

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

**SCIENTIFIQUE**



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

N° d'ordre : ... ..

Série : ... ..

### **Mémoire**

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

*Etude de la dégradation catalytique d'un  
colorant anionique par des catalyseurs  
spinelles  $MFe_2O_4$*

**Présenté par :**

TALBI Manel

MEZMAZ Akram Abdelmalik

BERRAHAL Adem

**Dirigé par :**

MERABET LOUBNA

**Grade** MCB

**Année universitaire**

**2022-2023**

**Session : juin**

# Sommaire

Remerciment .....	i
Dédicace.....	ii
Table des matieres.....	v
Liste des figures .....	ix
Liste des tableaux .....	xi
Liste des abreviations .....	xii
Introduction générale.....	1

## Chapitre I : Synthèse Bibliographique

I.1 Introduction.....	3
I.2 Les oxydes métalliques.....	3
I.2.1 Classification des oxydes.....	3
I.3 La synthèse des oxydes.....	4
I.4 Méthodes de synthèse des oxydes.....	4
I.4.1 Sol-gel.....	5
I.4.2 Co-précipitation.....	6
I.4.3 Avantages et inconvénients de deux méthodes Sol-gel et Co-précipitation.....	6
I.4.4 Comparaison entre les deux méthodes .....	7
I.5 Les oxydes types spinelles $MB_2X_4$ .....	7
I.5.1 Définition des spinelles : structures, compositions et propriétés.....	8
I.5.2 Les matériaux semi-conducteurs.....	9
I.6 Les colorants.....	10
I.6.1 Généralités sur les colorants.....	10
I.6.2 Classification des colorants.....	10
I.6.3 Utilisations et applications des colorants.....	10
I.6.4 Toxicité et impacts.....	11
I.7 Procèdes de Traitements des eaux.....	13

## Sommaire

---

I.8 Procèdes d'oxydations avancées.....	14
I.8.1 Les radicaux hydroxyles.....	15
I.8.2 Paramètre influencent sur l'efficacité des POA.....	15
I.8.3 L'utilisation des oxydes dans les POA.....	16
I.9 Procèdes catalytiques de traitement des eaux.....	17
I.9.1 Procèdes Fenton hétérogène.....	17
I.9.2 La photocatalyse.....	17
Références.....	19

### Chapitre II : Matériels & Méthodes

II.1 Introduction.....	23
II.2 Les Réactifs chimiques utilisés.....	23
II.3 Les solutions utilisées.....	23
II.4 Les appareils et le matériels utilisés.....	24
II.5 Préparation des catalyseurs.....	24
II.5.1 Calcul des masses.....	24
II.5.2 Protocole de préparation des catalyseurs.....	25
a) La méthode de sol-gel.....	25
b) Méthode de Co-précipitation.....	26
II.5.3 Méthodes de caractérisations.....	27
a) Analyse structurale par DRX.....	27
b) Analyse structurale par MEB.....	28
c) Infrarouge à transformé de Fourier IRTF.....	29
d) Spectroscopie X à dispersion d'énergie (EDX).....	29
II.6 Réalisation des tests catalytiques.....	29
II.6.1 Polluant étudié : méthyle orange (MO) .....	29
II.6.2 Dosage par spectrophotomètre UV-Visible.....	30
II.6.3 Dosage de MO.....	31

## Sommaire

---

a) Préparation de la solution mère.....	31
b) Détermination de la longueur d'onde maximale.....	31
c) Elaboration de courbe d'étalonnage.....	32
II.7 Effet du pH sur la stabilité du MO.....	33
II.8 Procédés expérimentales.....	33
II.8.1 Procédé photo Fenton Hétérogène (catalyseur/ lumière blanche).....	33
II.8.2 Fenton hétérogène (H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Catalyseur MFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ).....	34
II.8.3 Fenton hétérogène (H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> /DRI).....	34
Références.....	35

