



POSSIBILITE D'ELIMINATION DU PLOMB PAR COAGULATION-FLOCCULATION AU SULFATE D'ALUMINIUM

POSSIBILITY OF ELIMINATION OF LEAD BY COAGULATION- FLOCCULATION WITH ALUMINUM SULPHATE

GUERGAZI S.¹, AMIMEUR D.², ACHOUR S.³

^(1,2,3)Laboratoire de Recherche en Hydraulique Souterraine et de Surface-
LARHYSS

^(1,3)Faculté des Sciences et de la Technologie Université de Biskra, BP 145 RP,
07000, Biskra, Algérie

⁽²⁾ Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou, Algérie

hydraulique_larhyss@yahoo.fr

RESUME

L'objectif de notre étude est d'étudier la possibilité d'éliminer le plomb par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium. Les essais sont réalisés selon le protocole du "Jar-test" en solutions synthétiques d'eau distillée. Les résultats ont montré que le rendement d'élimination du plomb est de l'ordre de 15,16 %, ce taux est correspondu à une dose optimale de coagulant de 40 mg/L. Une très bonne amélioration a été obtenue à pH supérieur à 6. En faisant varier la variation de la teneur initiale en plomb (2 à 12 mg/L), le procédé de la coagulation-floculation a subi deux phénomènes antagonistes, une augmente du rendement d'élimination du plomb avec l'augmentation de leur teneur initiale en plomb jusqu'à 8 mg/L. Puis une diminution proportionnelle des rendements au-delà de cette valeur. Pour visualiser l'efficacité de la coagulation-floculation et l'adsorption à éliminer le plomb, nous avons réalisé le couplage de la coagulation-floculation et de l'adsorption par le charbon actif en poudre comme adjuvant, cet essai a montré une bonne élimination du plomb au fur et à mesure de l'augmentation de la dose de l'adjuvant.

Mots clés : Plomb, coagulation-floculation, sulfate d'aluminium, adsorption, charbon actif en poudre

ABSTRACT

The objective of our work is to study the possibility of eliminating lead by coagulation-flocculation at the aluminum sulphate. The tests are carried out according to the protocol of the "Jar-test" in synthetic solution of distilled water. The results showed that the lead removal efficiency is of the order of 15.16%, this rate corresponded to an optimal dose of the coagulant of 40 mg / L. A very good improvement was obtained at pH greater than 6. With the change in the initial lead content (2 to 12 mg / L), the process of coagulation-flocculation has undergone two antagonistic phenomena, removal efficiencies increase with the increase of the initial content of lead until 8mg/L. Then a proportional decrease in yields in excess of this value. To visualize the effectiveness of coagulation - flocculation and adsorption to eliminate lead, we have carried out the coagulation-flocculation coupling and the adsorption by the activated carbon powder as adjuvant, this test showed good elimination of lead as the dose of the adjuvant was increased.

Key words: lead, coagulation-flocculation, aluminum sulphate, adsorption, active carbon powder

INTRODUCTION

Le plomb est un métal présent à l'état naturel dans la roche et le sol, en raison de cela et de sa pollution anthropique généralisée, il est omniprésent dans l'environnement. De ce fait, la production et l'utilisation du plomb ont augmenté de façon spectaculaire durant la révolution industrielle entraînant une libération intense de ce métal indestructible et son accumulation massive dans l'environnement (INSERM, 1999). L'utilisation des pigments au plomb dans les peintures depuis la fin du XIX^e siècle et jusqu'à une époque récente constitue une source de dispersion importante, encore très présente dans de nombreux revêtements intérieurs d'une fraction élevée de l'habitat ancien non réhabilité. De même, l'utilisation du plomb pour les canalisations du réseau de distribution publique de l'eau est une source non négligeable d'apport de plomb par ingestion d'eau contaminée (INSERM, 1999 ; Chandra et al, 2008). Le plomb compte avec le mercure et le cadmium parmi les trois contaminants les plus toxiques et fréquents de notre environnement. Il est reconnu par ces effets néfastes sur la santé humaine. À des faibles concentrations, il affecte surtout le système nerveux et peut entraîner des effets mineurs sur le développement

intellectuel des nourrissons et des enfants de moins de six ans (INSERM, 1999; Xiu et al., 2012).

