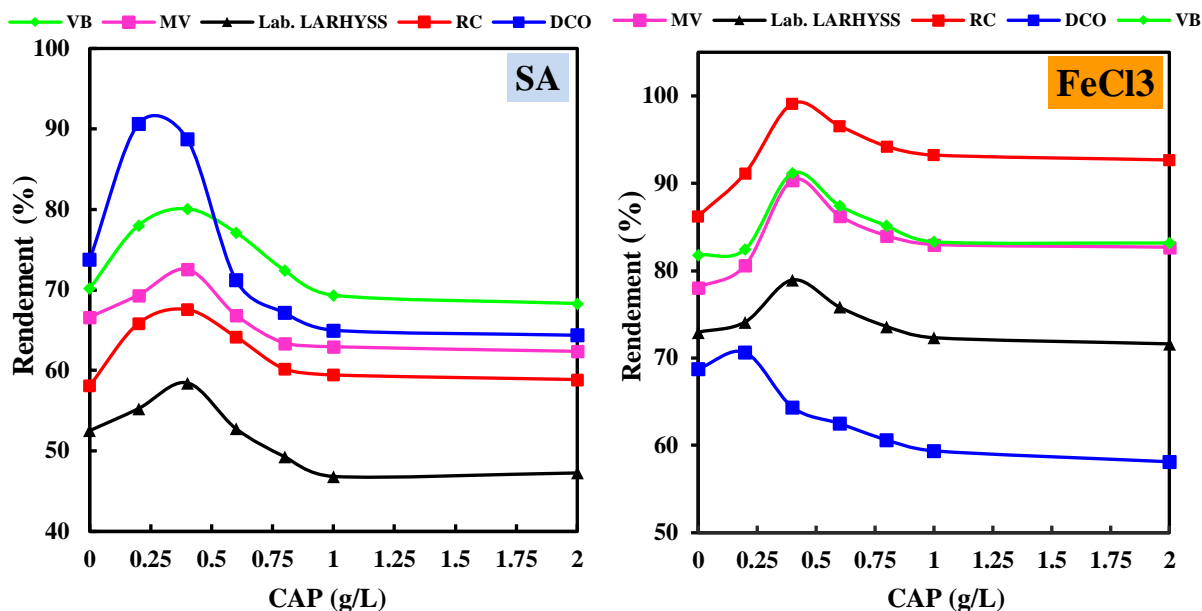


Figure IV.10 : Effet du CAP sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires (Lab. LARHYSS) en présence de (Al<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>=16 mg/L ; FeCl<sub>3</sub>= 30 mg/L)

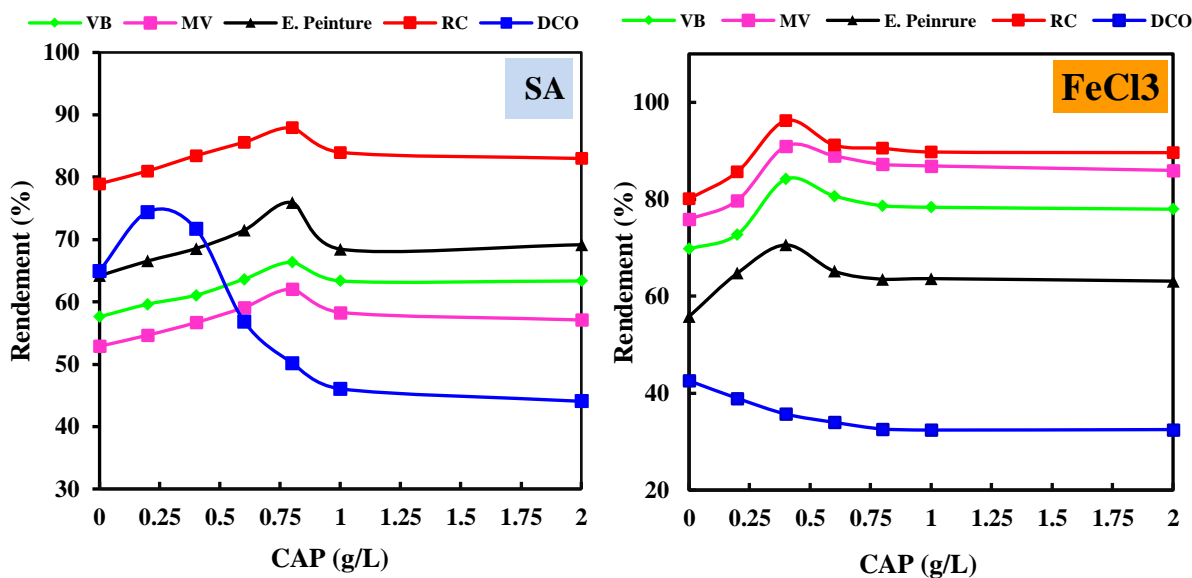
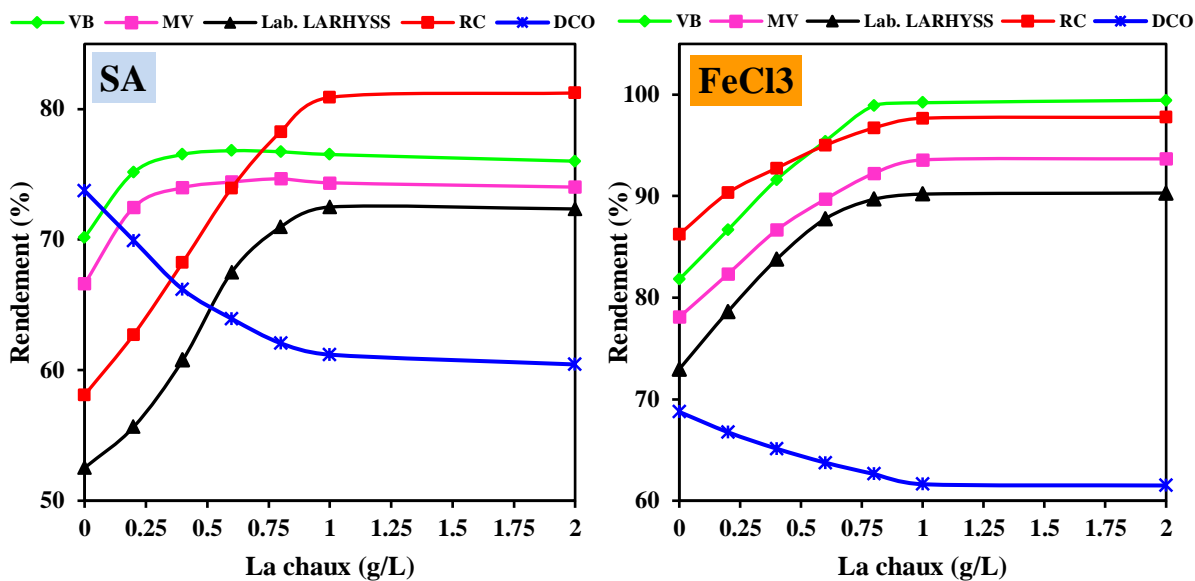
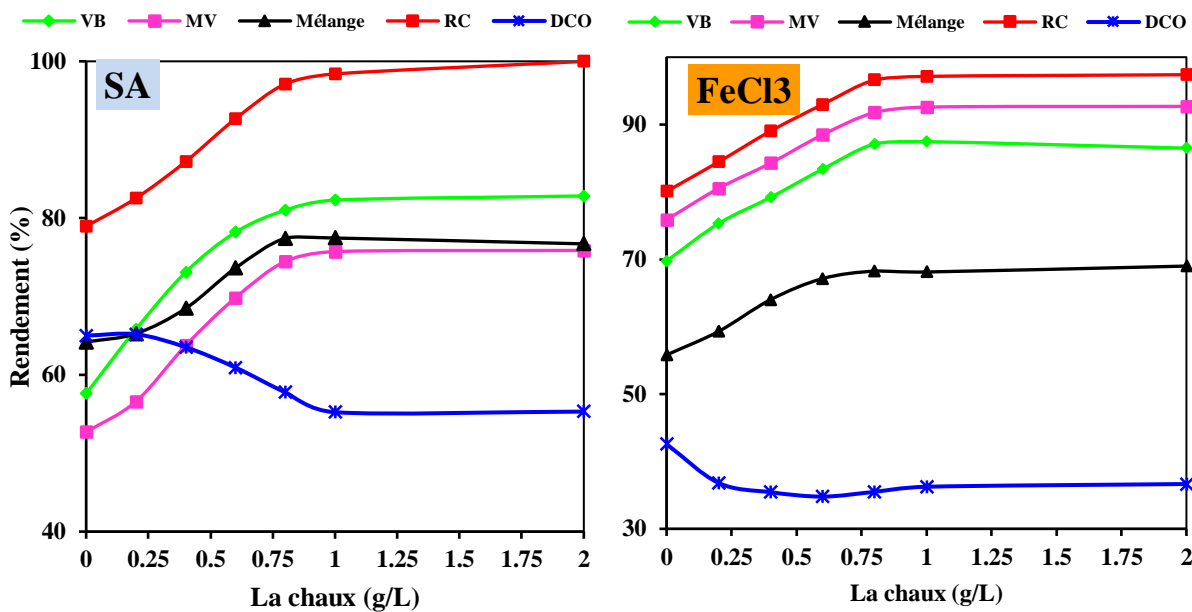


Figure IV.11 : Effet du CAP sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires (E. Peinture) en présence de (Al<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>=100 mg/L ; FeCl<sub>3</sub>= 50 mg/L)

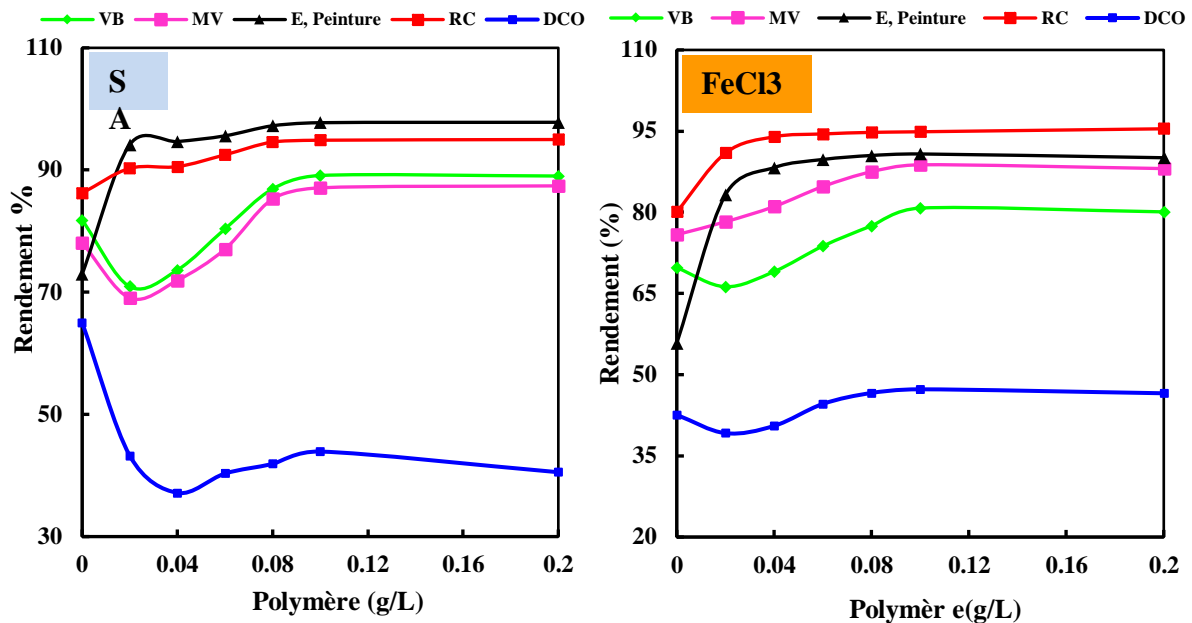




**Figure IV.12 :** Effet de la chaux sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires (**Lab. LARHYSS**) en présence de  $(Al_2(SO_4)_3=16 \text{ mg/L}$  ;  $FeCl_3= 30 \text{ mg/L}$ )



**Figure IV.13 :** Effet de la chaux sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires (**E. Peinture**) en présence de  $(Al_2(SO_4)_3=100 \text{ mg/L}$  ;  $FeCl_3= 50 \text{ mg/L}$ )



**Figure IV.14 :** Effet du polymère sur l'élimination du VB, MV, RC, le mélange et la DCO des eaux résiduaires (E. Peinture) en présence de  $(Al_2(SO_4)_3=100$  mg/L ;  $FeCl_3= 50$  mg/L)

A travers les courbes des figures que nous avons présenté nous pouvons marquer globalement, qu'il y a une augmentation dans les rendements d'élimination des colorants testés (RC, VB et MV), la décoloration des mélanges des eaux résiduaires ainsi que la DCO avec l'augmentation des adjuvants, jusqu'à un optimum. Puis une diminution est apparue et/ou une stabilité quasi égale au rendement optimal. Ce phénomène est apparu aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique. L'augmentation des rendements d'élimination varie presque de 2 à 25% par rapport au rendement optimal obtenu sans ajout d'adjuvant. Cependant, lors de l'ajout de la chaux, nous avons remarqué que l'efficacité de la réduction de la DCO diminue avec l'augmentation des doses de cet adjuvant.

