

# L'adsorption des métaux lourds par l'oxygène pur et par filtration à travers des filtres disposés en cascade

Khaled Mnaouer<sup>1</sup>, Mahmoud El Mouden<sup>1</sup>, Fatima Majid<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratory of Engineering Sciences for Energy (LabSIPE), National School of Applied Sciences, Chouaib Doukkali University, El Jadida, Morocco.

<sup>2</sup>Département de physique, Faculté des Sciences, El Jadida (Maroc).



## Abstract

### ADSORPTION OF HEAVY METALS BY PURE OXYGEN AND BY FILTRATION THROUGH FILTERS ARRANGED IN CASCADE

The main objective of this research is to study the influence of the addition of pure oxygen to wastewater before its purification using less expensive adsorbents for the elimination of heavy metals. The purification technique used is percolation filtration where the adsorbents used are arranged in a cascade. The matrix used consists of marine sand with a particle size of 120  $\mu\text{m}$ , fly ash and clay soil. The metals studied are: As, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Pb, Ni, and Zn. The results obtained are very satisfactory and present very significant reductions of up to 90%. To validate our results, the ICP analysis of the filtrate obtained was compared with that of drinking water. The purified liquid obtained is perfectly within international standards, to be used for industrial needs, as cooling liquids or for irrigation.

**Keywords:** fly ash, marine sand, clay soil, heavy metals, adsorption, wastewater

L'objectif principal de cette recherche, est d'étudier l'influence de l'apport de l'oxygène pur dans les eaux usées avant leurs purifications à travers des adsorbants moins coûteux pour l'élimination des métaux lourds. La technique de purification utilisée est la filtration percolation où les adsorbants utilisés sont disposés en cascade. La matrice utilisée est constituée de sable marin de taille granulométrique 100  $\mu\text{m}$ , de cendres volantes et de sol argileux. Les métaux étudiés sont: As, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Pb, Ni, et le Zn. Les résultats obtenus sont très satisfaisants et présentent des abattements significatifs allant jusqu'au 90%. Pour valider nos résultats, l'analyse par ICP du filtrat obtenu a été comparée avec celle de l'eau potable. Le liquide purifié obtenu est parfaitement dans les normes internationales, pour bien être utilisé pour des besoins industriels, comme liquides de refroidissement où pour l'irrigation.

**Mots clés:** cendres volantes, sable marin, sol argileux, métaux lourds, adsorption, eaux usées

## INTRODUCTION

L'un des impacts négatifs de l'activité humaine sur notre planète concerne les rejets d'eaux usées des industries manufacturières. Il convient de noter que la composition des eaux usées rejetées varie considérablement en fonction du secteur industriel, des caractéristiques technologiques d'une entreprise industrielle, de la densité de population, du climat et même des traditions culturelles et sociales d'une région. Ces eaux usées comprennent généralement le Cu, le Ni, le Cr, le Cd, l'As, le Fe, le Co, le Zn et le Pb [1,2]. Ces métaux lourds ne sont pas biodégradables et leur présence dans les cours d'eau et les lacs entraîne une bioaccumulation dans les organismes vivants. Plusieurs méthodes de traitement ont

été utilisées pour éliminer ces polluants à savoir la coagulation [3-7], l'échange d'ions, la précipitation. Des études sur le traitement des effluents contenant des métaux lourds ont révélé que l'adsorption est une technique très efficace pour éliminer les métaux lourds des flux de déchets [8-15]. L'objectif principal de cette recherche, est d'étudier l'influence de l'apport de l'oxygène pur dans les eaux usées avant leurs purifications à travers des adsorbants moins coûteux pour l'élimination des métaux lourds. La technique de purification utilisée est la filtration percolation où les adsorbants utilisés sont disposés en cascade. La matrice utilisée est constituée de sable marin de taille granulométrique 120  $\mu\text{m}$ , de cendres volantes et de sol argileux.