En Algérie, la qualité des eaux et en particulier de surface a connu ces dernières années une grande détérioration, en raison du développement urbain et industriel (Kerboub, 2014). Les rejets des agglomérations ainsi que, ceux de l'industrie sont souvent déversés directement dans les cours d'eau sans aucun traitement préalable. Face à cette situation plusieurs études dans notre vaste pays sont rapportées sur les effets des rejets industriels et urbains sur l'évolution de la qualité des eaux de surface et souterraines (Djorfi et al, 2010 ; Baali, 2007).

Cela gouverne le but de notre étude en étudiant la possibilité d'éliminer le plomb par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium. Différents paramètres réactionnels vont être étudiés à savoir : La détermination de la dose optimale du coagulant. À partir de cette dose optimale nous aurons l'opportunité d'étudier, l'effet du pH de traitement, la variation de la teneur initiale en plomb, ainsi que l'effet du charbon actif en poudre utilisé comme adjuvant de coagulation.

Il est important de signaler que nous allons suivre certains paramètres ayant une influence sur l'efficacité du procédé tels que, la détermination du pH final, le plomb et l'aluminium résiduels.

MATERIEL ET METHODES

Solution mère de plomb

Nous avons préparé une solution mère de 1000 mg Pb / litre d'eau distillée en utilisant perchlorate de plomb ($Pb(ClO_4)_2, 3H_2O$). Ensuite, nous diluons dans des proportions différentes pour préparer des solutions de concentrations plus faibles utilisées dans le cadre de nos essais. L'eau distillée est caractérisée par un pH variant entre 5,5 et 6,8 et une conductivité comprise dans la gamme 3 et 5 $\mu s/cm$.

Solution mère de coagulant

Au cours de nos essais, nous avons utilisé comme réactif coagulant le sulfate d'aluminium en poudre ($Al_2(SO_4)_3 \cdot 18 H_2O$), préparé par dissolution dans l'eau distillée. Une solution mère de 10 g/l est préparée périodiquement.

Méthodes de dosage

Mesure du pH et de l'aluminium résiduel

Pour la mesure du pH des échantillons d'eau, nous avons utilisé un pH-mètre HANNA pH 210 muni d'une électrode combinée (Bioblock Scientific). L'appareil est étalonné avant chaque série de mesure par utilisation de deux solutions tampons de pH 4,01 et 9,18. Les mesures de l'aluminium résiduel ont été effectuées sur un photomètre de type « HANNA C100 multiparameter ion specific meter » qui permet de donner la lecture directe de la concentration (mg/L) et ce après utilisation de réactifs nécessaires à la méthode de dosage.

Dosage du plomb

Le dosage des ions Pb^{2+} dans les échantillons d'eau a été réalisé en utilisant une électrode combinée spécifique (CONSORT, ISE 30B). Cette électrode a été branchée à un pH mètre (CONSORT p800) afin de mesurer le potentiel de l'échantillon. Le rendement d'élimination du plomb est défini par :

$$R\% = \left(\frac{C_0 - C_e}{C_0} \right) \times 100$$

où C_0 est la concentration initiale du plomb et C_e sa concentration résiduelle à la fin de l'essai.

Pour mesurer la teneur du plomb dans un échantillon, on doit procéder d'abord à l'étalonnage de l'électrode spécifique, en mesurant le potentiel pour différentes solutions étalons avec des concentrations en plomb allant de 0,0008 à 20 mg/l. Nous traçons ensuite les courbes d'étalonnages en utilisant une échelle semi logarithmique. Sur la figure 1 apparaît un exemple de courbe d'étalonnage obtenu.

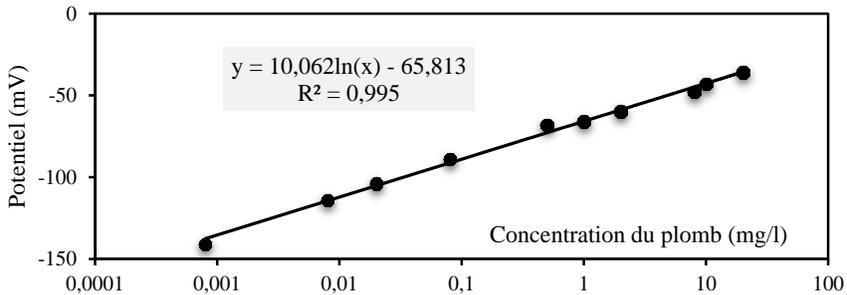


Figure 1 : Courbe d'étalonnage de la mesure des ions Pb (II).