### Chapitre III: Résultats & discussions

III.1 Caractérisation physicochimique des oxydes MFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> .....	36
III.1.1 Introduction.....	36
III.1.2 Etude des matériaux par spectroscopie infrarouge (FTIR).....	36
III.1.3 Microscope électronique à balayage (MEB).....	37
III.1.4 Etude par analyse élémentaire (EDX).....	38
III.2 Etude de la dégradation du MO par différentes méthodes catalytiques.....	39
III.2.I Introduction.....	39
III.2.2 Procédé Fenton hétérogène.....	40
III.2.3 Analyse de l'influence des paramètres réactionnels sur l'efficacité du procédé Fenton hétérogène.....	41
a) Effet de la température T sur la dégradation du MO.....	41
b) Effet de la masse des catalyseurs Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> et CuFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> sur le procédé Fenton hétérogène..	42
c) Effet de pH sur l'efficacité des procédés Fenton hétérogène.....	43
d) Effet de la concentration initiale du peroxyde d'hydrogène.....	44
III.2.4 Modélisation de la cinétique de dégradation.....	45
a) Détermination des constantes cinétiques (a=Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> , b=CuFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ).....	46
III.3 A la recherche de nouveaux catalyseurs MFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> pour la photocatalyse du MO.....	49

## Sommaire

---

III.3.1 Introduction.....	49
III.3.2 Equilibre d'adsorption.....	50
III.3.3 Suivi de la décoloration du MO par le système $MFe_2O_4/H_2O_2/UV$ solaire.....	50
III.3.4 Test de la photo dégradation par lumière blanche en catalyse hétérogène.....	52
a) La lampe blanche.....	53
III.4 Le Fenton hétérogène avec DRI : Une alternative écologique pour préserver l'environnement.....	55
III.4.1 Procédé Fenton avec DRI.....	55
III.5 Etude comparative entre les procédés fenton hétérogène, photo fenton et photocatalyse hétérogène.....	56
Références.....	58
<b>Conclusion générale.....</b>	<b>60</b>

## **Résumé**

L'étude réalisée dans ce travail s'intéresse à la dégradation par les procédés d'oxydation avancée (les radicaux hydroxyles) d'un colorant organique appartenant à la famille des colorants anionique, appelé « Méthyle Orange ». Ce dernier est largement appliqué en tant que colorant pour tissus et pigment dans des préparations pharmaceutiques et cosmétiques. Cette substance pénètre dans l'environnement par les rejets industriels ce qui entraîne des problèmes de pollution des milieux aquifères. La dégradation de solutions aqueuses de MO a été réalisée par différents procédés d'oxydation avancée à savoir : Le procédé Fenton hétérogène, le procédé photo fenton, la photocatalyse solaire, et le Fenton avec billes de fer, en utilisant des spinelles à base de fer  $MFe_2O_4$  tant que catalyseur qui sont élaborés avec la méthode de sol gel.

**Mots clés** : Méthyle Orange, colorant, procédés d'oxydation avancée, radicaux hydroxyles, Sol-gel, spinelles, oxydes,  $MFe_2O_4$ .

## ملخص

تهتم الدراسة التي تمت في هذا العمل بتدهور صبغة عضوية تنتمي إلى عائلة الصباغات السالبة، تُسمى "ميثيل أورانج". يتم استخدام هذه الصبغة على نطاق واسع كصبغة للأقمشة والصبغة في المستحضرات الصيدلانية ومستحضرات التجميل. يتسبب انتشار هذه المادة في البيئة من خلال النفايات الصناعية في مشاكل تلوث المياه الجوفية. تم تحليل تدهور محاليل ميثيل أورانج المائية باستخدام عدة عمليات أكسدة متقدمة، وهي: عملية فينتون الغير متجانسة، وعملية فينتون الضوئية، والتفاعل الضوئي كمحفز تم الشمسي، وفينتون مع كرات الحديد، باستخدام أكاسيد الحديد على شكل نصف كرات تحضيرها بطريقة الرقيقة الهلامية.

**كلمات مفتاحية:** ميثيل أورانج، صبغة، عمليات أكسدة متقدمة، راديكالات الهيدروكسيل، رقيقة الهلام،  $MFe_2O_4$  نصف كرات، أكاسيد،

## **Abstract**

The study conducted in this work focuses on the degradation of an organic dye belonging to the family of anionic dyes, called "Methyl Orange," by advanced oxidation processes (hydroxyl radicals). This dye is widely used as a textile dye and pigment in pharmaceutical and cosmetic preparations. The substance enters the environment through industrial discharge, leading to groundwater pollution problems. The degradation of aqueous solutions of MO was carried out using various advanced oxidation processes, namely heterogeneous Fenton process, photo-Fenton process, solar photocatalysis, and Fenton with iron balls, using iron-based spinel catalysts  $MFe_2O_4$  prepared by the sol-gel method.

**Keywords:** Methyl Orange, dye, advanced oxidation processes, hydroxyl radicals, sol-gel, spinel, oxides,  $MFe_2O_4$ .