**MONTAGE DE FILTRATION PERCOLATION UTILISÉ ET ADSORBANTS.**

**MONTAGE DE FILTRATION**

Le dispositif expérimental de filtration percolation utilisé dans notre recherche (figure 1), est formé de trois adsorbants disposés en cascade comprenant les trois filtres à savoir: le sable marin de taille granulométrique 120 µm prélevé de la plage de la ville d'El Jadida, le sol agricole argileux riche en silice et les cendres volantes provenant de la combustion du charbon de la centrale thermique. Les eaux usées ont été bien oxygénées dans leurs états bruts (figure 1).

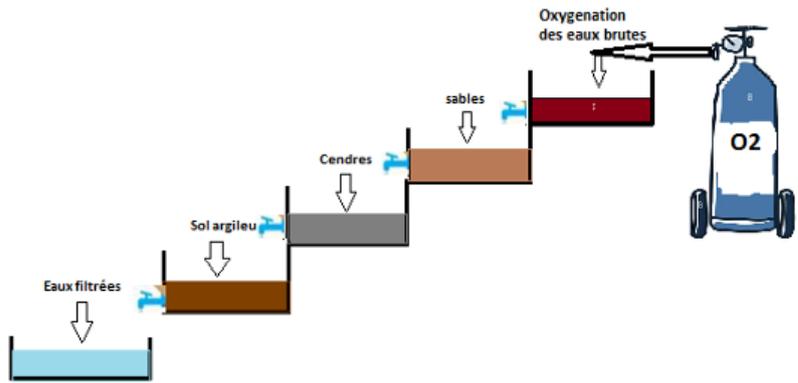


Figure 1: Montage expérimental utilisé pour le traitement des eaux usées.

**Eaux usées industrielles**

Des échantillons d'eaux usées ont été collectés d'un grand lac servant comme dépotoir des rejets liquides et limitrophe d'une zone industrielle comme le montre la figure 2.



Figure 2: site dépotoir des rejets liquides.

**CENDRES VOLANTES**

Des cendres volantes ont également été collectées auprès de la centrale thermique Jorf lasfer «JLEC». La composition minéralogique des cendres volantes a été analysée par diffractomètre à rayons X. Les cendres volantes ont été caractérisées chimiquement à l'aide de la technique de spectroscopie d'absorption atomique par flamme (ICP). Les cendres volantes ont une réactivité beaucoup plus élevée que les mâchefers en raison de la taille de leurs particules finement divisées. Les cendres volantes sont une fine matière pulvérulente composée de

particules principalement sphériques. Leur couleur est généralement gris pâle à gris foncé. Les cendres volantes sont souvent décrites comme des matières pouzzolaniques. Un pouzzolane est défini par l'ASTM comme un produit riche en silice. Leur composition est en relation avec les différents types de matières incombustibles présentes dans le charbon. Généralement les éléments

présents dans les cendres volantes sont: le silicium, l'aluminium, le fer, le calcium et le magnésium [16-24]. Les cendres volantes sont l'un des déchets les plus connus et sont utilisées comme matière première dans de nombreuses industries telles que l'industrie du ciment [25-30], mais leur effet négatif sur l'environnement ne peut pas être complètement neutralisé en procédant

Tableau 1: analyse par ICP des lixiviats bruts et du filtrat.

Métaux lourds (mg/l)	Métaux lourds dans les eaux usées	Métaux lourds dans les eaux usées oxygénées	Métaux lourds dans les eaux filtrées	Eau potable
As	0,11	0,09	<0,01	<0,01
Cd	< 0,004	< 0,004	< 0,004	< 0,004
Co	0,74	0,55	<0,010	<0,010
Cr	0,09	0,05	<0,003	<0,003
Cu	0,19	0,14	<0,003	<0,003
Fe	7,32	3,58	0,02	0,010
Pb	0,10	0,07	<0,01	<0,01
Ni	0,07	0,06	0,02	<0,02
Zn	3,54	3,01	0,15	0,12

ainsi, il est donc nécessaire de les réutiliser. Leur réutilisation comme adsorbant dans l'élimination de différents types de polluants des eaux usées résout deux problèmes : la qualité de l'eau et la gestion des déchets [30-35].