Description des essais de coagulation-floculation

Les essais sont réalisés selon le protocole du "Jar-test" sur un flocculateur de laboratoire "Fisher 11198". Ce flocculateur à 6 agitateurs munis d'une vitesse de rotation individuelle variant entre 0 et 200 tr/min. Cet appareil permet d'agiter simultanément le liquide contenu dans une série de béchers. L'ensemble de nos essais sont réalisés en suivant les étapes suivantes :

- Une agitation rapide pendant 3 min avec une vitesse égale à 200 tr /min.
- Une agitation lente pendant 17 min avec une vitesse égale à 45 tr / min
- Une décantation durant 30 minutes.

Après décantation, le surnageant est récupéré pour être filtré et pour pouvoir mesurer la teneur du plomb résiduel et du pH de la solution.

RESULTATS ET DISCUSSION

Détermination de la dose optimale de coagulant

Dans un premier temps et sans ajustement du pH du milieu, nous avons traité selon la technique de Jar-Test une solution synthétique d'eau distillée contenant 10 mg/L du plomb, avec des doses croissantes de sulfates d'aluminium allant de 5 à 140 mg/L. Dans le but est de mettre en évidence l'effet du taux de traitement sur le pourcentage d'élimination du plomb. Après décantation et filtration sous vide, nous avons déterminé les divers paramètres les plus influencés dans cette étape, la concentration résiduelle en plomb, le pH final et l'aluminium résiduel.

A travers nos résultats (figure 2), on observe que, le rendement d'élimination du plomb augmente jusqu'à une dose de 40 mg/L de sulfate d'alumine, ce maximum correspond à un rendement de 15,16 %. Cette courbe nous montre bien que la dose de 40 mg/L représente la dose optimale. Selon Cardot (1999), une surdose en coagulant provoque la restabilisation des particules colloïdales ainsi la disponibilité de leurs sites diminue et empêche la formation des ponts interparticulaires et on aura donc une eau très chargée en coagulant avec une mauvaise clarification.

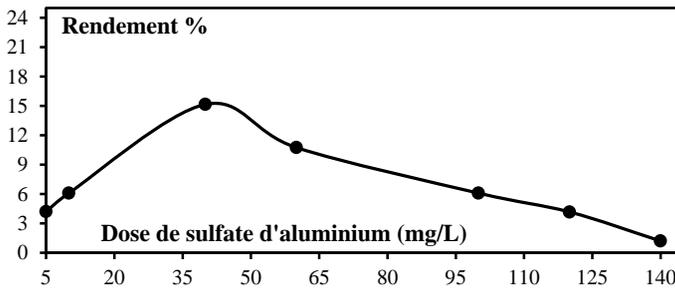


Figure 2 : Influence de la dose du coagulant sur l'élimination du plomb (10 mg/L) en eau distillée

Nous pouvons rajouter que, l'aluminium résiduel mesuré après coagulation-floculation varie entre 0,05 et 0,69 mg/L. Sachant que la concentration minimale correspond à la dose optimale du coagulant (40 mg/L). De même, les valeurs des pH finaux continuent à diminuer en augmentant la concentration du coagulant (figure 3). L'ajout du coagulant entraîne la formation d'hydroxyde du métal avec libération d'une certaine acidité (hydrolyse) ce qui explique la diminution de la valeur du pH.

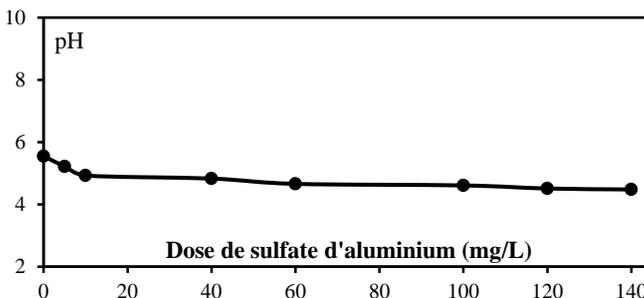


Figure 3 : Influence de la dose du coagulant sur l'évolution du pH

Effet du pH de traitement

Pour avoir un aperçu sur l'effet du pH sur le traitement, nous avons effectué des manipulations sur des solutions dopées par 10 mg/L du plomb en eau distillée avec une dose constante du coagulant (40 mg/L). Cette dernière représente la dose optimale du coagulant. La gamme du pH testée varie entre 2 à 10. Ces pH sont maintenus constants durant l'essai de coagulation-floculation, en utilisant les solutions de NaOH et HCl (0,1N).