A ce stade de nos résultats, nous pouvons dire globalement que c'est presque les mêmes phénomènes qui apparaissent en solution synthétiques sont également redistinguer en eaux résiduaires.

Des résultats similaires ont été obtenus par [Georgiou et al, \(2003\)](#) qui ont montré que l'amélioration de la décoloration atteint leur maximum (85–95 %) lorsque la chaux et le ferreux sulfate ont été appliqués à une concentration de 800 et 1000 mg/L, respectivement. Ce qui conduit à confirmer, que l'ajout de ce type d'adjuvant avec certains coagulants favorise le traitement de ce genre de rejet.

**Obiora-Okafo et Onukwuli, (2018)** ont rapportés que l'ajout du polymère peut neutraliser les effets des charges négatifs sur les molécules de colorant, qui sont renforcées par l'adsorption du polymère, le pontage inter-particules, neutralisation de charge, pourrait jouer un rôle prédominant dans le processus coagulation-floculation

Cependant, il est important de noter que suites aux principaux résultats obtenus, lors du traitement par les deux coagulants et le test des paramètres physico-chimiques des paramètres réactionnels, tels que les pH finaux des solutions, les valeurs du TAC ainsi que les taux d'abattement de la turbidité sont illustrés dans le **Tableau IV.2**.

D'après les résultats illustrés par le **Tableau IV.2**, nous avons pu constater les points ci-dessous :

Nous observons que, dans l'ensemble, les valeurs de  $pH_f$  sont inférieures à celles du pH initial des solutions. Les raisons de cette diminution peuvent être attribuées d'une part, à la dissociation des sulfates ainsi que celui des chlorures en ions correspondants à l'acidité du milieu traité (**Kumar et al, 2008**). D'autre part, il dût aussi à l'excès d'ions hydrogène (**Tan et al, 2000**). L'addition du charbon actif en poudre et en présence de deux types de coagulants influence les pH des solutions. Il est important de signaler que, le même phénomène est observé lors de l'ajout du polymère. Dans ce même contexte, nous remarquons également que les valeurs de  $pH_f$  en présence de la chaux augmentent rapidement, avec l'augmentation de la quantité introduite. En effet, plus le pH est élevé, plus les charges négatives sont élevées dans la solution et les coagulants neutralisent et précipitent les espèces chargées. Le pH final d'une solution s'influence par la présence des bicarbonates. où chaque ion  $Al^{3+}$  nécessite pour passer à l'état  $Al(OH)_4^-$ , 4 ions  $OH^-$  provenant pratiquement des bicarbonates, par la suite, les protons  $H^+$  libérés abaissent la valeur du  $pH_f$  selon l'équation suivante (**Georgiou et al, 2003**):



Tableau IV.2: Facteurs physico-chimiques des paramètres réactionnels des eaux résiduaires

	Paramètres	Valeurs	Sulfated'aluminium			Chlorure ferrique		
			pH <sub>f</sub>	TAC (méq/L)	Turbidité (%)	pH <sub>f</sub>	TAC (méq/l)	Turbidité (%)
Eau de laboratoire LARHYSS	pH	2	2,81	90	80,28	2,06	30	98,35
		4	4,66	48	86,60	3,23	20	99,08
		6	7,92	36	88,49	6,52	22	99,18
		8	8,69	32	89	7,92	24	99,38
		8,28	8,94	33	78,30	8,14	26	99,38
		10	9,94	40	84,69	9,47	30	97,75
	CAP (g/L)	0	8,2	26	78,53	8,2	26	92,83
		0,2	8,14	36	98,35	8,74	32	65,66
		0,4	7,99	40	98,73	8,73	34	55,75
		0,6	8,07	41	95,55	8,74	36	20,57
		0,8	8,08	43	95,50	8,74	36	20,75
		1	8,09	45	96,28	8,71	38	42,45
	La Chaux (g/L)	2	8,09	48	97,03	8,69	40	45,28
		0,2	8,92	54	97,69	9,5	26	41,60
		0,4	9	86	96,42	9,72	38	85,85
		0,6	9,34	80	98,91	10,2	36	37,17
		0,8	9,88	61	99,43	11,2	28	78,21
		1	10,9	56	99,98	11,8	18	52,17
Eau de la peinture	pH	2	2,14	0	96,35	1,71	200	87,93
		4	3,5	28	96,45	3,25	160	94,94
		6	7,09	16	95,69	7,01	40	98,06
		7,27	7,57	16	73,35	7,46	52	75,14
		8	7,65	20	96,51	7,51	64	91,83
		10	8,55	16	97,59	8,71	76	91,88
	CAP(g/L)	0	8,2	26	73,53	8	36	75,83
		0,2	8,02	12	90,85	7,81	20	86,53
		0,4	7,64	14	92,20	7,53	25	91,11
		0,6	7,59	16	92,53	7,5	26	84,24
		0,8	7,62	16	94,16	7,53	24	88,79
		1	7,59	14	95,45	7,5	23	85,39
	La Chaux (g/L)	2	7,63	11	94,64	7,56	18	95,91
		0,2	8,07	44	79,03	8,65	186	75,98
		0,4	8,32	32	87,75	9,16	104	91,19
		0,6	8,84	34	87,97	9,77	60	96,47
		0,8	9,26	36	96,54	10,7	72	95,74
		1	10,09	40	97,20	11,2	88	93,33
Polymère (mg/L)	2	11,3	198	93,11	11,8	250	86,15	
	0,02	7,42	76	72,68	7,38	70	65,95	
	0,04	7,45	80	73,70	7,4	74	67,98	
	0,06	7,54	82	77,89	7,5	76	82,59	
	0,08	7,6	80	85,51	7,54	74	84,88	
	0,1	7,72	74	88,89	7,64	68	93,95	
	0,2	7,74	70	88,70	7,69	64	71,41	

Suivant nos résultats de l'élimination de la turbidité nous remarquons que :

- Globalement l'élimination de la turbidité des eaux résiduaires testées aussi bien par le sulfate d'aluminium que par le chlorure ferrique augmente jusqu'à pH=8 puis elle se diminue, le taux d'abattement varie entre **97 à 99%** et de **75,14 et 98,35%** et arrivent jusqu'à **99,38%** à pH=8 par le chlorure ferrique respectivement pour les eaux résiduaires du laboratoire LARHYSS et les eaux de la peinture.
- l'élimination de la turbidité par le CAP aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique est préjudiciable dans les eaux de peinture. Les rendements oscillent entre **84,24%** et **95,91%**. Alors que, pour les eaux du laboratoire LARHYSS, le cap a bien influencé l'élimination de la turbidité en présence du sulfate d'aluminium où le rendement optimal arrivait à **98,73%**. Tandis qu'en présence du chlorure, le cap n'a marqué aucune efficacité sur l'élimination de la turbidité.
- L'ajout de la chaux augmente les rendements de la réduction de la turbidité. Toutes les valeurs obtenues dans la présence des deux coagulants avec des différentes quantités de la chaux sont supérieures strictement à celles obtenues lors du traitement en utilisant les coagulants seuls pour les deux échantillons étudiés ;
- Le polymère a un effet promoteur sur la réduction de la turbidité. L'augmentation de leurs doses, augmente l'efficacité de la réduction.

### IV.3. Conclusion

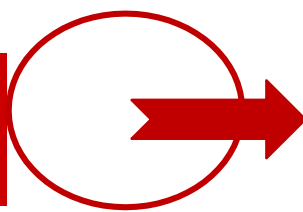
Le présent chapitre nous a permis d'évaluer l'influence de la coagulation par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique et les adjuvants sur le traitement de deux types d'eaux usées colorées. Les principales conclusions obtenues d'après l'analyse des résultats trouvés dans ce chapitre de travail sont les suivants :

- Les rendements de la décoloration des eaux résiduaires testés est remarquable, ils dépassent les **50%** aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique. Dans notre cas, le chlorure ferrique présente une priorité de la décoloration en comparaison avec le sulfate d'aluminium.
- Le pH optimal du traitement oscille entre l'acidité, la basicité (2, 4, 6 et 10) aussi bien pour le chlorure ferrique que pour le sulfate d'aluminium.
- La variation du pH des milieux a eu un effet promoteur sur la réduction de la DCO.
- L'ajout des adjuvants tels que le CAP, la chaux et le polymère améliore l'élimination du RC, VB, MV présents dans les eaux résiduaires testées, la décoloration de ces

mêmes eaux ainsi que la DCO. Mais, la chaux est devenue prioritaire dans l'élimination en comparaison avec les adjuvants testés.

- Ces adjuvants sont accompagnés par un très bon abattement de la turbidité dans la plupart des échantillons étudiés.

# *Conclusion générale*



## Conclusion générale

---

Depuis plus d'un siècle, les industries en développement basent sur l'amélioration de la qualité et la diversité de leurs produits. Ces dernières sont généralement assurées par l'ajout de certains produits chimiques tels que les colorants et leurs fixateurs dans les industries de la tannerie, la papeterie, produits pharmaceutique et plus particulièrement l'industrie textile qui consomme les colorants de type synthétique. Cependant, ces derniers sont considérés parmi les principales sources de la pollution environnementale et une menace réelle à cause de leur caractère toxique vis-à-vis la santé humaine et l'écosystème. De ce fait, ces types d'effluents industriels chargés nécessitent un traitement approprié avant qu'ils soient déversés dans le milieu récepteur.

La présente recherche fait partie d'un axe de recherche au laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface (**LARHYSS**) université de Biskra dont le but est d'améliorer le traitement des eaux à base des colorants. D'après des recherches et des consultations des travaux qui ont été déjà entamés dans ce secteur, il est semblé que la technique coagulation-floculation a approuvé aussi son efficacité de traitement des eaux potables et résiduaires, sachant que les sels d'aluminium et de fer sont les coagulants les plus utilisés à cause de leur efficacité, disponibilité et leur abordable coût en comparaison avec d'autres produits ou même d'autres techniques (installations).

Dans ce contexte, la présente thèse avait pour but d'étudier les performances du procédé de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique lors de l'élimination des colorants des solutions synthétiques individuelles et binaires. Ainsi que deux types d'eaux résiduaires ayant pour but l'application du processus. Différents paramètres réactionnels ayant une influence sur la coagulation-floculation ont été également étudiés.

Pour atteindre l'objectif de ce travail, cette thèse s'est présentée par deux grandes parties. La première partie a été effectuée à une synthèse bibliographique sur des généralités sur les colorants et sur le processus de la coagulation-floculation, et d'une deuxième partie qui a été consacrée pour la présentation des méthodes suivies, de matériel exploité durant toutes les étapes de notre travail et notamment pour exposer, discuter et interpréter les résultats expérimentaux obtenus.

**La première partie** est une synthèse bibliographique consistait à présenter d'une part, les caractéristiques des colorants et leurs principales catégories de classification ainsi que, les effets néfastes qu'ils peuvent engendrer sur la santé humaine comme sur les écosystèmes et le milieu récepteur. De même, nous avons également présenté les différents procédés possibles



à appliquer pour éliminer les polluants mettent en question. D'autre part, une description détaillée du procédé choisit (coagulation-floculation) dont nous y avons présenté les principes de la coagulation et de la floculation, les principaux paramètres liés au procédé et qui peuvent l'influencer. Nous avons également donné un aperçu sur les principaux travaux réalisés par certains chercheurs.

**La deuxième partie** a été pour présenter la partie expérimentale structurée en Quatre chapitres. Un premier qui s'est axé sur la méthodologie expérimentale alors que les trois autres ont été consacrés à la présentation et l'interprétation des résultats que nous avons obtenus d'après la réalisation d'un nombre d'essais dans le cadre du plan de la présente étude. Sachant que ces derniers ont été effectués sur des solutions synthétiques des systèmes individuels et binaires d'une part, et sur des eaux résiduaires (eaux usées colorées) d'autre part.