#### SABLE MARIN

Le sable utilisé dans notre étude a été collecté du littoral de la ville d'El Jadida [38-40]. Ces échantillons ont été soigneusement lavés et séchés à 40°C en étuve. La granulométrie choisie est de 120 µm et ce après une étude détaillée sur le rôle de la vitesse de l'écoulement dans une substance poreuse.

#### LE SOL ARGILEUX

Le sol agricole a été prélevé d'un champ proche de notre université à El Jadida, très riche en silice et en calcite.

#### RÉSULTATS ET DISCUSSIONS.

Le tableau 1 montre les résultats des analyses obtenus par ICP-AES, des eaux usées dans leur état brut, oxygénés avant filtration et le filtrat obtenu après traitement à travers nos adsorbants. Pour valider nos résultats, une comparaison avec l'eau potable s'avère nécessaire. Les métaux lourds détectés sont l'As, le Cd, le Co, le Cr, le Fe, le Pb, le Ni et finalement le Zn.

Pour mieux visualiser ces résultats, les histogrammes des figures 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 et 10 montrent clairement ces abattements par comparaison avec l'eau potable.

Nous remarquons que tous les métaux lourds précédemment cités et détectés dans les eaux usées étudiés ont présenté des abattements spectaculaires, allant de 70 % à 98 %.

La filtration percolation avec des adsorbants disposés en cascade, en plus de l'oxygénation des eaux usées avant leur passage à travers nos lits filtrants, nous ont permis d'obtenir des résultats très satisfaisants. La matrice que nous avons utilisée pour la filtration, en particulier les cendres volantes, ont montré une meilleure dépollution. Ceci pourrait être expliqué par la formation d'une communauté plus ou moins complexe, souvent symbiotique, de micro-organismes (bactéries, microchampignons, microalgues ou protozoaires), adhérant entre eux et à une surface, et marquée par la sécrétion d'une matrice adhésive et protectrice

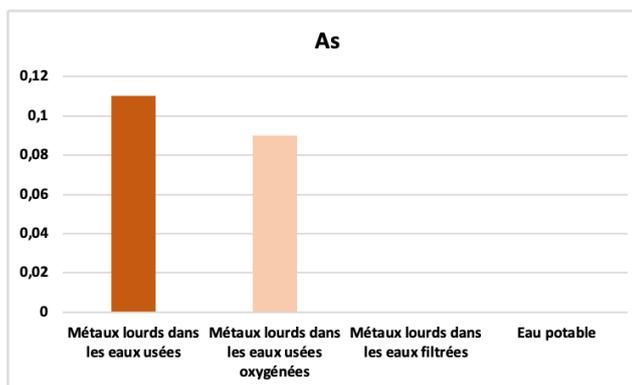


Figure 3: Elimination de l'Arsenic après filtration.

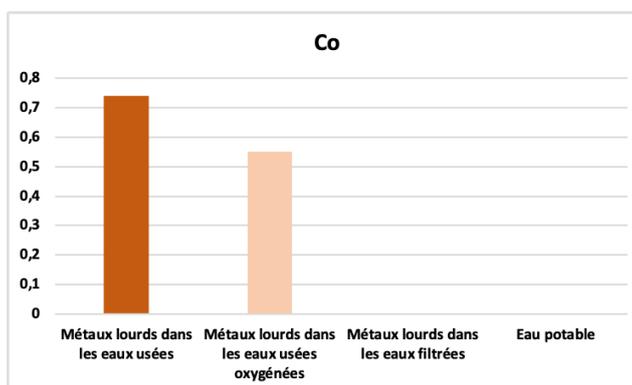


Figure 4: Elimination du Cobalt après filtration.