Les résultats des essais sont présentés sur la figure 4. La courbe montre une augmentation progressive du taux d'élimination du plomb quand le pH augmente.

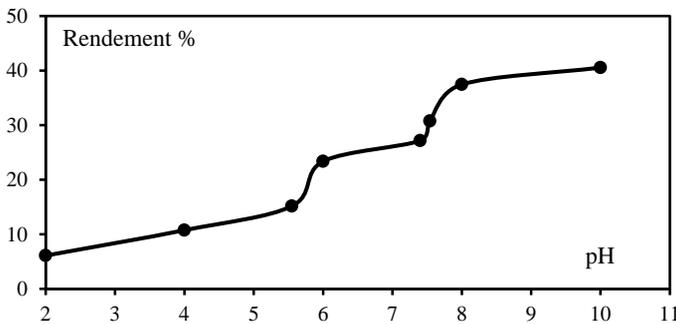


Figure 4 : Effet du pH du traitement sur l'élimination du plomb par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium

Il est important de noter que, l'étude de l'effet du pH de traitement s'avère très important du fait que ce paramètre a une influence primordiale sur la coagulation, il conditionne d'une part, les formes chimiques du coagulant. D'autre part, de la spéciation chimique du plomb qui est gouvernée par le pH du milieu. Puisque, dans l'eau le plomb peut former des espèces aqueuses hydroxylées : $PbOH^+$; $Pb(OH)_2$ et $Pb(OH)_3^-$ (Baes et Mesmer, 1976).

Ainsi, nous pouvons constater que, les très bons rendements sont obtenus aux pH supérieurs à 6. Selon les travaux de Nriagu et al, (1978) ; Hem, (1985) et Dihang, (2007) des complexes carbonatés apparaissent prédominants pour des valeurs de $pH > 6,5$ et que pour des valeurs de $pH < 6$ l'espèce Pb^{2+} devient dominante.

De ce fait, on peut mettre en évidence la présence d'autres mécanismes d'élimination tels que l'adsorption sur l'hydroxyde d'aluminium ou la

complexation avec les formes hydrolysées d'aluminium. On peut prévoir aussi la précipitation du plomb sous forme d'hydroxyde, à pH basique.

Cependant, il est intéressant de marquer que, notre résultat pourrait être confirmé par les travaux de plusieurs chercheurs (Yilmaz et al., 2008 ; Bougueurra et al., 2015 ; Larakeb, 2015) qui ont bien suggéré que l'augmentation du pourcentage d'élimination du plomb et d'autres métaux lourds par coagulation-floculation augmente avec l'augmentation du pH.

Effet de la variation de la teneur initiale en plomb

Dans cet essai, nous avons tenté d'examiner la coagulation des teneurs croissantes de plomb (2 à 12 mg/L) dissous en eau distillée par une dose de sulfate d'aluminium (SA) de 40 mg/L. La figure 5 représente l'évolution des rendements d'élimination du plomb en fonction de la variation de la teneur initiale en plomb et le tableau 1 représente les teneurs en aluminium résiduel pour l'élimination de plomb et les différents pH finaux.

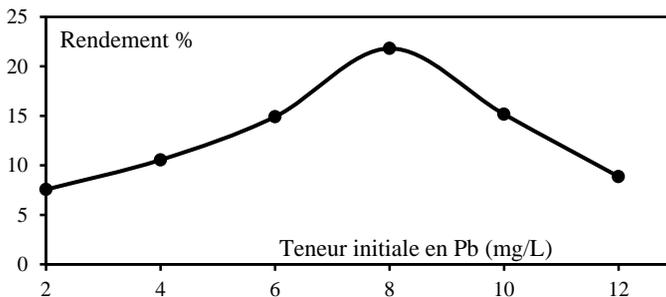


Figure 5 : Effet de teneur initiale en plomb sur le rendement d'élimination du plomb par coagulation-floculation en eau distillée (SA=40mg/l).

