

Nom et prénom	Etablissement	Grade	Qualité
Pr. OUAZZANI Kamar	Ecole Supérieure de Technologie, Fès	PES	Président
Pr. DRAOUI Khalid	Faculté des Sciences, Tétouan	PES	Rapporteur
Pr. TALEB Abdeslam	Faculté des Sciences et Techniques, Mohammedia	PES	Rapporteur
Pr. ZAITAN Hicham	Faculté des Sciences et Techniques, Fès	PES	Rapporteur
Pr. BENIKEN Mustapha	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	MCH	Examineur
Pr. KHERBECHE Abdelhak	Ecole Supérieure de Technologie, Fès	PES	Expert
Pr. ADDAOU Abdellah	Ecole Supérieure de Technologie, Fès	PES	Co-directeur de thèse
Pr. LAAJEB Ali	Ecole Supérieure de Technologie, Fès	PES	Directeur de thèse



Résumé :

L'accumulation de substances aromatiques toxiques, telles que le phénol, dans les milieux aquatiques constitue une menace croissante pour l'environnement et la santé humaine. Ce polluant organique persistant est principalement associé aux rejets industriels et se distingue par sa résistance aux traitements traditionnels. Les procédés d'oxydation avancés (AOP) ont montré un fort potentiel pour la dégradation intégrale et rapide de ces produits chimiques complexes. Dans le cadre de cette étude, nous avons développé un catalyseur hétérogène, à base d'illite naturelle imprégnée de fer (Fe@SCRT), destiné à l'élimination catalytique du phénol en milieu aqueux. Ce rapport s'articule autour de six chapitres couvrant les enjeux environnementaux, les propriétés des matériaux argileux, les principes des AOP, ainsi que la préparation, la caractérisation et l'optimisation des performances du catalyseur. Le processus de préparation du catalyseur a nécessité plusieurs étapes : extraction de l'illite brute, purification, traitement acide, calcination et imprégnation métallique à trois teneurs en fer (3-5-7 %), et leurs propriétés catalytiques ont été évaluées dans le système hétérogène de type Fenton. Par la suite, le catalyseur retenu (5 % Fe@SCRT) a été étudié dans les quatre systèmes différents : Fenton, Sono-Fenton, Photo-Fenton et Sono-Photo-Fenton pour les différents paramètres réactionnels testés (pH, concentration en polluant, température, teneur en H_2O_2 , dosage catalytique, et pourcentage de fer dans le catalyseur).

À la lumière des résultats obtenus, il a été constaté que le catalyseur présente des performances notables ; ainsi, les taux de dégradation du phénol dépassent 98 % dans des conditions optimales (pH 3, masse du catalyseur 1 g/L, concentration initiale de phénol 200 mg/L, catalyseur Fe@illite à 5 %, concentration en H_2O_2 100 μ l/100 ml). De plus, les analyses HPLC ont mis en évidence la formation d'intermédiaires aromatiques tels que le catéchol, l'hydroquinone, le résorcinol et la benzoquinone, qui ont été progressivement oxydés en acides carboxyliques de faible poids moléculaire (formique, acétique, oxalique), confirmant une voie de minéralisation avancée du phénol. Des tests de piégeage (scavengers) ont été réalisés pour identifier les espèces réactives dominantes ($\bullet OH$, $\bullet O_2^-$, h^+), confirmant le rôle prédominant des radicaux hydroxyles dans le processus. Une bonne stabilité et la possibilité de régénération du catalyseur sur plusieurs cycles ont été observées. Les résultats des analyses complémentaires (DCO, tests de germination et de toxicité) montrent une réduction significative de la charge organique et de la toxicité après traitement.

Dans ce contexte, plusieurs articles ont été publiés dans différents journaux scientifiques internationaux indexés, confirmant l'efficacité du catalyseur à base d'illite modifiée pour la dégradation des polluants organiques et leur pertinence pour des applications environnementales réelles.

Mots clés :

Oxydation avancée, catalyse hétérogène, argiles naturelles modifiées, illite, procédé Fenton, phénol, photo-Fenton, Sono-Fenton, HPLC-DAD.



CATALYTIC OXIDATION OF AROMATIC COMPOUNDS IN DILUTE AQUEOUS MEDIA USING MODIFIED NATURAL CLAYS

Abstract :

The accumulation of toxic aromatic substances, such as phenol, in aquatic environments poses an increasing threat to the environment and human health. This persistent organic pollutant is mainly associated with industrial discharges and is distinguished by its resistance to traditional treatments. Advanced oxidation processes (AOP) have shown a high potential for the integral and rapid degradation of these complex chemicals. As part of this study, we have developed a heterogeneous catalyst, based on natural illite impregnated with iron (Fe@SCRT), intended for the catalytic elimination of phenol in aqueous medium. This manuscript is structured around six chapters covering environmental issues, the properties of clay materials, the principles of PDO, as well as the preparation, characterization, and optimization of catalyst performance. The catalyst preparation process required several steps: extraction of the crude illite, purification, acid treatment, calcination, and metal impregnation with three iron contents (3-5-7 %), and their catalytic properties were evaluated in the heterogeneous Fenton-type system. Subsequently, the catalyst selected (5% Fe@SCRT) was studied in the four different systems: Fenton, Sono-Fenton, Photo-Fenton, and Sono-Photo-Fenton for the various reaction parameters tested (pH, pollutant concentration, temperature, H₂O₂ content, catalytic assay, and percentage of iron in the catalyst).

In light of the results obtained, it has been found that the catalyst exhibits notable performances; thus, the phenol degradation rates exceed 98% under optimal conditions (pH 3, catalyst mass 1 g/L, initial phenol concentration 200 mg/L, Fe@illite catalyst at 5%, H₂O₂ concentration 100 µl/100 ml). In addition, the HPLC analyses revealed the formation of aromatic intermediates such as catechol, hydroquinone, resorcinol, and benzoquinone, which were gradually oxidized to low molecular weight carboxylic acids (formic, acetic, oxalic), confirming an advanced phenol mineralization pathway. Scavenger tests were carried out to identify the dominant reactive species ($\bullet\text{OH}$, $\bullet\text{O}^{2-}$, h^+), confirming the predominant role of hydroxyl radicals in the process. Good stability and the possibility of regeneration of the catalyst over several cycles have been observed. The results of the complementary analyses (COD, germination, and toxicity tests) show a significant reduction in the organic load and toxicity after treatment.

In this context, several articles have been published in various international, indexed scientific journals, confirming the effectiveness of the modified illite-based catalyst for the degradation of organic pollutants and their relevance for real environmental applications.

Key Words :

Advanced oxidation, heterogeneous catalysis, modified natural clays, illite, Fenton process, phenol, photo-Fenton, sono-Fenton, HPLC-DAD.