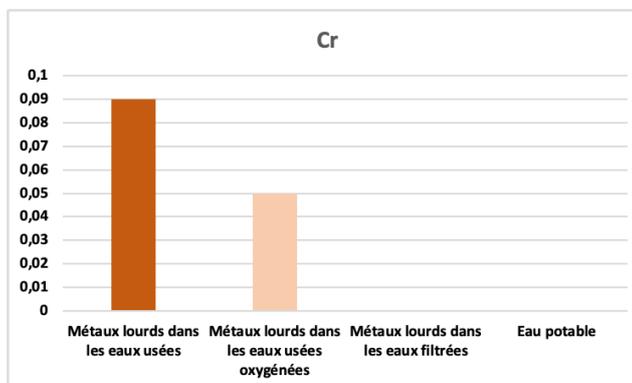


Figure 5: Elimination du Chrome après filtration.

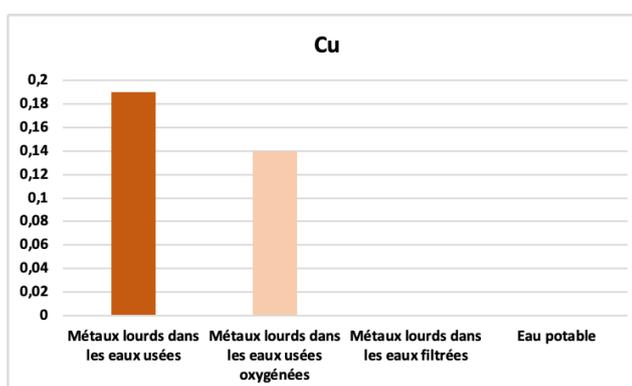


Figure 6: Elimination du Cuivre après filtration.

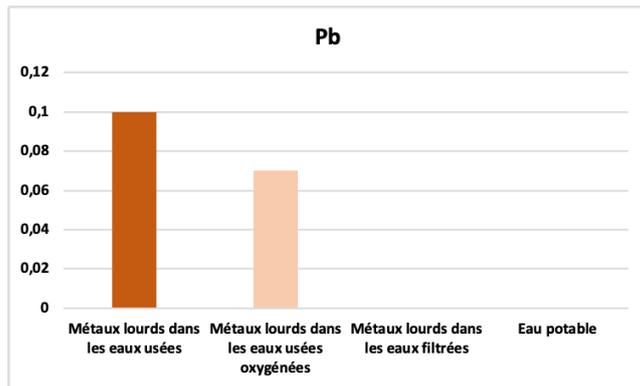


Figure 7: Elimination du Plomb après filtration.

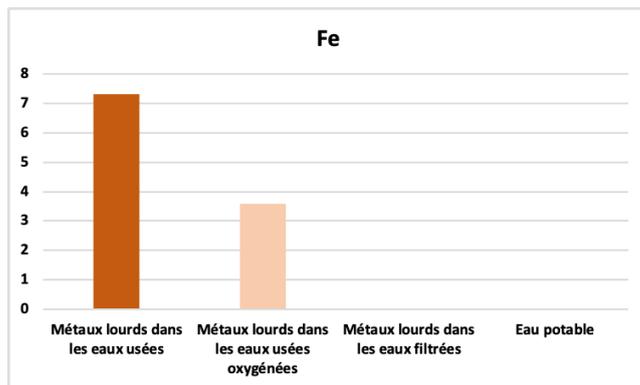


Figure 8: Elimination du Fer après filtration.