À travers nos résultats (figure 5), nous pouvons constater la présence de deux étapes :

Première étape : allant de 2 à 8 mg/L du plomb, on constate une augmentation du rendement d'élimination du plomb avec l'augmentation de la teneur initiale en plomb jusqu'à 8 mg/L. Signalant que le taux d'élimination de cette dernière teneur (8 mg/L) dépasse l'optimum obtenu au cours de l'essai de la variation de la dose de coagulant. Le dépassement est de 6%.

Deuxième étape : allant de 8 à 12 mg/L, on observe une diminution proportionnelle des rendements avec l'augmentation de la teneur initiale du plomb. Ceci, peut-être dû d'une part, à l'insuffisance de la quantité du coagulant que nous avons mis en œuvre (40 mg/L). D'autre part, à la diminution du pH du milieu. Une légère diminution du pH final a été observée au fur et à mesure avec l'augmentation de la teneur initiale en plomb (tableau 1). Cette légère diminution du pH influe probablement sur le taux de formation des hydroxydes d'aluminium. Ce qui traduit peut-être à la diminution des rendements.

L'ensemble de nos résultats sont comparable à ceux obtenus par Larakeb (2015) au cours de l'élimination du zinc par coagulation-floculation au sulfate d'aluminium, ainsi que Jaafarzadeh et al., (2014), qui ont testé l'élimination du zinc par coagulation-floculation avec la chitosane comme coagulant. Les résultats de ces études ont aussi montré que la concentration initiale de métal avait une relation inverse avec le pourcentage d'élimination du zinc

De même, les résultats que nous avons présentés dans le tableau 1, ont montré qu'avec l'accroissement de la teneur initiale en plomb, la concentration de l'aluminium résiduel subit une diminution plus ou moins importante, pour la gamme allant de 8 à 12 mg/L les teneurs résiduelles en aluminium entrent bien dans les normes recommandées par JORA (2011).

Tableau 1 : pH final et teneurs résiduelles en aluminium après traitement
([Pb²⁺]₀=2 -12 mg/l, [SA]=40mg/l).

Pb (mg/L)	2	4	6	8	10	12
pH Final	4,78	4,64	4,6	4,52	4,83	5,51
Al résiduel (mg/L)	0,19	0,16	0,15	0,10	0,03	0,07

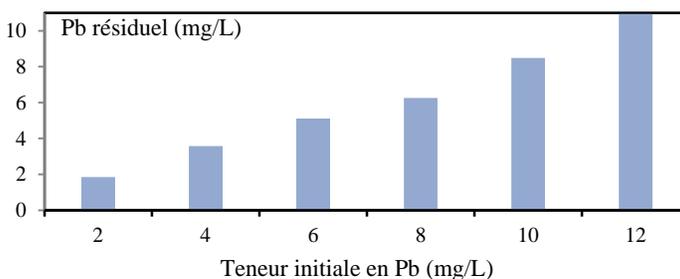


Figure 6 : Evolution du plomb résiduel en fonction de la variation de la teneur initiale en plomb

Dans le même contexte et au vu de nos résultats qui sont présentés sur les histogrammes de la figure 6, on observe que les teneurs résiduelles en plomb obtenus dans tous nos essais ne sont pas conformes à la norme de potabilité ce qui mène à dire que le traitement nécessite soit une dose plus élevée du coagulant ou bien l'ajout d'un adjuvant de coagulation tel que le charbon actif en poudre.

Signalant que, la norme algérienne de potabilité pour le plomb (JORA, 2011) ainsi que, la valeur guide fixée par l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) est de 10 µg/l (OMS, 2000).

Effet de la présence d'un adjuvant de coagulation - floculation

Pour visualiser l'efficacité de la coagulation-floculation et de l'adsorption à éliminer le plomb, nous avons réalisés le couplage de coagulation- floculation et de l'adsorption par le charbon actif en poudre (CAP). Les essais ont été menés selon le protocole déjà décrit de Jat-Test. La dose optimale de coagulant est de 40 mg/L, déterminée au préalable au cours de l'évolution de la dose optimale du coagulant. Dans des béchers de 500 ml on a introduit des doses croissantes d'adjuvant (charbon actif en poudre) variant de 0,20 à 2 g/L. Sans ajustement du pH nos essais ont été réalisés en eau distillée dont les résultats que nous avons obtenus sont présentés sur la courbe de la figure 7.