A travers les résultats que nous avons obtenu au cours de nos essais, il a été possible d'aboutir à ces principales observations et conclusions :

1. En eau distillée et dans le système individuelle, les résultats de la coagulation-floculation du RC, MV et VB, nous amènent à remarquer clairement que les rendements d'élimination de chaque colorant augmentent avec l'augmentation de la dose du coagulant aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique jusqu'à atteindre une valeur maximale, puis une diminution plus au moins importante est apparue et/ou l'augmentation redevient lente. De ce fait, l'ordre de l'élimination des colorants testés est comme suit :

Pour le sulfate d'aluminium

**Rendement<sub>RC</sub>(97.24%) > Rendement<sub>VB</sub>(57.39%)>Rendement<sub>MV</sub>(32.45%)**

Pour celui du chlorure ferrique

**Rendement<sub>RC</sub>(99.71%)> Rendement<sub>VB</sub>(86.36%)> Rendement<sub>MV</sub>(24.66%)**

Selon ces résultats, nous avons pu enregistrer que, le Rouge Congo (colorant azoïque) est prioritaire dans leur élimination aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique.

En ce qui concerne, l'effet de la variation de la teneur initiale des colorants testés les résultats enregistreraient une augmentation dans le taux d'abattement des colorants avec

l'augmentation de la teneur jusqu'à un optimum qui diffère d'un colorant à un autre puis une diminution et/ou stabilité est apparue aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique.

Le pH optimal du traitement a indiqué aussi bien pour le sulfate d'aluminium que celui de chlorure ferrique que :

- Le MV l'élimination maximale est obtenue à pH acide (pH = 2) et basiques (pH = 10).
  - Le VB a eu un taux d'abattement important aux pH égal à 8 et 10.
  - Parallèlement aux VB et MV, les meilleures performances en termes d'élimination de la couleur pour le RC ont été atteintes à des pH compris entre 4 et 6.
- ❖ L'ajout des adjuvants de la coagulation-floculation a amélioré l'efficacité. Ce qui fait de comprendre que le type d'adjuvant et leur réaction avec le colorant en présence du coagulant ont un effet positif sur l'efficacité d'élimination et le taux de traitement ;
- ❖ Cependant, l'ajout de sels minéraux provoque une diminution dans les rendements d'élimination des colorants testés proportionnel à l'augmentation de la force ionique. Pour expliquer cette diminution, on a pu noter d'une part que, l'effet inhibiteur des anions (Cl<sup>-</sup>) dans le milieu réactionnel prend de l'importance. D'autre part que, l'inhibition est remarquable pour le RC (anionique) en comparaison avec le VB et MV qui sont des colorants cationiques, aussi bien pour le sulfate d'aluminium que pour le chlorure ferrique.
- ❖ La différence des rendements obtenus dans chaque milieu en présence du même coagulant a été confirmée par le fait que l'efficacité d'élimination des colorants dépend principalement de leurs caractéristiques chimiques et de la réaction créée entre le colorant, le coagulant et d'autres produits s'ils existent.

2. Dans le système binaire avec un rapport massique (1:1), l'efficacité d'élimination des colorants est moins importante que celui du système simple et /ou individuel. De même, nous avons pu marquer que la dose optimale du coagulant (SA) varie d'un mélange de deux colorants à un autre. Ce que nous avons expliqué que, la nature du colorant dans le mélange à savoir son état dissous ainsi que sa masse moléculaire et dimensions influent probablement sur le mécanisme de la coagulation et donc sur le pourcentage de la décoloration.

## Conclusion générale

---

Dans ce système le pH optimal du traitement est obtenu pour les milieux acides dont les pH allant de 2 à 4 et pour des pH proche de la neutralité (pH entre 5.3 (pH du milieu) et 6). Il est important de marquer que la variation du pH a enregistré une diminution dans les rendements d'élimination du RC et le VB dans leur systèmes de combinaison. Par contre MV a subi une amélioration allant de 5.54% avec le VB à 65.08% en présence du RC. Ce qui indique que l'effet inhibiteur et/ou promoteur pourra être apparu avec les colorants

La teneur initiale des colorants a un effet sur l'élimination d'un colorant en présence de l'autre, où nous avons marqué que l'évolution d'élimination du même colorant est différente d'un système à un autre. Ces résultats nous ont permis de conclure que l'efficacité d'élimination dépend de plusieurs facteurs comme le type et la structure de colorant, sa charge, son poids volumique et la présence d'un autre colorant qui peut jouer un rôle promoteur ou inhibiteur sur l'élimination.

La modélisation des résultats de chaque deux facteurs par le logiciel RSM nous a permis de mieux comprendre les interactions créées entre les paramètres réactionnels étudiés. Tandis que, l'optimisation des résultats nous a menés à prendre une idée sur les rendements maximaux pourrait obtenir dans les systèmes étudiés tout en basant sur les suggestions proposés par le même logiciel. L'application de ce logiciel, nous a permis de confirmer l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus dans le système binaire. À l'exception le RC avec le MV dans le cas de l'effet des facteurs de la teneur initiale et de pH sur l'élimination des colorants testés, les résultats du logiciel ne concordent pas avec les résultats expérimentaux obtenus.

3. L'application du procédé de la coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium et le chlorure ferrique aux deux types d'eaux résiduaires a abouti aux résultats suivants :
  - ❖ Les rendements d'élimination des trois colorants (MV, RC et VB) dans les eaux usées étudiés sont supérieurs à ceux de la décoloration des échantillons à leurs longueurs d'onde où l'efficacité de la décoloration est comprise (52 et 72 %), ces résultats sont peut-être à cause de la composition entre les éléments composants des eaux ;
  - ❖ Le pH initial influence le traitement des rejets colorés sachant que les rendements d'élimination ont été entre 60 et 70 % ;
  - ❖ L'ajout des adjuvants aux doses optimales des coagulants améliore l'efficacité du traitement des eaux étudiées, les rendements obtenus ont été entre 70 et 99 % mais il faut signaler que, malgré l'efficacité d'élimination observé lors de l'ajout de la chaux,

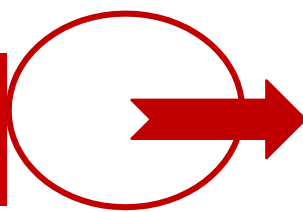
## Conclusion générale

---

ce dernier à un résultat indésirable sur le traitement par l'augmentation des pH<sub>f</sub> qui ont arrivé jusqu'à 12 par une quantité de 2 g/L ;

- ❖ La réduction de la DCO et l'élimination de la turbidité étaient importantes avec des pourcentages plus ou moins différent, l'efficacité dépend des paramètres testés, du type de coagulant et notamment de la composition des eaux usées traitées.

# *Références bibliographiques*



## *Références bibliographique*

**Aboelfetoh, E.F. El-Shenody, R.A. Ghobara, M.M. (2017)**, Eco-friendly synthesis of silver nanoparticles using green algae (*Caulerpa serrulata*): reaction optimization, catalytic and antibacterial activities. *Environ. Monit. Assess* 189, 349.

**Aboulhassan, M.A. Souabi, S. Yaacoubi, A. Baudu, M. (2006)**, Improvement of paint effluents coagulation using natural and synthetic coagulant aids. *Journal of hazardous materials* 138 (1) 40-45.

**Achak, M. Ouazzani, N. Yaacoubi, A. Mandi, L. (2008)**, Caractérisation des margines issues d'une huilerie moderne et essais de leur traitement par coagulation-floculation par la chaux et le sulfate d'aluminium. *Revue des sciences de l'eau/Journal of Water Science* 21(1) 53-67.

**Achour, S. Guergazi, S. (2001)**, Incidence de la minéralisation des eaux algériennes sur la réactivité de composés organiques vis-à-vis du chlore Incidence of mineralization of algerian waters on reactivity of organic compounds towards chlorine.

**Achour, S. Guesbaya, N. (2005)**, Coagulation-floculation par le sulfate d'aluminium de composés organiques phénoliques et de substances humiques. *LARHYSS Journal P-ISSN 1112-3680/E-ISSN 2521-9782* (4).

**Afoufou, F. (2023)**, Effet de la minéralisation des eaux naturelles sur l'élimination de composés organiques et métalliques par coagulation-floculation. Thèse de Doctorat en Sciences Hydraulique, Université de Biskra (Algérie).

**Al-Degs, Y. Khraisheh, M.A.M. Allen, S.J. Ahmad, M.N. Walker, G.M. (2007)**, Competitive adsorption of reactive dyes from solution: Equilibrium isotherm studies in single and multisolute systems. *Chemical Engineering Journal* 128 (2-3) 163-167.

**Al-Degs, Y. S. El-Barghouthi, M. I. El-Sheikh, A. H. Walker, G. M. (2008)**, Effect of solution pH, ionic strength, and temperature on adsorption behavior of reactive dyes on activated carbon. *Dyes and pigments* 77 (1) 16-23.

Algérie.

**Allen, S.J. McKay, G. Khader, K.Y.H. (1989)**, Equilibrium adsorption isotherms for basic dyes onto lignite. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology* 45 (4) 291-302.

**Amimeur, D. (2018)**, Contribution à l'étude de l'élimination du plomb par coagulation floculatit par adsorption sur charbon actif. Effet de la minéralisation et des paramètres réactionnels. Thèse de doctorat, Université de biskra, Algérie.

**Amirtharajah, A. Dennett, K. E. Studstill, A. (1993)**, Ferric chloride coagulation for removal of dissolved organic matter and trihalomethane precursors. *Water Science and Technology* 27(11) 113-121.

**Amirtharajah, A. et Mills, K. M. (1982)**, Rapid-mix design for mechanisms of alum coagulation. *Journal-American Water Works Association* 74(4) 210-216.

**Amokrane, A. Comel, C. Veron, J. (1997)**, Landfill leachates pretreatment by coagulation-flocculation. *Water research* 31 (11) 2775-2782.

**Amourache-Benazzouz, M. (2019)**, Etude de l'élimination du bleu de méthylène et de composés organiques toxiques à partir de solutions aqueuses par un biosorbant non conventionnel, *Claviceps purpurea* hébergé par *Elytrigia repens* L: Implications sur la dépollution de l'eau et cas d'études. Thèse de doctorat, Université de Guelma, Algérie.

**Amran, M. B. Zulfikar, M. A. (2010)**, Removal of Congo Red dye by adsorption onto phyrophyllite. *International journal of environmental studies* 67 (6) 911-921.

**Anirudhan, T. S. Ramachandran, M. (2015)**, Adsorptive removal of basic dyes from aqueous solutions by surfactant modified bentonite clay (organoclay): kinetic and competitive adsorption isotherm. *Process Safety and Environmental Protection* 95, 215-225.

**Asadollahfardi, G. Zangoeei, H. Motamedi, V. Davoodi, M. (2018)**, Selection of coagulant using jar test and analytic hierarchy process: A case study of Mazandaran textile wastewater. *Advances in environmental research* 7(1) 1-11.

**Assadi, A. Nateghi, R. Bonyadinejad, G. R. Amin, M. M. (2013)**, Application of coagulation process reactive blue 19 dye removal from textile industry wastewater. *International Journal of Environmental Health Engineering* 2 (1) 5.

**Attouti, S. (2013)**, Activation de deux algues méditerranéennes par divers méthodes pour l'élimination de colorants. Thèse de doctorat. Université Mostaganem, Algérie.

**Aziz, H. A. Alias, S. Assari, F. Adlan, M. N. (2007)**, The use of alum, ferric chloride and ferrous sulphate as coagulants in removing suspended solids, colour and COD from semi-aerobic landfill leachate at controlled pH. *Waste Management & Research* 25 (6) 556-565.

**Babcock, D. B. et Singer, P. C. (1979)**, Chlorination and coagulation of humic and fulvic acids. *Journal-American Water Works Association* 71 (3) 149-152.

**Bafana, A. Jain, M. Agrawal, G. Chakrabarti, T. (2009)**, Bacterial reduction in genotoxicity of Direct Red 28 dye. *Chemosphere* 74(10) 1404-1406.

**Barclay, S. Buckley, C. (2000)**, Water Research commission, Volume 1.

**Barka, N. (2008)**, L'élimination des colorants de synthèse par adsorption sur un phosphate naturel et par dégradation photocatalytique sur TiO<sub>2</sub> supporté. Thèse de Doctorat, Université Ibn Zohr, Maroc.

**Bayramoglu, M. Eyvaz, M. and Kobya, M. (2007)**, Treatment of the textile wastewater by electrocoagulation: economical evaluation. *Chemical Engineering Journal* 128, 155–161.