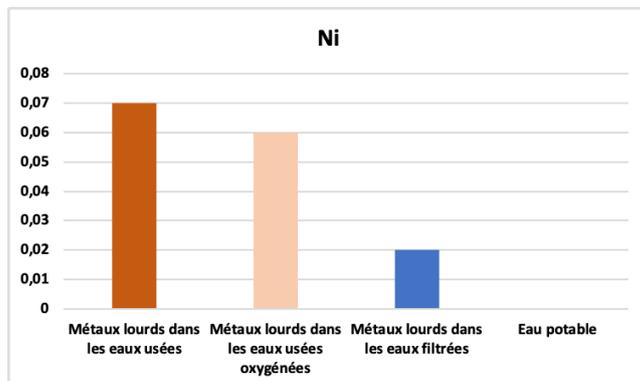


Figure 9: Elimination du Nickel après filtration.

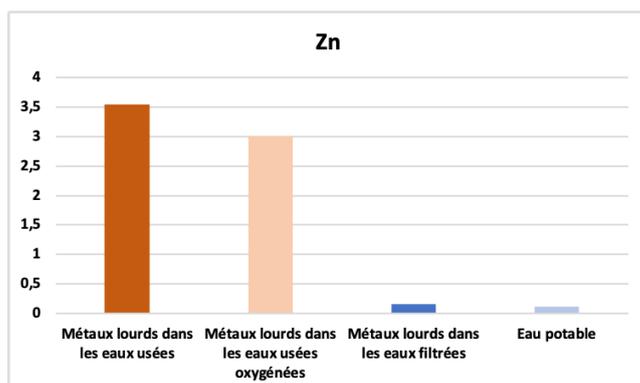


Figure 10: Elimination du cobalt après filtration.

dans la colonne qui permet une réduction par adsorption sur la membrane cellulaire, ainsi que par la structure poreuse et silico alumineuse de ces cendres qui est capable de retenir les métaux lourds en les piégeant dans leurs pores par absorption et de les lier avec des liaisons chimiques par adsorption. Tous les métaux lourds détectés sont diminués considérablement ce qui valide nos résultats obtenus, en particulier par comparaison avec l'eau potable [41-50].

### CONCLUSION

Les eaux usées industrielles étudiées constituent une source de nuisances qui s'ajoute aux nombreux problèmes de contamination de l'environnement si elles ne sont pas traitées avant rejet. Les métaux lourds présents dans ces eaux doivent retenir une grande attention car il est difficile d'empêcher la propagation et la dissémination de cette pollution dans les sols et dans les eaux souterraines. Les résultats de cette étude ont prouvé la faisabilité de l'élimination des métaux lourds en utilisant notre système de filtration percolation où les adsorbants sont disposés en cascade, ce qui permet une bonne rétention et une bonne purification. Le taux de silice et de calcite présents dans le sable, les cendres volantes et le sol ont un rôle primordial dans le traitement des rejets liquides en particulier les métaux lourds. L'oxygénation des eaux usées dans leurs états bruts avant filtration est un traitement en lui-même car un taux d'oxygène optimal dissous dans l'eau usée permet d'équilibrer les pics de DCO / DBO, c'est-à-dire la «respiration» des micro-organismes présents dans l'eau. Ce traitement permet de contrôler la prolifération de ces micro-organismes et permet de lutter contre la constitution du sulfure d'oxygène (H<sub>2</sub>S). Il s'agit d'un gaz désagréable et toxique pour l'homme. Ce procédé permettra une dépollution et une remise à disposition immédiate de l'eau, ce qui constitue un atout majeur dans l'optique du respect de l'environnement : l'eau est utilisée «en boucle». Ce principe est également économique pour ses utilisateurs car il ne nécessite pas d'apport régulier en eau. ●



