



AVIS DE SOUTENANCE DE THESE

Le Doyen de la Faculté des Sciences Dhar El Mahraz –Fès – annonce que

Mr : **BENJELLOUN Youssef**

Soutiendra : le 27/02/2020 à 16H

Lieu : Centre de visioconférence

Une thèse intitulée :

Développement de nouveaux systèmes catalytiques pour l'oxydation avancée de la matière organique

En vue d'obtenir le Doctorat

FD : Ressources Naturelles, Environnement et Développement Durable (RNE2D)

Spécialité : Matériaux et Génie des Procédés

Devant le jury composé comme suit :

	NOM ET PRENOM	GRADE	ETABLISSEMENT
Président	Pr. AIT ICHOU Ihya	PES	Faculté des Sciences - Agadir
Directeur de thèse	Pr. ZERROUQ Farid	PES	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz - Fès
Rapporteurs	Pr. ASSABANE Ali	PES	Faculté des Sciences - Agadir
	Pr. RAADA Abdelazize	PES	Faculté des Sciences et Techniques-Errachidia
	Pr. MOURAD Youssef	PES	Ecole Supérieure des de Technologie - Fès
Membres	Pr. LAHRICHI Anissa	PES	Faculté de Médecine et de Pharmacie - Fès
	Pr. LAIRINI Sanae	PH	Ecole Supérieure des de Technologie - -Fès
	Pr. TALEB Mustapha	PES	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz - Fès

Résumé :

Au cours de cette étude, nous avons cherché à développer de nouveaux systèmes catalytiques hétérogènes, et évaluer leurs performances pour l'élimination des colorants textile, séparément ou en solution binaire et ternaire, dans le cadre du procédé d'oxydation catalytique par voie humide utilisant le peroxyde d'hydrogène. Ce procédé employant le H_2O_2 comme oxydant, présente l'avantage de générer des radicaux hydroxyles hautement actifs, capables d'oxyder n'importe quelle molécule organique jusqu'au stade ultime d'oxydation, tout en respectant l'environnement. La première phase de ce travail implique la préparation de neuf séries de catalyseurs solides à base de cuivre ou de fer par la méthode d'imprégnation par voie humide. La particularité de cette étape tient à la valorisation d'un sous-produit de la centrale thermique de Jorf Lasfar, appelé les *Cendres Volantes*, pour de la synthèse de nos matériaux catalytiques. L'analyse morphologique et structurale des cendres volantes brutes et des trois catalyseurs les plus performants a été réalisée par deux techniques instrumentales, la diffraction des rayons X (*DRX*) et la microscopie électronique à balayage (*MEB*). En tant que substances persistantes, toxiques et largement utilisées en industrie textile, les trois colorants synthétiques, *Rouge direct 28*, *Noir à mordant 11* et *Violet basic 3*, présentent un danger sérieux vis-à-vis de l'écosystème aquatique. Par conséquent, l'activité des trois catalyseurs *7,5Cu-CV*, *5Cu.3Fe-CV* et *4Fe-CV* a été examinée lors de la dégradation des trois polluants organiques *RD28*, *NM11* et *VB3*, respectivement. Ensuite, l'influence de certains paramètres expérimentaux tels que la dose du catalyseur, sa teneur en métal, les concentrations initiales du colorant et de l'oxydant, le *pH* du milieu et la température de réaction a été étudiée. De manière significative, les systèmes utilisés révèlent une efficacité exceptionnelle, une sélectivité positive et une stabilité satisfaisante qui peut être améliorée. Ainsi, dans les conditions optimales, les taux d'abattement ont dépassé les 95 %. Les résultats obtenus montrent que l'oxydation catalytique est davantage impactée par le type de catalyseur, la dose de l'oxydant et le *pH* du milieu. L'oxydation catalytique de trois systèmes contenant des mélanges de polluants a été étudiée en appliquant la méthode des plans d'expérience. Un plan factoriel complet à trois niveaux permet la modélisation du procédé de traitement et montre l'effet des paramètres principaux et des interactions entre eux. En outre, les résultats enregistrés montrent que le taux d'abattement maximum, du mélange *RD28/NM11*, nécessite l'utilisation du catalyseur bimétallique *5Cu.Fe-CV*, en ajoutant $40,74 \text{ mmol}$ de H_2O_2 et en mettant le milieu réactionnel à *pH* 5. Le même catalyseur révèle le meilleur taux d'abattement pour le mélange *RD28/NM11/VB3* à un *pH* plus faible (*pH* 3) avec l'ajout de seulement $32,46 \text{ mmol}$ de H_2O_2 . Tandis que le taux d'abattement maximal du mélange *RD28/VB3*, entraîne l'application du catalyseur monométallique *7,5Cu-CV* à *pH* 11 et en ajoutant aussi $32,46 \text{ mmol}$ de H_2O_2 .

Mots-clés : colorants textile, cendres volantes, imprégnation, catalyseur hétérogène, *CWPO*, modélisation, optimisation.

Development of new catalytic systems for advanced oxidation of organic matter

Abstract:

During this study, we sought to develop new heterogeneous catalytic systems and evaluate their performance for the removal of textile dyes, singly or in binary and ternary solutions, within the framework of the Catalytic Wet Peroxide Oxidation (CWPO) process. This process employing H_2O_2 as an oxidant, has the advantage of generating highly active hydroxyl radicals, able to oxidizing any organic molecule to an ultimate oxidation stage while being respectful to the environment. The first step of this work involves the preparation of nine series of solid catalysts based on copper or iron by the wet impregnation method. The particularity in this stage is the valorization of a by-product of the Jorf Lasfar thermal power plant, called *Fly ash*, for the synthesis of our catalytic materials. The morphological and structural analysis of raw fly ash and the three most efficient catalysts was performed by two instrumental techniques, X-Ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy (SEM). As persistent substances, toxic and widely applied in the textile industry, the three synthetic dyes, *Red Direct 28*, *Mordant Black 11* and *Basic Violet 3* pose a serious threat to the aquatic ecosystem. Therefore, the activity of the three catalysts *7.5Cu-FA*, *5Cu.3Fe-FA* and *4Fe-FA* was examined, during the degradation of the three organic pollutants *RD28*, *MB11* and *BV3*, respectively. Afterward, the influence of various experimental parameters such as catalyst dose, metal content, initial dye and oxidant concentrations, medium *pH* and reaction temperature was investigated. Significantly, the used systems reveal an exceptional efficiency, a positive selectivity and a satisfactory stability that can be improved. Thus, under optimal conditions, the removal rates have remarkably exceeded 95 %. In parallel, the results obtained indicate that the catalytic oxidation is more impacted by the type of catalyst, the oxidant amount and the medium *pH*. The catalytic oxidation of the three multi-polluted systems was studied by applying an experimental design. This three-level complete factorial design allows the modelling of the treatment process and shows the effect of both, main parameters and interactions between them. Moreover, the recorded results indicate that the maximum rate removal of the *RD28/MB11* mixture requires the use of the bimetallic catalyst *5Cu.3Fe-CV* with the addition of 40.74 mmol of H_2O_2 and by putting the reaction medium at *pH* 5. The same catalyst reveals the best removal rate for *RD28/MB11/BV3* mixture at a lower *pH* value (*pH* 3) with the addition of only 32.46 mmol of H_2O_2 . While the maximum removal rate of the *RD28/BV3* mixture results in the application of the monometallic catalyst *7.5 Cu-CV* at *pH* 11 and also by adding 32.46 mmol of H_2O_2 .

Keywords: textile dyes, fly ash, impregnation, heterogeneous catalyst, CWPO, modelling, optimization.