**Beaudry, J.P. (1984)**, Traitement des eaux, Ed. Le Griffon d'argile INC, Canada P27-41.

**Belhadj, H. (2011)**, Dégradation photochimique du rose de Bengale (Colorant Xanthénique) par différents procédés d'oxydation avancée et sur des supports inorganiques chromophores en solution aqueuse. Mémoire de Magister, Université de Constantine, Algérie.

**Beltrán-Heredia, J. Sánchez Martín, J. (2008)**, Azo dye removal by Moringa oleifera seed extract coagulation. *Coloration Technology* 124 (5) 310-317.

**Ben Mansour, H. B. Boughzala, O. Dridi, D. Barillier, D. Chekir-Ghedira, L. Mosrati, R. (2011)**, Les colorants textiles sources de contamination de l'eau: CRIBLAGE de la toxicité et des méthodes de traitement. *Revue des sciences de l'eau* 24 (3) 209-238.

**Benaissa, A. (2011)**, Etude de la dégradation photocatalytique d'un colorant synthétique et d'un tensioactif. Thèse de doctorat. Université de Constantine, Algérie.

**Benammar, H.S. Guergazi, S. Youcef, S. Youcef, L. (2021)**, Removal of Congo red and Naphthol blue black dyes from aqueous solution by adsorption on activated carbon. Characterization, kinetic and equilibrium in nonlinear models studies. *Desalination and water treatment* 221, 396-405.

**Benamraoui, F. (2014)**, Elimination des colorants cationiques par des charbons actifs synthétisés à partir des résidus de l'agriculture. Mémoire de Magister, Université de Sétif, Algérie.



**Bendou, S. (2009)**, Utilisation des argiles traitées pour la décoloration de bains de teintures. Mémoire de Magister, Université de Boumerdès, Algérie.

**Benhabiles, S. Rida, K. (2021)**, Production of efficient activated carbon from sawdust for the removal of dyes in single and binary systems—a full factorial design. *Part.Sci.Technol* 39, 237-251.

**Benhamouda, K. (2017)**, Dégradation photochimique des colorants cationiques sur des supports inorganiques chromophores en solution aqueuse. Thèse de doctorat, Université de Constantine, Algérie.

**Benidris, E. B. Ghezzar, M. R. Ma, A. Ouddane, B. Addou, A. (2017)**, Water purification by a new hybrid plasma-sensitization-coagulation process. *Separation and Purification Technology* 178, 253-260.

**Benomara, A. Guenfoud, F. Mokhtari, M. Boudjemaa, A. (2021)**, Sonolytic sonocatalytic and sonophotocatalytic degradation of a methyl violet 2B using iron-based catalyst. *Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis*, 132(1) 513-528.

**Bensadok, K. (2007)**, Procédés de traitement d'émulsions huile/eau et eau/huile cas particulier d'émulsions d'huile de coupe. Thèse de Doctorat, Université de Houari Boumediene-Alger, Algérie.

**Bentahar, Y. (2016)**, Caractérisation physico-chimique des argiles marocaines : application à l'adsorption de l'arsenic et des colorants cationiques en solution aqueuse. Thèse de doctorat, Université de Nice- Université de tetouan, France-Maroc.

**Bentahar, Y. Hurel, C. Draoui, K. Khairoun, S. Marmier, N. (2021)**, Removal of methyl violet by Moroccan clays: kinetics study and equilibrium mechanism. *Chemical Engineering Communications* 1-19.

**Berne, F. et Cordonnier, J. (1991)**, Traitement des eaux. Édition TECHNIP Paris.

**Bes-Piá, A. Iborra-Clar, M. I. Iborra-Clar, A. Mendoza-Roca, J. A. Cuartas-Urbe, B. Alcaina-Miranda, M. I. (2005)**, Nanofiltration of textile industry wastewater using a physicochemical process as a pre-treatment. *Desalination* 178 (1-3) 343-349.

**Bessaha, H. (2017)**, Synthèse, caractérisations et applications d'argiles anioniques du type hydrotalcite à la dépollution des eaux. Thèse de doctorat, Université de Mostaganem, Algérie.

**Betiku, E.Odude, V.O. Ishola, N.B. Bamimore, A. Osunleke, A.S. Okeleye, A.A. (2016)**, Predictive capability evaluation of RSM, ANFIS and ANN: a case of reduction of high free fatty acid of palm kernel oil via esterification process. *Energy conversion and management* 124, 219-230.

**Bisht, V. Lal, B. (2019)**, Exploration of performance kinetics and mechanism of action of a potential novel bioflocculant bf-vb2 on clay and dye wastewater flocculation. *J. Front. Microbiol* 10-1288.

**Borchate, S. S. Kulkarni, G. S. Kore, S. V. Kore, V. S. (2012)**, Application of coagulation flocculation for vegetable tannery wastewater. *International journal of engineering science and technology* 4 (5) 1944-1948.

**Bottero, J. Y. Lartiges, B. (1993)**, Séparation liquide/solide par coagulation-floculation: les coagulants-floculants, mécanismes d'agrégation, structure et densité des floes./Liquid/solid separation by coagulation-flocculation, coagulants-flocculants, floes structure and density. *Sciences Géologiques. bulletins et mémoires* 46 (1) 163-174.

**Bouanimba, N. (2014)**, Etude comparative de la dégradation photochimique et corrélation entre l'adsorption et l'activité photocatalytique de TiO<sub>2</sub>. Thèse de doctorat, Université de Constantine, Algérie.

**Bouchahm, N. Hecini, L. Kherifi, W. (2016)**, Adoucissement des eaux souterraines de la région orientale du Sahara septentrional algérien: cas de la région de Biskra. *Revue des sciences de l'eau* 29 (1) 37-48.

**Bougueria, H. (2007)**, Essais de synthèse et de caractérisation de substances tinctoriales. Mémoire de Magister, Université de Constantine, Algérie.

**Bousnoubra, I. (2017)**, Contribution à l'élimination de colorants (Vert de méthyle et Bromocrésol pourpre) par procédés photochimiques en phase homogène (séparés et mélangés), en phase hétérogène en milieu aqueux et par adsorption (Vert de méthyle) sur ZnO. Thèse de doctorat. Université de Constantine, Algérie.

**Breig, S. J. M. Luti, K. J. K. (2021)**, Response surface methodology: A review on its applications and challenges in microbial cultures. *Materials Today: Proceedings*, 42, 2277-2284.

- Buffle, J. Wilkinson, K. J. Stoll, S. Filella, M. Zhang, J. (1998)**, A generalized description of aquatic colloidal interactions: the three-colloidal component approach. *Environmental Science & Technology*, 32 (19) 2887-2899.
- Butani, S. A. Mane, S. J. (2017)**, Coagulation/flocculation process for cationic, anionic dye removal using water treatment residuals—a review. *Int. J. Sci. Technol. Mange* 6, 121-125.
- Butt, M.T. Arif, F. Shafique, T. Imtiaz, N. (2005)**, Spectrophotometric estimation of colour in textile dyeing wastewater. *Journal of Chemical Society of Pakistan* 27 627–630.
- Caldera-Villalobos, M, Peláez-Cid, A.A, Martins-Alho, M.A, Herrera-González, A.M. (2018)**, Removal of textile dyes in wastewater using polyelectrolytes containing tetrazole groups. *Korean Journal of Chemical Engineering* 35, 2394-2402.
- Can, O.T. Kobya, M. Demirbas, E. and Bayramoglu, M. (2006)**, Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation, *Chemosphere*, 62, 181–187.
- Cardot, C. (1999)**, Les traitements de l'eau. Procédés physico chimiques et biologiques cours et problèmes résolus. Ellipses Edition Marketing SA.
- Carvalho, G. Delée, W. Novais, J.M. Pinheiro, H.M. (2002)**, A factorially-designed study of physicochemical reactive dye colour removal from simulated cotton textile processing wastewaters. *Coloration technology* 118 (5) 215-219.
- Chenna, M. Messaoudi, K. Drouiche, N. Lounici, H. (2016)**, Study and modeling of the organophosphorus compound degradation by photolysis of hydrogen peroxide in aqueous media by using experimental response surface design. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 33, 307-315.
- Chetioui, S. (2010)**, Structures et propriétés physico-chimiques de substances colorantes de synthèse. Mémoire de Magister, Université de Constantine Algérie.
- Chow, W.M. (1992)**, Behaviour of aluminium and its ecological significance in natural waters, *Water Supply*, 10(4) 1-1
- Choy, S. Y. Prasad, K. M. N. Wu, T. Y. Ramanan, R. N. (2015)**, A review on common vegetables and legumes as promising plant-based natural coagulants in water clarification. *International journal of environmental science and technology* 12 (1) 367-390.

**Christie, R. (2001)**, colourchemistry, the royal society of chemistry, Cambridge United Kingdom.

**Dahri, M. KM. Kooh, R. R. Lim, L.B. (2016)**, Adsorption of toxic methyl violet 2B dye from aqueous solution using *Artocarpus heterophyllus* (Jackfruit) seed as an adsorbent, *Am Chem Sci* J15 (2) 1-12.

**Dahri, M.K. Lim, L.B. Mei, C.C. (2015)**, Cempedak durian as a potential biosorbent for the removal of Brilliant Green dye from aqueous solution: equilibrium. Thermodynamics and kinetics studies. *Environmental Monitoring and Assessment* 187(8) 1-13.

**Dalvand, A. Ehrampoush, M.H. Ghaneian, M.T. Mokhtari, M. Ebrahimi, A.A. MalekAhmadi, R. Mahvi, A.H. (2017)**, Application of chemical coagulation process for direct dye removal from textile wastewater. *Journal of Environmental Health and Sustainable Development* 2(3) 333-339.

**Danis, T.G. Albanis, T.A. Petrakis, D.E. Pomonis, P.J. (1998)**, Removal of chlorinated phenols from aqueous solutions by adsorption on alumina pillared clays and mesoporous alumina aluminum phosphates. *Water research* 32(2) 295-302.

**De Farias Silva, C.E. da Gama, B.M.V. da Silva Gonçalves, A.H. Medeiros, J.A. de Souza Abud, A.K. (2019)**, Basic-dye adsorption in albedo residue: Effect of pH, contact time, temperature, dye concentration, biomass dosage, rotation and ionic strength. *Journal of King Saud University-Engineering Sciences* 32(6) 351-359.

**Debnath, A. Thapa, R. Chattopadhyay, K.K. Saha, B.(2015)**, Spectroscopic studies on interaction of Congo red with ferric chloride in aqueous medium for wastewater treatment. *Separation Science and Technology* 50(11) 1684-1688.

**Degano, I. Ribechini, E. Modugno, F. Colombini, M. P. (2009)**, Analytical methods for the characterization of organic dyes in artworks and in historical textiles. *Applied Spectroscopy Reviews*, 44(5) 363-410.

**Degrément, SA. (1989)**, Lavoisier, Vol 1, 9ème édition, Paris, France.

**Degrément, SA. (2005)**, Mémento technique de l'eau, Vol 2, 10ème édition Paris, France.

**Dentel, S. K. (1991)**, Coagulant control in water treatment. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 21(1) 41-135.

**Derafa, G. (2018)**, Synthèse et caractérisation de montmorillonite modifiée: application à l'adsorption des colorants cationiques (Doctoral dissertation).

**Desjardins, C. (1999)**, Simulation et étude en laboratoire de la floculation lestée (ACTIFLO®) à l'aide d'une procédure modifiée de jar test. École Polytechnique de Montréal, Canada.

**Desjardins, R. (1997)**, le traitement des eaux. Édition de l'école polytechnique de Montréal, Canada.

**Dihang, M. D. (2007)**, Mécanisme de coagulation et de floculation de suspensions d'argiles diluées rencontrées en traitement des eaux. Thèse de doctorat, Université de Toulouse, Université Toulouse III-Paul Sabatier, France.

**Djelal, H. Rigail, M, Boyer, L. (2008)**, Les effluents industriels et leur traitement. Management & Avenir 275-288.

**Dogan, M. Alkan, M. (2003)**, Adsorption kinetics of methyl violet onto perlite. Chemosphere 50(4) 517-528.

**Dos Santos, A.B. Cervantes, F.J. et Van Lier, J.B. (2007)**, Review paper on current technologies for decolourisation of textile wastewaters: perspectives for anaerobicbiotechnology. Bioresourcetechnology 98 (12) 2369-2385.

**Duan, J.Gregory, J. (2003)**, Coagulation by hydrolysing metal salts. Advances in colloid and interface science 100, 475-502.