## Références bibliographiques

- [1] G. GATTA, A. GAGLIARDI, G. DISCIGLIO, A. LONIGRO, M. FRANCAVILLA, W. TARANTINO, MM GIULIANI, Irrigation avec des eaux usées municipales traitées sur la culture de l'artichaut : évaluation du sol et le rendement teneur en métaux lourds et le risque humain, eau, 10 (2018) 255.
- [2] IMANE RHOUGH, ABDELGHANI LAAMYEM Valorisation des déchets industriels bruts et des matières naturelles dans l'adsorption des métaux lourds des eaux usées de la ville d'El Jadida à réutiliser en irrigation. Revue DWT (2019) pages 1-8.
- [3] L. DVORAK, M. GOMEZ, J. DOLINA, A. CERNIN, bioréacteurs membranes anaérobiques - un mini examen en mettant l'accent sur le traitement des eaux usées industrielles : les applications, les limites et perspectives, Desal. Traiter l'eau. 57 (2016) 19062-19076.
- [4] LAAMYEM A, HAFAD H, NAJEM M. Caractérisations physiques et chimiques des eaux usées industrielles après filtration à travers la matrice sol-sable en fonction de la taille granulométrique. revue EIN 343, pp.85- 88.
- [5] TAOUFIQ L, LAAMYEM A, MONKADE M, ZRADBA A, ELHACHMI E. L'utilisation des déchets solides avec du sable pour le traitement des eaux usées de la zone industrielle de la ville de Tanger. Revue EIN 389, pages 83-88.
- [6] LAAMYEMA, BEN ABDELLAH A, ESSADIQI E, FAQIR M, BOUYA M. Filtration et réutilisation des rejets liquides des machines à laver par infiltration percolation à travers la matrice sable cendre. revue EIN 374, pages 100 - 105.
- [7] EL FADEL H, MERZOUKI M, BENLEMLIH M, LAAMYEM A, NAJEM M. Contribution au traitement par infiltration-percolation des lixiviats de la décharge publique contrôlée de la ville de Fès au Maroc. revue EIN 341, pages 85-93.
- [8] NAJEM M, LAAMYEM A, LANÇAR I T. Rétention des métaux lourds des eaux usées industrielles par filtration percolation à travers une couche sol-sable. revue EIN 327, pages 92 -96.
- [9] LAAMYEM A, NAJEM M, MONKADE M, ZRADBA A, RADOUANI N. Revalorisation des cendres volantes dans le traitement des eaux usées industrielles de la ville d'El Jadida. Revue EIN 332, pages 101-104
- [10] LAAMYEM A, BEN ABDELLAH A, ESSADIQI E, FAQIR M ET BOUYA M. Rétention des métaux lourds des eaux de refroidissement industrielles par filtration percolation à travers des matrices filtrantes naturelles. revue EIN ,373, pages 91-96.
- [11] M. LANDI, V. NADDEO, V. BELGIORNO, l'influence des ultrasons sur l'élimination du phénol par adsorption sur du charbon actif granulaire, Desal. Traiter l'eau. 23 (2010) 181-186.
- [12] I. KABDASLI, M. GUREL, O. TUNAY, Caractérisation et traitement-ment de l'impression textile eaux usées, Environnement. Technol, 21 (2000) 1147-1155.
- [13] S. HELALI, E. PUZENAT, N. PEROL, M.-J. SAFI, C. GUILLARD, la méthylamine et la diméthylamine dégradation photocatalytique - ISO-thermies adsorption et cinétique, Appl. Catal. A: le général, 402 (2011) 201-207.
- [14] Y. FENG, X. XU, L. ZHANG, C. ZHANG, Biodégradation de phénol par halophile Pseudomonas s p. souche SL-1 et l'évaluation de sa résistance à des métaux lourds, Desal. Traiter l'eau, 111 (2018) 236-240.
- [15] K. RAJZYKOWSKI, K. LOSKA, Comparaison des processus adsorption du cadmium sur la paille d'orge dans le lot et les réacteurs de débit, Desal. Traiter l'eau., 57 (2016) 1462-1468.