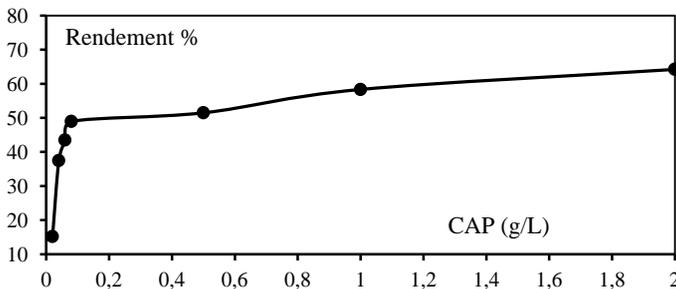


Figure 7 : Effet de la dose de l'adjuvant de coagulation-floculation sur le rendement d'élimination du plomb en eau distillée ($[Pb]_0=10\text{mg/L}$).

D'après les résultats obtenus (figure 7), nous remarquons que les rendements d'élimination du plomb augmentent au fur et à mesure avec l'augmentation de la dose de l'adjuvant. Les floes formés sont importants et décantent rapidement (décantation en piston), contrairement à l'utilisation du sulfate d'alumine seul (décantation diffuse).

En analysant nos résultats, nous pouvons remarquer que, les capacités d'élimination des ions Pb^{2+} en présence du charbon actif en poudre sont supérieures aux capacités d'élimination du plomb après coagulation au sulfate d'aluminium (figure 2). Ceci est probablement dû disponibilité des sites d'adsorption du charbon actif en poudre pour les cations métalliques (plomb).

Au vu de nos résultats que nous avons présentés sur les histogrammes de la figure 8, on constate que la concentration du plomb résiduel est toujours supérieure à la norme recommandée (10 $\mu\text{g/l}$) par les organismes JORA (2011) et l'OMS (2000), malgré les bons rendements que nous avons obtenus.

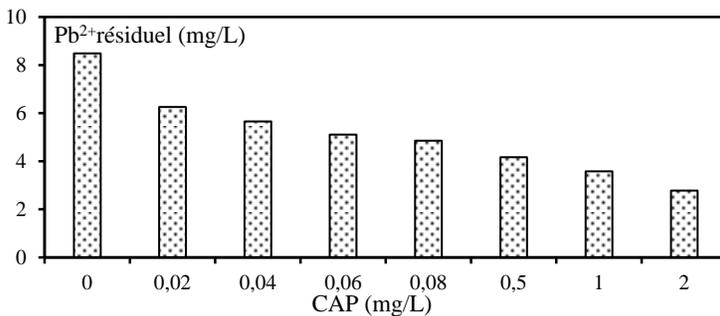


Figure 8 : Effet de la dose de l'adjuvant de coagulation-floculation sur l'évolution du plomb résiduel ($[Pb^{2+}]_0=10\text{mg/l}$, $SA=40\text{mg/l}$).

CONCLUSION

L'objectif de notre étude est de tester la possibilité d'élimination du plomb par coagulation – floculation au sulfate d'aluminium. À partir des conditions opératoires posées et les paramètres réactionnels que nous avons testés, nous pouvons conclure que :

Avec la variation de la dose du coagulant, le rendement optimal du plomb est obtenu à une dose de 40 mg/L. Cet optimum est accompagné par une diminution du pH.

La variation du pH a une influence appréciable sur le taux d'élimination du plomb, l'ensemble de nos résultats ont enregistré une augmentation des rendements avec l'augmentation du pH du milieu.

Parallèlement à cet essai, la variation de la teneur initiale en plomb induit deux phénomènes antagonistes : une augmentation dans le taux d'élimination du plomb est apparue dans un intervalle allant de 2 à 8 mg/L. Puis une diminution

dans les rendements d'élimination du plomb dans l'intervalle 8 à 12 mg/l. Au cours de cet essai, nous avons également marqué que le plomb résiduel dépasse toujours les normes de potabilité.