**El Kassimi, A. Boutouil, A. El Himri, M. Laamari, M.R. El Haddad, M. (2020)**, Selective and competitive removal of three basic dyes from single, binary and ternary systems in aqueous solutions: A combined experimental and theoretical study. Journal of Saudi Chemical Society 24 (7) 527-544.

**El Messaoudi, N. El Khomri, M. Dbik, A. Bentahar, S. Lacherai, A. (2017)**, Selective and competitive removal of dyes from binary and ternary systems in aqueous solutions by pretreated jujube shell (*Zizyphus lotus*). Journal of Dispersion Science and Technology 38(8) 1168-1174.

**El-Gohary F, Tawfik A (2009)**, Decolorization and COD reduction of disperse and reactive dyes wastewater using chemical-coagulation followed by sequential batch reactor (SBR) process. Desalination 249, 1159-1164.

**Elhalil, A. Tounsadi, H. Elmoubarki, R. Mahjoubi, F. Z. Farnane, M. Sadiq, Abdennouri M. Qourzal S. Barka, N. (2016)**, Factorial experimental design for the optimization of catalytic degradation of malachite green dye in aqueous solution by Fenton process. *Water Resources and Industry* 15, 41-48.

**Elsamrani, A. (2003)**, Traitement des eaux pluviales par coagulation-floculation: spéciation des éléments traces, influence des anions complexants, et recherche sur le devenir des boues à partir du système de silice-phosphate-FeCl<sub>3</sub>. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.

**Errais, E. (2011)**, Réactivité de surface d'argiles naturelles: Etude de l'adsorption de colorants anioniques. Thèse de doctorat, Strasbourg, France.

**Farajnezhad, H. Gharbani, P. (2012)**, Coagulation treatment of wastewater in petroleum industry using poly aluminum chloride and ferric chloride. *International Journal of Research and Reviews in Applied Sciences* 13 (1) 306-310.

**Farhan, A. A. R. (2019)**, Evaluation of a number of coagulants and coagulation aids in removing water turbidity. In *IOP conference series: materials science and engineering* 6 (518) 062016 IOP Publishing.

**Fassi, S. (2016)**, Elimination de deux colorants (Vert de Bromocrésol et Rouge de Crésol) de structure semblable, par des techniques photochimiques et sonochimiques en milieu aqueux homogène et hétérogène. Thèse de doctorat. Université de Constantine, Algérie.

**Ferreira, E. S. Hulme, A. N. McNab, H. Quye, A. (2004)**, The natural constituents of historical textile dyes. *Chemical Society Reviews* 33 (6) 329-336.

**Ferro-Garcia, M.A. Rivera-Utrilla, J. Bantista-Teled, I. Moreno-Castilla, A.C. (1998)**, *Langmuir* 14 1880-1886.

**Fidele, M. K. (2020)**, Conception d'une station expérimentale de traitement des eaux usées par filtres plantés des macrophytes: Cas de l'Université Kimpa Vita d'Uíge/Angla, Doctoral dissertation, Université Côte d'Azur.

**Forgacs, E. Cserháti, T. Oros, G. (2004)**, Removal of synthetic dyes from wastewaters: a review. *Environment international*, 30(7) 953-971.

**Francois, R. J. Bekaert, N. V. (1986)**, Influence of mixing parameters and water quality on the flocculation of kaolinite with aluminium sulphate. In *Studies in Environmental Science* 29, 273-296.

**Frederique, S. (2008)**, Laine et Colorants : fixation, quantification et vieillissement. Etude par spectrométrie Raman. Thèse de doctorat, Université de Pierre et Marie Curie, France.

**Fu, J. Xin, Q. Wu, X. Chen, Z. Yan, Y. Liu, S. wang, M. Xu, Q. (2016)**, Selective adsorption and separation of organic dyes from aqueous solution on polydopamine microspheres. *Journal of colloid and interface science* 461, 292-304.

**Gadekar, M. R. Ahammed, M. M. (2016)**, Coagulation/flocculation process for dye removal using water treatment residuals: modelling through artificial neural networks. *Desalination and Water Treatment* 57 (55) 26392-26400.

**Ganesh, R. Boardman, G. D. Michelsen, D. (1994)**, Fate of azo dyes in sludges. *Water Research* 28(6) 1367-1376.

**Gao, B. Y. Wang, Y. Yue, Q. Y. Wei, J. C. Li, Q. (2007)**, Color removal from simulated dye water and actual textile wastewater using a composite coagulant prepared by polyferric chloride and polydimethyldiallylammonium chloride. *Separation and Purification Technology* 54 (2) 157-163.

**Gaydardzhiev, S. Karthikeyan, J. Ay,P. (2006)**, Colour removal from model solutions by coagulation surface charge and floc characterisation aspects. *Environmental Technology* 27 193–199.

**Gemeay, A.H, Aboelfetoh, E.F, El-Sharkawy, R.G (2018)**, Immobilization of green synthesized silver nanoparticles onto amino-functionalized silica and their application for indigo carmine dye removal. *Water, Air, Soil Pollution* 229, 16.

**Georgiou, D. Aivazidis, A. Hatiras, J. Gimouhopoulos, K. (2003)**, Treatment of cotton textile wastewater using lime and ferrous sulfate. *Water Research* 37 (9) 2248-2250.

**German-Heins, J. Flury, M. (2000)**, Sorption of Brilliant Blue FCF in soils as affected by pH and ionic strength. *Geoderma* 97 (1-2) 87-101.

**Ghaedi, M. Hossainian, H. Montazerzohori, M. Shokrollahi, A. Shojaipour, F. Soylak, M. U. S. T. A. F. A. Purkait, M. K. (2011)**, A novel acorn based adsorbent for the removal of brilliant green. *Desalination* 281 226-233.

**Ghafari, S. Aziz, H. A. Isa, M. H. Zinatizadeh, A. A. (2009)**, Application of response surface methodology (RSM) to optimize coagulation–flocculation treatment of leachate using poly-aluminum chloride (PAC) and alum. *Journal of hazardous materials* 163 (2-3) 650-656.

**Ghernaout, B. Ghernaout, D. Saiba, A. (2010)**, Algae and cyanotoxins removal by coagulation/flocculation: a review. *Desalination and Water Treatment* 20 133–143.

**Ghernaout, D. Ghernaout, B. Saiba, A. Boucherit, A. Kellil, A. (2009)**, Removal of humic acids by continuous electromagnetic treatment followed by electrocoagulation in batch using aluminium electrodes. *Desalination* 239 (1-3) 295-308.

**Ghernaout, D. Laribi, C. Alghamdi, A. Ghernaout, B. Ait Messaoudene, N. Aichouni, M. (2018)**, Decolorization of BF Cibacete Blue (CB) and Red Solophenyle 3BL (RS) using aluminum sulfate and ferric chloride. *World Journal of Applied Chemistry* 3 32-40.

**Gouarir, B. (2017)**, Elimination d'un colorant par adsorption sur support solide et par procédés photochimiques en milieu aqueux. Mémoire de Magister, Université de Constantine, Algérie.

**Goudjil, S. Guergazi, S. Masmoudi, T. Achour, S. (2021)**, Effect of reactional parameters on the elimination of Congo Red by the combination of coagulation–flocculation with aluminum sulfate. *Desalination and Water Treatment* 209 429-436.

**Greenland D.J. (1971)**, Interactions between humic and fulvic acids and clays. *Soil Science* 111 (1) 34-41.

**Guendouz, S. (2015)**, Biosorption des colorants textiles, Ecarlate Solophényl BNLE et Vert Cibacron par la biomasse sèche de lentilles d'eau. Thèse de doctorat, Université d'Annaba Algérie.

**Guibai, L. Gregory, J. (1991)**, Flocculation and sedimentation of high-turbidity waters. *Water research* 25(9) 1137-1143.

**Guibal, E. Roussy, J. (2007)**, Coagulation and flocculation of dye-containing solutions using a biopolymer (Chitosan). *Reactive and functional polymers*. 67(1) 33-42.

**Guivarch, E.Z. (2004)**, Traitement des polluants organiques en milieu aqueux par procédé électrochimique d'oxydation avancée (Electro-Fenton). Application à la minéralisation des colorants synthétiques. Thèse de doctorat, Université de Mame-La-Valée France.



**Gupta, V.K. Suhas. (2009)**, Application of low-cost adsorbents for dye removal – A review. *Journal of Environmental Management* 90 (8) 2313–2342.

**Hai, F. I. Yamamoto, K. Fukushi, K. (2007)**, Hybrid treatment systems for dye wastewater. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 37(4) 315-377.

**Hammami, S. (2008)**, Étude de dégradation des colorants de textile par les procédés d'oxydation avancée. Application à la dépollution des rejets industriels. Thèse de doctorat. Université de Marne la Vallée France.

**Han, T.S. Yoon, H.H. Kim, B.S. (1998)**, A study on the effect of dye properties on the decolourisation of acid dyes wastewater with coagulants, *Journal of Korean Institute of Chemical Engineers* 36 20–26.

**Han, T.S. Yoon, H.H. Kim, B.S. (1999)**, A study on coagulation and decolourisation of acid dye wastewater containing surfactants. *Journal of Korean Institute of Chemical Engineers* 37 482–493.

**Hanif, M. A. Nadeem, F. Zahid, M. Khan, F. G. Hanif, A. Akhtar, M. N. (2021)**, Applications of coagulation-flocculation and nanotechnology in water treatment. In *Aquananotechnology*, 523-548.

**Hao, O. J. Kim, H. Chiang, P. C. (2000)**, Decolorization of wastewater. *Critical reviews in environmental science and technology* 30(4) 449-505.

**Harrat, N. (2013)**, Elimination de la matière organique naturelle dans une filière conventionnelle de potabilisation d'eaux de surface. Thèse de Doctorat, Université de Biskra,

**Harrelkas. F. (2008)**, Couplage des procédés membranaires aux techniques physico-chimiques ou biologiques pour le traitement des rejets liquides de l'industrie de textile. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine France.

**Hecini L, Achour S. (2010)**, Elimination du pyrogallol et du phloroglucinol par le sulfate d'aluminium et effet de la minéralisation. *Larhyss Journal* 08, 139-148.

**Hecini. L. (2008)**, Effet de la dureté des eaux sur la coagulation-flocculation de composés organiques phénoliques, mémoire de Magister en hydraulique urbaine et aménagement, Université de Biskra, Algérie.

**Hemsas, S. (2008)**, Contribution à l'étude de la décoloration des eaux sur grignons d'olives valorisés (Thèse de doctorat, Boumerdes, Université M'hamed Bougara, Faculté des sciences de l'ingénieur).

**Holt, P. K. Barton, G. W. Wark, M. Mitchel, C. A. (2002)**, A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 211(2-3) 233-248.

**Hoong, H. N. J. et Ismail, N. (2018)**, Removal of dye in wastewater by adsorption-coagulation combined system with Hibiscus sabdariffa as the coagulant. In *MATEC Web of Conferences* (Vol. 152, p. 01008). EDP Sciences.

**Hrakova, E. Vyskocil, V. Barek, J. (2016)**, Interaction study of methyl violet 2B with DNA and voltammetric determination of DNA in aqueous solutions. *Monatshefte für Chemie-Chemical Monthly* 147 (1) 119-126.

**Hu, Y. Guo, T. Ye, X. Li, Q. Guo, M. Liu, H. Wu, Z. (2013)**, Dye adsorption by resins: effect of ionic strength on hydrophobic and electrostatic interactions. *Chemical engineering journal* 228, 392-397.

**Hunter, R. J. Midmore, B. R. Zhang, H. (2001)**, Zeta potential of highly charged thin double-layer systems. *Journal of colloid and interface science* 237 (1) 147-149.

**Ibrahim, Y. Gaya, U. I. (2020)**, Comparative optimization of removal of low levels of Brilliant Green By ZnO photocatalysis and photo-Fenton. *J. Mater. Environ. Sci* 11 (2) 318-332.

**Iqbal, M. Ahmad, M.Z. Bhatti, L.A. Qureshi, K. Khan, A. (2015)**, Cytotoxicity reduction  
**Ishak, S. A. Murshed, M. F. Md Akil, H. Ismail, N. Md Rasib, S. Z. Al-Gheethi, A. A. S. (2020)**, The application of modified natural polymers in toxicant dye compounds wastewater: A review. *Water* 12 (7) 2032.

**Issa Hamoud, H. Finqueneisel, G. Azambre, B. (2017)**, Removal of binary dyes mixtures with opposite and similar charges by adsorption, coagulation/flocculation and catalytic oxidation in the presence of CeO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Fenton-like system. *Journal of environmental management* 195, 195-207.