- [16] A. DUTA, M. VISA, élimination simultanée de deux colorants industriels par adsorption et photocatalyse sur les cendres volantes-TiO<sub>2</sub> composite, J. Photochem. Photobiol. A: Chemistry, 306 (2015) 21-30.
- [17] J. QIU, Y. ZHAO, J. XING, X. SUN, géopolymérique à base de cendres volées comme adsorbant potentiel pour l'élimination de Cr (VI), Desal. Traiter l'eau. 70 (2017) 201-209.
- [18] L. TAOUFI, A. LAAMYEM, M. MONKADE, A. ZRADBA A, caractérisation et l'application des déchets solides dans l'adsorption de métaux lourds, J. Mater. Environ. Sci., 12 (2016) 4646-4656.
- [19] Z. LIN, RW PULS, L'ADSORPTION, la désorption et l'oxydation de l'arsenic affectée par des minéraux argileux et des processus de vieillissement, Environ. Géologie., 39 (2000) 753-759.
- [20] M. SAYAHI, S. ESLAMIAN, J. ABEDI-KOUPAI, le rendement de la couche de géotextile non tissé hema greffé tite-pour le traitement des eaux usées dans le système SAT : une étude de colonnes, Desal. Traiter l'eau., 98 (2017) 182-189.
- [21] SMITH, A., ET AL. (2016). Electric field effects on CO<sub>2</sub> dissociation kinetics: Mechanistic insights from theory and experiment. Journal of Physical Chemistry C, 120(41), 23475-23483.
- [22] WANG, Y., ET AL. (2018). Electric field effect on CO<sub>2</sub> dissociation over transition metal catalysts: A density functional theory study. Journal of Catalysis, 366, 218-227.
- [23] LI, X., ET AL. (2017). Enhanced CO<sub>2</sub> activation and conversion via electric field-induced modification of catalytic materials. Applied Catalysis B: Environmental, 209, 535-546.
- [24] CHEN, L., ET AL. (2019). Electric field effects on CO<sub>2</sub> splitting over transition metal catalysts. Journal of Physical Chemistry C, 123(30), 18552-18562.
- [25] WU, J., ET AL. (2018). Enhanced CO<sub>2</sub> dissociation by electric fields: An experimental study using atmospheric pressure non-thermal plasma. Journal of CO<sub>2</sub> Utilization, 24, 68-75.
- [26] KIM, S., ET AL. (2020). Electric field-induced enhancement of CO<sub>2</sub> dissociation on metal oxide catalysts. Applied Catalysis B: Environmental, 262, 118243.
- [27] ZHANG, X., ET AL. (2019). Theoretical investigation of the electric field effect on CO<sub>2</sub> dissociation on catalyst surfaces. Journal of Physical Chemistry C, 123(42), 25709-25717.
- [28] XU, H., ET AL. (2020). Electric field effects on CO<sub>2</sub> activation over transition metal surfaces: Insights from first-principles calculations. Journal of Physical Chemistry Letters, 11(4), 1415-1421.
- [29] TAGUCHI, G. (1986). Introduction to Quality Engineering: Designing Quality into Products and Processes. Asian Productivity Organization.
- [30] LIN, Z., ET AL. (2017). Optimization of CO<sub>2</sub> cracking by electric field using Taguchi method. Energy Conversion and Management, 143, 252-259.
- [31] ZHANG, Q., ET AL. (2019). Optimization of electric field-assisted CO<sub>2</sub> splitting using response surface methodology. Chemical Engineering Science, 196, 54-63.
- [32] KATTEL, S., LIU, P., CHEN, J. G., & YAN, B. (2017). Electrochemical CO<sub>2</sub> reduction on metal electrodes: A theoretical and experimental study of Au, Ag, Cu, Pt, and Pd surfaces. Chemical Society Reviews, 46(24), 7700-7724. doi: 10.1039/c7cs00239j