En fin, l'utilisation du charbon actif en poudre comme adjuvant de coagulation a induit une amélioration acceptable dans l'élimination du plomb. Mais, malgré ce perfectionnement, le résiduel en plomb dépasse toujours les normes. Ces résultats obligeront les traiteurs d'eaux à coupler ce procédé avec un autre procédé ayant pour but l'élimination du résiduel en plomb.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BAALI F., ROUABHIA A., KHERICI N., DJABRI L., BOUCHAOU L., HANI A. (2007). Qualité des eaux souterraines et risque de pollution en milieu semi-aride. Cas de la cuvette de Chéria (NE Algérien), *Estudios Geológicos*, Vol 63, N°2, 127-133.
- BAES, C.F. AND MESMER, R.E. (1976) *The hydrolysis of cations*. John Wiley, New York pp 489, ISBN 0471039853.
- BOUGUERRAA, W. ; BARHOUMIB, A. ; IBRAHIMB, N. ; BRAHMIA, K. ; ALOUIB, L. ; & HAMROUNIA, B. (2015). Optimization of the electrocoagulation process for the removal of lead from water using aluminium as electrode material. *Journal of Desalination and Water Treatment*.p.1-10.
- CARDOT, C. (1999). *Les traitements de l'eau. Procédés physico-chimiques et biologiques*. Ellipses Edition Marketing S.A.
- CHANDRA, P. DWIVEDI ; SAHU, J.N ; MOHANTY, C.R ; RAJ MOHAN, B. ; MEIKAP, B.C. (2008). Column performance of granular activated carbon packed bed for Pb(II) removal. *Journal of Hazardous Materials* 156 p 596–603.
- DIHANG, M. D. (2007). *Mécanismes de coagulation et de floculation de suspensions d'argiles diluées rencontrées en traitement des eaux*. Thèse de Doctorat, Université PAUL SABATIER, TOULOUSE III. Paris.
- DJORFI, S. , FOUFOU, A., MAJOUR, H., BELLOLOU, L., HANI. A. , DJABRI, L. (2010). Impact de la décharge publique de Annaba sur la qualité des eaux de la plaine de l'Oued Zeid, N° 8, 150-157.
- HEM, J.D., 1985. *Study and interpretation of the chemical characteristics of natural water*. US Geological Survey Water Supply Paper 2254, US Geological Survey, Alexandria Virginia.

- INSERM, (1999) (Institut National de la Santé et de la Recherche Médicale). Plomb dans l'environnement : Quels risques pour la santé. Rapports d'expertise collective : URL <http://hdl.handle.net/10608/195>.
- JAAFARZADEH, N., MENGELIZADEH, N., TAKDASTAN, A., ALAVI NA., HORMOZI, N. M., MOSHAYYEDI, M. (2014). Efficiency evaluation of Zn and Ni removal through coagulation and flocculation process using chitosan. *Jentashapir J Health .Res* 2014;5(1), p451-459.
- JORA. (2011). (Journal Officiel de la République Algérienne) La qualité de l'eau de consommation humaine. Décret exécutif N° 11-125 du 17 rabie ethani 1432. Imprimerie officielle. Les vergers : Bir-Mourad Raïs. Alger. Algérie.
- KERBOUB, D. ; FEHDI .C (2014). Impact des rejets urbains et industriels sur la qualité des eaux souterraines : cas de la région d'El Kantar, Sud-Est Algérien, *Afrique science* 10(1) (2014) 127 – 138.
- LARAKEB, M. (2015). Elimination du zinc par adsorption et par coagulation flocculation, Thèse de doctorat LMD en hydraulique urbaine, université de Biskra, Algérie.
- NRIAGU JO., (1978). The biogeochemistry of lead in the environment. Ed JO Nriagu, Elsevier Biomedical Press, Amsterdam.
- O.M.S (Organisation mondiale de la Santé) (2000). Plomb, In Directive de qualité pour l'eau de boisson ; Volume 2 - Critères d'hygiène et documentation à l'appui Organisation mondiale de la Santé, Genève, pp. 340-363.
- XIU-W. W ; HONG-W. MA ; JING. Y ; FENG. J. W. ; ZHI-H. L, (2012). Adsorption of Pb(II) from aqueous solution by a poly-elemental mesoporous adsorbent. *Journal of Applied Surface Science*, 258 p 5516-5521.
- YILMAZ, A.E. BONCUKCUOĞLU R. KOCAKERIM, M.M. YILMAZ, M.T. PALULUOĞLU C. (2008). Boron removal from geothermal waters by electrocoagulation, *J. Hazard. Mater.* 153(1-2) 146-151.