**Jeckel. M. (1986)**, Interactions of humic acids and aluminumsalts in flocculation process. *Wat. Res.* 20 1535-1542.

**Joo, D.J. Shin, W.S. Choi, H.J. Choi, S.J. Kim, M.C. Han, M.H. Ha, T.W. Kim, Y.H. (2007)**, Decolorization of reactive dyes using inorganic coagulants and synthetic polymer. *Dyes Pigm* 73(1) 59–64.

**Kang, L. S. Cleasby, J. L. (1995)**, Temperature effects on flocculation kinetics using Fe (III) coagulant. *Journal of Environmental Engineering* 121(12) 893-901.

**Karthikeyan, J. (1990)**, A study on Colour Removal from Textile Waste by Chemical Treatment, IIT Kanpur.

**Kaur, R. Kaur, H. (2019)**, Adsorptive removal of Amido black 10B from aqueous solution using stem carbon of *Ricinus communis* as adsorbent, *Asian J. Chem* 31 1071–1076.

**Kavanaugh, M. C. (1978)**, Modified coagulation for improved removal of trihalomethane precursors. *Journal-American Water Works Association* 70(11) 613-620.

**Khelili, H. (2016)**, Effet des interactions chlore/coagulant aluminique sur la réactivité d'acides organiques. Thèse de doctorat, Université de Biskra, Algérie.

**Khous, D. (2010)**, Contribution à l'étude des phénomènes de coagulation-floculation de particules en suspension dans l'eau. Application de nouveaux polymères de synthèse. Thèse de doctorat, Université des sciences et de technologie d'Alger, Algérie.

**Kılıç, A. Orhan, R. (2019)**, Removal of cationic dyes by adsorption in a single and binary system using activated carbon prepared from the binary mixture. *Separation Science and Technology*. 54(14) 2147-2163.

**Kim, T. H. Park, C. Shin, E. B. Kim. S. (2004)**, Decolorization of disperse and reactive dye solutions using ferric chloride. *Desalination* 161(1) 49-58.

**Kim, T. H. Park, C. Yang, J. Kim, S. (2004)**, Comparison of disperse and reactive dye removals by chemical coagulation and Fenton oxidation. *Journal of hazardous materials* 112 (1-2) 95-103.

**Kirby, J. (1977)**, A spectrophotometric method for the identification of lake pigment dyestuffs. *National Gallery Technical Bulletin* 1, 35-45.

**Kismir, Y. Aroguz, A. Z. (2011)**, Adsorption characteristics of the hazardous dye Brilliant Green on Saklıkent mud. *Chemical Engineering Journal* 172 (1) 199-206.

- Klimiuk, E. Filipkowska, A. Korzeniowska, A. (1999)**, Effects of pH and coagulant dosage on effectiveness of coagulation of reactive dyes from model wastewater by polyaluminium chloride (PAC). *Polish Journal of Environmental Studies* 8 73–79.
- Kumar, P. Prasad, B. Mishra, I. M. Chand, S. (2008)**, Decolorization and COD reduction of dyeing wastewater from a cotton textile mill using thermolysis and coagulation. *Journal of hazardous materials* 153 (1-2) 635-645.
- Kurbus T, Slokar Y.M, Le Marechal A.M. (2002)**, *Dyes Pigments* 54 67-78.
- Lagaly, G. et Ziesmer, S. (2003)**, Colloid chemistry of clay minerals: the coagulation of montmorillonite dispersions. *Advances in colloid and interface science* 100, 105-128.
- Lakhdari, B. (2011)**, Effet de la coagulation floculation sur la qualité des eaux écurées de la STEP de Ain El Houtz, Mémoire de magister, Université de Tlemcen, Algérie.
- Larakeb, M. (2015)**, Elimination du zinc par adsorption et par coagulation-floculation, Thèse de doctorat, Université de Biskra, Algérie.
- Larbi, F. (2008)**, Contribution à La Décoloration Des Eaux Résiduairees Textiles Par Des Argiles Naturelles. Mémoire de Magister, Université d'Oran. Algérie.
- Lee, J. W. Choi, S. P. Thiruvengkatachari, R. Shim, W. G. Moon, H. (2006)**, Evaluation of the performance of adsorption and coagulation processes for the maximum removal of reactive dyes. *Dyes and pigments* 69 (3) 196-203.
- Lefebvre, E. et Legube, B. (1990)**, Coagulation par Fe (III) de substances humiques extraites d'eaux de surface: Effet du pH et de la concentration en substances humiques. *Water Research* 24 (5) 591-606.
- Lefebvre, E. et Legube, B. (1993)**, Coagulation-floculation par le chlorure ferrique de quelques acides organiques et phenols en solution aqueuse. *Water Research* 27 (3) 433-447.
- Lemlikchi, W. (2012)**, Elimination de la pollution des eaux industrielles par différents procédés d'oxydation et de Co-précipitation. Thèse de doctorat, Université de Tizi-Ouzou, Algérie.
- Li, W. Hua, T. Zhou, Q. Zhang, S. and Fengxiang, L. (2010)**, Treatment of stabilized landfill leachate by the combined process of coagulation/flocculation and powder activated carbon adsorption. *Desalination* 264, 56– 62.

**Liu, Y. Zhao, Y. Cheng, W. Zhang, T. (2020)**, Targeted reclaiming cationic dyes from dyeing wastewater with a dithiocarbamate-functionalized material through selective adsorption and efficient desorption. *Journal of Colloid and Interface Science* 579, 766-777.

**Löbber, G. (2000)**, Phthalocyanines. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*.

**Lounnas, A. (2009)**, Amélioration des procédés de clarification des eaux de la station Hamadi-Kroma de Skikda. Mémoire de magister, Université de Skikda, Algérie.

**Mahesh, R. Gadekar, M. Mansoor Ahammed, M. (2016)**, Coagulation/ flocculation process for dye removal using water treatment residuals: modelling through artificial neural networks. *Desalination and water Treatment* 57 1–9.

**Malhotra, S.K. Fred Lee, G. and Rohlich, G.A. (1964)**, Nutrient removal from secondary effluent by alum flocculation and lime precipitation, *Int. J. Air Wat. Poll.* Pergamon Press 8, 487-500.

**Mall, I. D. Srivastava, V. C. Agarwal, N. K. (2006)**, Removal of Orange-G and Methyl Violet dyes by adsorption onto bagasse fly ash—kinetic study and equilibrium isotherm analyses. *Dyes and pigments* 69(3) 210-223.

**Mane, V. S. Babu, P. V. (2013)**, Kinetic and equilibrium studies on the removal of Congo red from aqueous solution using Eucalyptus wood (*Eucalyptus globulus*) saw dust. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 44 (1), 81-88.

**Mane, V. S. Mall, I. D. Srivastava, V. C. (2007)**, Kinetic and equilibrium isotherm studies for the adsorptive removal of Brilliant Green dye from aqueous solution by rice husk ash. *Journal of environmental management* 84 (4) 390-400.

**Maran, J. P. Priya, B. (2015)**, Comparison of response surface methodology and artificial neural network approach towards efficient ultrasound-assisted biodiesel production from muskmelon oil. *Ultrasonics Sonochemistry* 23 192-200.

**Matilainen, A. Vepsäläinen, M. and Sillanpää, M. (2010)**, Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: A review. *Advances in Colloid and Interface Science* 159, 189–197.

**Mazet M.M. Ayele J. et Rigaudie I. (1990)**, Elimination des acides humiques contenus dans l'eau par les celluloses greffées. *Wat Res* 26 (4) 409-417.

- Mcyotto, F. Wei, Q. Macharia, D. K. Huang, M. Shen, C. Chow, C. W. (2021)**, Effect of dye structure on color removal efficiency by coagulation. *Chemical Engineering Journal* 405, 126674.
- Mehr, H. V. Saffari, J. Mohammadi, S. Z. Shojaei, S. (2020)**, The removal of methyl violet 2B dye using palm kernel activated carbon: thermodynamic and kinetics model. *International Journal of Environmental Science and Technology* 17, 1773-1782.
- Mercer, K. L. Tobiason, J. E. (2008)**, Removal of arsenic from high ionic strength solutions: effects of ionic strength, pH, and preformed versus in situ formed HFO. *Environmental science & technology* 42 (10) 3797-3802.
- Merzouk, B. Gourich, B. Madani, K. Vial, C. Sekki, A. (2011)**, Removal of a disperse red dye from synthetic wastewater by chemical coagulation and continuous electrocoagulation, A comparative study. *Desalination* 272, 246–253.
- Merzouk, B. Gourich, B. Sekki, A. Madani, K. Vial, Ch. and Barkaoui, M. (2009)**, Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electrocoagulation process. *Chemical Engineering Journal* 149, 207–214.
- Messabih, S.M. Benrached, K. Makhlouf, M. Belaid, K.D. Boucheher, O. Louhab, K. (2021)**, Étude de l'adsorption d'un colorant cationique en milieu aqueux sur le charbon actif Issu de la ferulacommunis. *Algerian Journal of Environmental Science and Technology* 7 (2) 1880-1888.
- Mihai, M. Dabija, G. Costache, C. (2008)**, polyelectrolyte-surfactant complexes used in the coagulation-flocculation processes. *Environmental Engineering and Management Journal*. 7 (1) 61-64.
- Mills, C. Bull, R.J. Cantor, K.P. (1998)**, Risques pour la santé liés à la consommation de sous-produits de la chloration de l'eau potable : rapport d'un groupe d'experts. *Maladie Chron. Canada*, 19-3.
- Mishra, A. Bajpai, M. (2005)**, Flocculation behaviour of model textile wastewater treated with a food grade polysaccharide. *Journal of Hazardous Materials* 118(1-3), 213-217.
- Mishra, A. Bajpai, M. (2006)**, The flocculation performance of Tamarindus mucilage in relation to removal of vat and direct dyes. *Bioresource Technology* 97 (8) 1055-1059.

**Mittal, A. Gajbe, V. Mittal, J. (2008)**, Removal and recovery of hazardous triphenylmethane dye, Methyl Violet through adsorption over granulated waste materials. *Journal of Hazardous Materials* 150 (2) 364-375.

**Moghaddam, S.S. Moghaddam, M. A. Arami, M. (2010)**, Coagulation/flocculation process for dye removal using sludge from water treatment plant: optimization through response surface methodology. *Journal of hazardous materials* 175 (1-3) 651-657.

**Moghaddam, S.S. Moghaddam, M.A. Arami, M. (2011)**, Response surface optimization of acid red 119 dye from simulated wastewater using Al based waterworks sludge and polyaluminium chloride as coagulant. *Journal of environmental management* 92 (4) 1284-1291.

**Mohan, N, Balasubramanian, N, Basha, C. A. (2007)**, Electrochemical oxidation of textile wastewater and its reuse. *Journal of hazardous materials* 147 (1-2) 644-651.

**Monzie, I. (2003)**, Échange d'ions pour la production d'eau très pure: étude des limitations cinétiques par la méthode des micro-colonnes: extension à l'électrodéionisation. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.

**Mossa, M. W. Mazet, M. (1991)**, Influence des sels minéraux sur l'adsorption des acides humiques sur floes d'hydroxydes de fer preformes. *Environmental technology* 12(8) 725-730.

**Moussavi, G. Khosravi, R. (2011)**, The removal of cationic dyes from aqueous solutions by adsorption onto pistachio hull waste. *Chemical engineering research and design*, 89(10) 2182-2189.

**Mukhlis, M.Z.B. Khan, M.M.R. Islam, A.R. Akanda, A.N.M.S. (2016)**, Removal of reactive dye from aqueous solution using coagulation–flocculation coupled with adsorption on papaya leaf. *Journal of Mechanical Engineering and Sciences* 10 (1) 1884-1894.

**Myebeck, J. (1963)**, les colorants. *Presse universitaire de France, Paris* 56-102, 110.

**Naidja, L. (2010)**, Elimination du colorant orange II en solution aqueuse, par voie photochimique et par adsorption. *Mémoire de Magister, Université de Constantine, Algérie.*

**Nandi, B. K. Patel, S. (2013)**, Effects of operational parameters on the removal of brilliant green dye from aqueous solutions by electrocoagulation. *Arabian Journal of Chemistry* 10 S2961-S2968.

**Natarajan, S. Bajaj, H. C. Tayade, R. J. (2018)**, Recent advances based on the synergetic effect of adsorption for removal of dyes from waste water using photocatalytic process. *Journal of Environmental Sciences* 65, 201-222.