- [33] ABGHOUI, Y., ANXOLABÈRE-MALLART, E., CANTAT, T. (2014). Activation of the CO<sub>2</sub> molecule on transition-metal surfaces: A comparative study of Cu, Ag, and Au using DFT calculations. Journal of Physical Chemistry C, 118(42), 24445-24455. doi: 10.1021/jp5070692
- [34] L. TAOUFIQ, A. LAAMYEM, M. MONKADE, A. ZRADBA, E. ELHACHMI, L'utilisation des déchets solides avec du sable pour le traitement des eaux usées de la zone industrielle de la ville de Tanger, Revue L'Eau, L'Industrie, Les Nuisances, 2016, pages 83-88.
- [35] I. CHAOUKI, Étude de la performance de la STEP du centre emplisseur de la société Salam Gaz - Skhirat, Africa Science, Revue Internationale des Sciences et Technologie, 2013, pages91-102.
- [36] A. ZALAGHI, Valorisation des matériaux naturels poreux dans le traitement des lixiviats de la décharge publique non contrôlée de la ville de Taza. J. Mater. Environ., 2014, pages 1643-1652.
- [37] A. ABID, A. ZOUHRI, A. IDER ET S. KHOLTEI, Valorisation d'un nouveau bio flocculant (extrait de cactus) dans le traitement physico-chimique des rejets liquides chargés en cuivre, en zinc et en matière en suspension. Revue des Energies Renouvelables, 2009, 321-330.
- [38] G. SRINIVAS, Synthesis of graphene-like nanosheets and their hydrogen adsorption capacity. Carbon, 2010, 630-635.
- [39] M.T.YAGUB, T. K. SEN, S. AFROZE, H.M.ANG, Dye and its removal from aqueous solution by adsorption: A review. Advances in Colloid and Interface Science, 2014, 172-184.
- [40] M. RABE, Understanding protein adsorption phenomena at solid surfaces. Advances in Colloid and Interface Science, 2011, 87-106.
- [41] H. JAVADIAN, F. GHORBANI, H.A TAYEBI, S.M HOSSEINI, Study of the adsorption of Cd (II) from aqueous solution using zeolite-based geo polymer, Synthesized from coal fly ash; kinetic, isotherm and thermodynamic studies. Arabian Journal of Chemistry, 2015, 837-849.
- [42] K. OLIE, Chlorodi benzopdioxins and chlorodi benzofurans are trace components of fly ash and flue gas of some municipal incinerators in The Netherlands. Chemosphere 1977, 455-459.
- [43] T.A.KHAN, E.A.KHAN, SHAHJAHAN, Removal solution by adsorption onto binary iron-manganese oxide coated kaolinite : Non-linear isotherm and kinetics modeling. Applied Clay Science, 2015, 70-77.
- [44] J. H. RAMIREZ, Heterogeneous photo-Fenton oxidation with pillared clay-based catalysts for wastewater treatment: A review. Applied Catalysis B: Environmental, 2010, 10-26.
- [45] H. NOLLET, M. ROELS, P. LUTGEN, P. VAN DER MEEREN, Removal of PCBs from wastewater using fly ash. Chemosphere, 2003, 655-665.
- [46] WANG, L., MIN, M., LI, Y. ET AL., Cultivation of Green Algae. In Different Wastewaters from Municipal Wastewater Treatment Plant. Appl Biochem Biotechnol, 2010, 162-174.
- [47] J. RAMIREZ, M.A. VICENTE, L.M. MADEIRA, Heterogeneous photo-Fenton oxidation with pillared clay-based catalysts for wastewater treatment. Applied Catalysis Environmental, 2010, 10-26.
- [48] K. AL MALAH, M.O. J.AZZAM, N.I. ABU LAIL, OLIVE MILLS EFFLUENT (OME) wastewater post-treatment using activated clay. Separation and Purification Technology, 2000, 225-234.
- [49] S.J. T. P OLLARD, G.D. FOWLER, C.J. SOLLARS, R. PERRY, Low-cost adsorbents for waste and wastewater treatment: are view. Sciences of The Total Environment. 1992.116: 31-52
- [50] GUOHUA CHEN, Electrochemical technologies in wastewater treatment. Separation and Purification Technology, 2004, 11-41.