**Natarajan, T.S. Natarajan, K. Bajaj, H.C. Tayade, R.J. (2013)**, Study 1610 on identification of leather industry waste water constituents 1611 and its photocatalytic treatment. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 1612 10, 855–864.

**Nourmoradi, H. Zabihollahi, S. Pourzamani, H. R. (2016)**, Removal of a common textile dye, navy blue (NB), from aqueous solutions by combined process of coagulation–flocculation followed by adsorption. *Desalination and Water Treatment* 57 (11) 5200-5211.

**O'Neill, C. Hawkes, F. R. Hawkes, D. L. Lourenço, N. D. Pinheiro, H. M. Delée, W. (1999)**, Colour in textile effluents–sources, measurement, dischargeconsents and simulation:areview. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology:International Research in Process. Environmental & Clean Technology* 74(11) 1009-1018.

**Obiora-Okafo, I.A. et Onukwuli, O.D. (2017)**, Optimization of coagulation-flocculation process for colour removal from azo dye using natural polymers: response surface methodological approach. *Nigerian J. Technol.* 36, 482–495.

**Obiora-Okafo, I.A. Onukwuli, O.D. (2018)**, Characterization and optimization of spectrophotometric colour removal from dye containing wastewater by Coagulation-Flocculation. *Polish Journal of Chemical Technology* 20 (4) 49-59.

**Olthof, M. and Eckenfelder, W.W. (1976)**, Coagulation of textile wastewater. *Textile Chemist and Colorist* 8 (7) 18–22.

**Oubagha, N. (2011)**, Décontamination des eaux contenant les colorants textiles et les adjuvants par des matériaux naturels et synthétiques. Mémoire de magister, Université de TiziOuzou, Algérie.

**Pajootan, E. Arami, M. Mahmoodi, N. M. (2012)**, Binary system dye removal by electrocoagulation from synthetic and real colored wastewaters. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 43(2) 282-290.

**Pallier, V. (2008)**, Elimination de l'arsenic par coagulation floculation et électrocoagulation d'eaux faiblement minéralisées. Thèse de doctorat, Limoges, France.



**Papić, S. Koprivanac, N. Božić, A. L. Meteš, A. (2004)**, Removal of some reactive dyes from synthetic wastewater by combined Al (III) coagulation/carbon adsorption process. *Dyes and pigments*, 62(3) 291-298.

**Patel, H. et Vashi, R.T. (2012)**, Removal of Congo Red dye from its aqueous solution using natural coagulants. *Journal of Saudi Chemical Society* 16 (2) 131-136.

**Puchana-Rosero, M.J. Limaa, E.C. Mella, B. da Costa, D. Poll, E. Gutterres, M. (2018)**, A coagulation-flocculation process combined with adsorption using activated carbon obtained from sludge for dye removal from tannery wastewater. *J. Chil. Chem. Soc* 63 3867–3874.

**Puchana-Rosero, M.J. Limaa, E.C. Mella, B. da Costa, D. Poll, E. Gutterres, M. (2018)**, A coagulation-flocculation process combined with adsorption using activated carbon obtained from sludge for dye removal from tannery wastewater. *J. Chil. Chem. Soc*, 63, 3867–3874

**Radin Mohamed. M.S.R. Nanyan, N.M. Rahman, N.A. Kutty, N.M.A.I. Kassim, A.H. M. (2014)**, Colour removal of reactive dye from textile industrial wastewater using different types of coagulants. *Asian Journal of Applied Sciences* 2 (5) 650-657.

**Randtke, S. J. (1988)**, Organic contaminant removal by coagulation and related process combinations. *Journal-American Water Works Association* 80 (5) 40-56.

**Reffas, A. (2010)**, Étude de l'adsorption de colorants organiques (rouge nylosan et bleu de méthylène) sur des charbons actifs préparés à partir du marc de café. Thèse de doctorat, Université de Constantine, Algérie.

**Rehman, R. Abbas, A. Mahmud, T. Salman, M. Akbar, S. (2012)**, Thermodynamical and Mechanistic Studies of Direct Red-28 dye Adsorption on *Syzygiumcumini* stem, *J. Chem. Soc. Pak* 34 (5) 1156.

**Rezig, C. (2012)**, Suivi de Fonctionnement de la STEP du Complexe GP1/Z par l'Etude de décantation & Coagulation-Flocculation, Mémoire de magister, Université d'Oran, Algérie.

**Rodier, J. Legube, B. Merlet, N. (1959)**, coll. 1 ère Edition.

**Rodier, J. Legube, B. Merlet, N. Brunet, R. (2009)**, L'analyse de l'eau - 9<sup>ème</sup> édition,- Eaux naturelles, eaux résiduaires, eau de mer: Analyse de l'eau, 9<sup>ème</sup> édition, Paris, Dunod.

**Rosenberg, E. (2008)**, Characterisation of historical organic dyestuffs by liquid chromatography–mass spectrometry. *Analytical and bioanalytical Chemistry*, 391, 33-57.

**Sadeghi, S. Naseh, Z.(2018)**, Simultaneous determination of Brilliant Green and Crystal Violet dyes in fish and water samples with dispersive liquid-liquid micro-extraction using ionic liquid followed by zero crossing first derivative spectrophotometric analysis method, *SpectrochimicaActa Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy* 201 134-142.

**Saidi, F. Z. (2013)**, Elimination du Bleu de Méthylène par des Procédés d'Oxydation Avancée. Mémoire de Magister, Université de Tlemcen, Algérie.

**Saini, R.D. (2017)**, Textile organic dyes: polluting effects and elimination methods from textile waste water. *Int. J. Chem. Eng. Res*, 9, 121–136.

**Satilmis, B. (2020)**, Amidoxime modified polymers of intrinsic microporosity (PIM-1); a versatile adsorbent for efficient removal of charged dyes; equilibrium, kinetic and thermodynamic studies. *Journal of Polymers and the Environment* 28, 995-1009.

**Saucier, C. Adebayo, M. A. Lima, E. C. Prola, L. D. Thue, P. S. Umpierres, C. S. Machado, F. M. (2015)**, Comparison of a homemade bacuri shell activated carbon with carbon nanotubes for food dye removal. *CLEAN–Soil, Air, Water* 43 (10) 1389-1400.

**Sbai, G. Oukili, K. Loukili, M. (2016)**, Etude de la dégradation des colorants de textile application sur le Bleu de Méthylène, *Int. J. Innovation Appl. Sci.* 16 272–279.

**Semmens, M. J. et Ayers, K. (1985)**, Removal by coagulation of trace organics from Mississippi river water. *Journal-American Water Works Association* 77(5) 79-84.

**Semmens, M. J. et Field, T. K. (1980)**, Coagulation: experiences in organics removal. *Journal-American Water Works Association* 72(8) 476-483.

**Shapovalov, S. A. Koval, V. L. Chernaya, T. A. Pereverzev, A. Y. Derevyanko, N. A. Ishchenko, A. A. Mchedlov-Petrosyan, N. O. (2005)**, Association of indopolymethine cyanine cations with anions of sulfonephthalein and xanthene dyes in water. *Journal of the Brazilian Chemical Society*, 16, 232-240.

**Shi, B. Li, G. Wang, D. Feng, C. Tang, H. (2007)**, Removal of direct dyes by coagulation: the performance of preformed polymeric aluminum species. *Journal of hazardous materials* 143(1-2) 567-574.

**Shore, J. (1990)**, Colorant and auxiliaries, organic chemistry and application properties. Volume 1- colorants. BTTG- Shirley, Society of dyes and colourists, Manchester, Angleterre.

**Sodeifian, G. Sajadian, S. A. Ardestani, N. S. (2016)**, Evaluation of the response surface and hybrid artificial neural network-genetic algorithm methodologies to determine extraction yield of *Ferulago angulata* through supercritical fluid. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 60, 165-173.

**Solunke, A. B. (2014)**, Biotransformation of textile azo dyes. *Acta Biologica Indica* 3(2) 628-635.

**Soudani, A. Youcef, L. Bulgariu, L. Youcef, S. Toumi, K. Soudani, N. (2022)**, Characterizing and modeling of oak fruit shells biochar as an adsorbent for the removal of Cu, Cd, and Zn in single and in competitive systems. *Chemical Engineering Research and Design* 188, 972-987.

**Stephenson, R. J. Duff, S. J. B. (1996)**, Coagulation and precipitation of a mechanical pulping effluent. Removal of carbon colour and turbidity. *Water Research* 30 (4) 781–792.

**Szygula, A. Guibal, E. Palacín, M. A. Ruiz, M. Sastre, A. M. (2009)**, Removal of an anionic dye (Acid Blue 92) by coagulation–flocculation using chitosan. *Journal of Environmental Management* 90(10) 2979-2986.

**Szygula, A. Guibal, E. Ruiz, M. Sastre, A. M. (2008)**, The removal of sulphonatedazo-dyes by coagulation with chitosan. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 330 (2-3) 219-226.

**Tan, B. H. Teng, T. T. Omar, A. M. (2000)**, Removal of dyes and industrial dye wastes by magnesium chloride. *Water research* 34 (2) 597-601.

**Tchobanoglous, G. et Schroeder, E. D. (1987)**, *Water Quality*, Addison and Wesley, Reading, MA.

**Tebani, S. (2012)**, Elimination des colorants par biosorption et photodégradation dans un reacteur agité. Mémoire de Magister, Université de Houari Boumediene Alger, Algérie.

**Thomas, D. N. Judd, S. J. Fawcett, N. (1999)**, Flocculation modelling: a review. *Water research* 33(7) 1579-1592.

**Tiaiba, M. Merzouk, B. Mazour, M. Leclerc, J. Lopicque, F. (2018)**, Study of chemical coagulation conditions for a disperse red dye removal from aqueous solutions, *Membrane Water Treatment*, Techno-Press, Korean Science.

**Valentin, N. (2000)**, Construction d'un capteur logiciel pour le contrôle automatique du procédé de coagulation en traitement d'eau potable. Thèse de doctorat, Compiègne, France.

**Van Benschoten J.E. Edzwald J.K. (1990)**, Chemical aspects of coagulation using aluminum salts, Coagulation of fulvic acids using alum and polyaluminum chloride. *Wat. Res* 24 (12) 1527-1535.

**Van Breemen, A. N. Nieuwstad, T. J. Van Der Meent-Olieman, G. C. (1979)**, The fate of fulvic acids during water treatment. *Water Research* 13 (8) 771-779.

**Venkata Mohan, S. Sailaja, P. Srimurali, M. Karthikeyan, J. (1998)**, Color removal of monoazo acid dye from aqueous solution by adsorption and chemical coagulation. *Environmental Engineering and Policy* 1 149-154.

**Verma, A. K. Dash, R. R. Bhunia, P. (2012)**, A review on chemical coagulation/flocculation technologies for removal of colour from textile wastewaters. *Journal of environmental management* 93 (1) 154-168.

**Viel, C. (2005)**, Colorants naturels et teintures du XVIIe siècle à la naissance des colorants de synthèse. *Revue d'histoire de la pharmacie* 93(347) 327-348.

**Vigouret, J. (1985)**, le potentiel Zeta et son application dans le domaine de l'eau potable.

**Volk, C. Bell, K. Ibrahim, E. Verges, D. Amy, G. LeChevallier, M. (2000)**, Impact of enhanced and optimized coagulation on removal of organic matter and its biodegradable fraction in drinking water. *Water research* 34 (12) 3247-3257.

**Wang, X. Jiang, C. Hou, B. Wang, Y. Hao, C. Wu, J. (2018)**, Carbon composite lignin-based adsorbents for the adsorption of dyes. *Chemosphere* 206, 587–596.

**Wang, Z. P. Zhang, Z. Lin, Y. J. Deng, N. S. Tao, T. Zhuo, K. (2002)**, Landfill leachate treatment by a coagulation–photooxidation process. *Journal of hazardous materials* 95 (1-2) 153-159.

**Willmott, N.J. Guthrie, J.T. Nelson, G. (1998)**, JSDC, 114 38-41.

**Wong, P. W. Teng, T. T. Norulaini, N. A. R. N. (2007)**, Efficiency of the coagulation-flocculation method for the treatment of dye mixtures containing disperse and reactive dye. *Water Quality Research Journal* 42 (1) 54-62.

**Yadav, S. Asthana, A. Chakraborty, R. Jain, B. Singh, A.K. Carabineiro, S.A.C. Susan, M.A.B. (2020)**, Cationic dye removal using novel magnetic/activated charcoal/-cyclodextrin/alginate polymer nanocomposite. *J. Nanomater.* 10.

**Youcef, S. Guergazi, S. Youcef, L. (2022)**, Adsorption modeling of Cu and Zn in single and combined systems onto activated carbon of olive stone, *Modeling Earth Systems and Environment*, 1-14.

**Yu, Y. Zhuang, Y. Y. Li, Y. Qiu, M. Q. (2002)**, Effect of dye structure on the interaction between organic flocculant PAN-DCD and dye. *Industrial & engineering chemistry research* 41 (6) 1589-1596.

**Yuan-Shing, P. Ha-Manh,B. (2014)**, Decolorization of reactive dyeing wastewater by poly aluminium chloride, *J. Viet. Environ* 5 8–11.

**Yuan-Shing, P. Ha-Manh,B. (2014)**, Decolorization of Reactive Red 195 solution by electrocoagulation process. *J. Viet. Environ* 5 22–26

**Yukseler, H. Uzal, N. Sahinkaya, E. R. K. A. N. Kitis, M. Dilek, F. B. Yetis, U. (2017)**, Analysis of the best available techniques for wastewaters from a denim manufacturing textile mill. *Journal of environmental management* 203, 1118-1125.

**Zafar, M.S. Ahmad, S.W. Zia-Ul-Haq, M. Mubeen, A. Khan, W.A. (2018)**, Removal of

**Zahrim, A.Y. Tizaoui, C. Hilal, N. (2011)**, Coagulation with polymers for nanofiltration pre-treatment of highly concentrated dyes: A review. *Desalination* 266 (1-3)1–16.

**Zhenwang, L. Zhenlu, C. Jianyan, L. (2000)**, The PT dye molecular structure and its chromophoricluminescences mechanism 15th World Conference on Non-Destructive Testing, 15-21 October Rome.

**Zollinger, H. (2003)**, *Colorchemistry: syntheses, properties, and applications of organic dyes and pigments.* John Wiley& Sons.

**Zongo, I. (2009)**, Étude expérimentale et théorique du procédé d'électrocoagulation: application au traitement de deux effluents textiles et d'un effluent simulé de tannerie. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.

**Zonoozi, M. H. Moghaddam, M. A. Arami, M. (2009)**, Coagulation/flocculation of dye-containing solutions using polyaluminium chloride and alum. *Water science and Technology* 59 (7) 1343-1351.

**Zonoozi, M. H. Moghaddam, M. R. A. Arami, M. (2008)**, Removal of acid red 398 dye from aqueous solutions by coagulation/flocculation process. *Environmental Engineering and Management Journal* 7 (6) 695-699.

### *Sites web*

Cité dans (Chapitre II (Première Partie))

<https://www.aquaportail.com/definition-14638-matiere-organique-dissoute.html>


Cité dans Chapitre I (Deuxième Partie)

<https://www.dictionnaire-environnement.com/coagulant/>

## Travaux réalisés dans le cadre de la Thèse

### Publications Internationales

**Goudjil, S. Guergazi, S. Masmoudi, T. Achour, S. (2021)**, Effect of reactional parameters on the elimination of Congo Red by the combination of coagulation–floculation with aluminum sulfate, *Desal Water Treat* 209 429-436  
DOI: [10.5004/dwt.2021.26474](https://doi.org/10.5004/dwt.2021.26474)

 *Desalination and Water Treatment*  
www.deswater.com  
doi: 10.5004/dwt.2021.26474

209 (2021) 429–436  
January

Effect of reactional parameters on the elimination of Congo Red by the combination of coagulation–floculation with aluminum sulfate

Sarah Goudjil\*, Saadia Guergazi\*, Toufik Masmoudi, Samia Achour

*Research Laboratory in Subterranean and Surface Hydraulics, Civil Engineering and Hydraulic Department, University of Biskra, P.O. Box: 145 RP, Biskra, Algeria, emails: sarah.goudjil@univ-biskra.dz (S. Goudjil), s.guergazi@univ-biskra.dz (S. Guergazi), toufik.masmoudi@univ-constantine3.dz (T. Masmoudi), s.achour@larhyss.net (S. Achour)*

Received 25 February 2020; Accepted 19 August 2020

#### ABSTRACT

The main objective of our study is to test the performance of aluminum sulfate (AS) and the coagulation–floculation process in removing a dye widely used in the textile industry called Congo Red (CR). In order to achieve our objective, the jar-test tests were carried out in the laboratory on synthetic solutions. Various reaction parameters were tested such as the effect of variation in coagulant dose, variation in initial CR content, and variation in pH. A combination between the AS and coagulants aid such as powder activated carbon (PAC), polymers, and lime (Ca(OH)<sub>2</sub>) has been carried out to improve this process. The results obtained indicated for 30 mg/L concentration of CR, the AS optimal dose is found 40 mg/L. This dose has an elimination yield around to 97.24%. For the pH effect, the best performance was achieved in the range of pH between 4 and 6. Similar efficiency trends were obtained for 50 mg/L of the initial content of the CR. The combination of AS with coagulants aid has also shown that there is a very strong elimination marked by the small amounts of polymer, where the yield exceed 99%, in comparison with PAC and lime.

*Keywords:* Congo red; Aluminum sulfate; Powder activated carbon; Polymer; Lime; Coagulation–floculation

**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, S. ACHOUR**, Possibilité d'élimination du Rouge Congo par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium. *Journal International Sciences et Technique de l'Eau et de l'Environnement*, 1 (4) (2019) 164-168  
<https://jistee.org/journal-international-sciences-et-techniques-de-leau-et-de-lenvironnement/>

Journal International Sciences et Technique de l'Eau et de l'Environnement  
ISSN (ectronic): 1737-9350; ISSN (printed): 1737-6688; Volume IV - Numéro I – Décembre 2019

#### Possibilité d'élimination du Rouge Congo par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium

Sarah GOUDJIL<sup>1</sup>, Saadia GUERGAZI<sup>2</sup> et Samia ACHOUR<sup>3</sup>

<sup>1,2,3</sup> *Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface, Université Mohamed Kheider B.p 145 RP 07000*

*Biskra-Algérie.*

<sup>1</sup>*Sarah.goudjil@univ-biskra.dz;* <sup>2</sup>*s.guergazi@univ-biskra.dz;* <sup>3</sup>*s.achour@larhyss.net*

#### Résumé

Dans ces dernières années, il existe un énormément des produits colorés pour des raisons plus ou moins commerciales, en particulier les colorants textiles. Cependant, il existe certains colorants qui sont toxiques et qui apportent des dangers pour les différents êtres vivants ainsi que le milieu aquatique, par le rejet des eaux usées industrielles chargées par une teneur très élevée en couleur. Sachant que le déversement de ce type des eaux usées est considéré parmi les plus importants problèmes environnementaux. Pour cette raison, on a entamé ce travail, pour étudier la possibilité d'éliminer un colorant diazoïque très toxique nommé Rouge Congo (RC) par coagulation-floculation, en utilisant comme coagulant le sulfate d'aluminium. Afin de pouvoir estimé le pourcentage d'élimination du Rouge Congo (RC), différents paramètres réactionnels sont pris en considération à savoir, l'effet de la variation de la dose du coagulant, de la teneur initiale du Rouge Congo ainsi que, la variation du pH des solutions colorées. Les résultats que nous avons obtenus ont bien montré que, la dose optimale en sulfate d'aluminium est de 40 mg/L. Cette dose à un rendement d'élimination du colorant Rouge Congo qui dépasse les 97%. Une très bonne élimination est marquée par les grandes valeurs de la teneur initiale du Rouge Congo. Le pH du traitement optimal est au voisinage de 6.

**Mots clés:** Rouge Congo, Coagulation- Floculation, Sulfate d'aluminium.

Communications Internationales

**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, S. ACHOUR,** The First International Conference on Water and Climate 13th – 14th November, 2019 BADJI Mokhtar University of Annaba, Algeria Faculty of Engineering Department of Hydraulic, with a communication: Influence of polymer and activated carbon on the elimination of Congo red by coagulation-flocculation.



**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, S. ACHOUR,** Colloque International Eau-Énergie -Climat'2019 (2EC'2019), Ressources en Eau, Énergie et Changement Climatique 16<sup>th</sup>-18<sup>th</sup> December, 2019 Hammamet (Tunisie). With a communication: Possibilité d'élimination du Rouge Congo par coagulation-flocculation au sulfate d'aluminium.



**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, S. ACHOUR,** colloque maghrébin sur l'eau et l'environnement dans les zones arides et semi-arides (CMEEZASA'2020). 15<sup>th</sup> – 16<sup>th</sup> april 2020, Biskra, Faculté de Génie civil et d'hydraulique effet des paramètres réactionnels sur l'élimination du Méthyle violet au chlorure ferrique.





**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,** 1er Séminaire international sur les sciences de la matière (physique et chimie) (webinaire 13 Mars 2021) Oran. Efficiency of coagulants aid for the removal of a cationic dye From synthetic solutions by coagulation/flocculation process.






**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,** First International Conference Geo-Sciences & Environment (ICGSE). 26<sup>th</sup>-27<sup>th</sup> September 2021, Mascara, Faculté de Science de la nature et de la vie, Optimisation of powdered activated carbon and lime for the removal of colour and COD from wastewater by coagulation-flocculation process.



**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,** First International Conference on chemical matters and environment preservation IC-CMEP '22 March 9-10, 2022, Ouargla, Département de Chimie. Colour removal from dyeing synthetic wastewater by agro-food polymer with aluminium sulphate.



Communications Nationales

<p><b>S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,</b> 1<sup>er</sup> Séminaire National en Sciences Agronomiques (Webinaire) Recherches à Vision Economique en Sciences Agronomiques RAVESA-AGROWEB1, Les 15 et 16 Juin, 2021, Université de M'Sila- Algeria. Treatment Of Wastewater: Removal Of Brilliant Green Dye By Ferric Chloride.</p>	 <p>Attestation de participation RAVESA-AGROWEB1 15-16 juin 2021. M<sup>me</sup>/M<sup>rs</sup>: GOUDJIL SARAH. A présente une communication affichée intitulée: Treatment of wastewater: removal of brilliant green dye by ferric chloride. CO-AUTEURS: GUERGAZI Saadia, MASMOUDI Toufik.</p>
<p><b>S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,</b> 1<sup>er</sup> séminaire national sur la production et la protection des végétaux (19-20 juin 2021) (SNPPV 2021) Laghouat via Google Meet. REMOVAL OF A POLLUANT FROM WASTEWATER BY THE COMBINAISON OF FERRIC CHLORIDE WITH POWDERED ACTIVATED CARBON.</p>	 <p>Certificate of Participation SNPPV 2021. M GOUDJIL Sarah. Has participated in the First Online National Seminar on Plant Production and Protection held in the University of Laghouat from 19 to 20 June 2021 with a poster presentation entitled "REMOVAL OF A POLLUANT FROM WASTEWATER BY THE COMBINAISON OF FERRIC CHLORIDE WITH POWDERED ACTIVATED CARBON".</p>
<p><b>S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI,</b> 1<sup>er</sup> séminaire national sur les ressources naturelles faces aux contraintes d'usage et du changement climatique (SENACUC, 2021) le 4 Juillet 2021 Mila, via Google Meet. DEPOLLUTION DES REJETS INDUSTRIELS. APPLICATION SUR L'ELIMINATION DE VERT BRILLANT.</p>	 <p>Attestation de Participation par Visioconférence Au 1<sup>er</sup> Séminaire National sur les Ressources Naturelles face aux Contraintes d'Usage et du Changement Climatique (SENACUC, 2021), le 04 Juillet 2021. La présidente du séminaire atteste que Mr/Mme : Goudjil Sarah a présenté une communication orale. Sous le titre : Dépollution des rejets industriels. Application sur l'élimination de vert brillant. Co-auteurs : Guergazi Saadia et Massmoudi Toufik.</p>

**S. GOUDJIL, S. GUERGAZI, T. MASMOUDI**, 1<sup>er</sup> séminaire national génie des procédés (SNGP 2021) 18<sup>th</sup>-19<sup>th</sup> Octobre Ouargla. Performance of two coagulants for the removal of Methyl violet from synthetic wastewater (A comparative study).



**S.GOUDJIL, S.GUERGAZI, T.MASMOUDI**, 1<sup>er</sup> Séminaire national sur les polluants émergents dans l'eau SNPEE2022, 22-23 Mars 2022, Organisé par la division 'Analyse de l'Eau et du Sol' de l'UR-ADTE-CRAPC, The performance of COD, turbidity, and colour reductions from synthetic wastewater by Ferric Chloride and Lime

