

ETUDE DE L'OXYDATION FENTON ($\text{Fe}^{2+}/\text{H}_2\text{O}_2$) DU PARACETAMOL

N. Ouazene¹ F Boumechhour¹ N. Nasri² N. Khelouati²

1- Laboratoire de Recherche en Technologie Alimentaire, LRTA- UMBB, Boumerdès

2- Dpt génie de l'Environnement- FSI- UMBB Boumerdès

ouazene_naima@yahoo.fr

Résumé

La contamination des eaux et des sols par des résidus pharmaceutiques constitue une préoccupation environnementale émergente. De nos jours, le paracétamol est devenu un des analgésiques et les plus utilisés chez l'homme. Il est présent notamment dans le «Doliprane», l'«Efferalgan»... Son efficacité, sa bonne tolérance, son profil pharmacocinétique, son coût et son acceptabilité en font le médicament de première intention dans le traitement de la douleur d'intensité légère à modérée. Le paracétamol est le produit pharmaceutique le plus retrouvé dans les milieux aquatiques et dans les effluents de stations d'épuration urbaines [1] ce qui a motivé notre choix pour ce polluant type. L'objectif de ce travail est une modeste contribution à l'étude de l'oxydation Fenton du paracétamol en analysant les paramètres de l'oxydation. Les paramètres étudiés dans le cadre de ce travail sont : la quantité de fer mis en jeu, la concentration de peroxyde d'hydrogène, la valeur du pH et le temps de contact. Pour choisir le pH optimum, Nous avons fait varier le pH de 1.5 à 4 en fixant tous les paramètres de la réaction, le meilleur taux d'élimination du paracétamol a été trouvé à pH=2.6. La concentration de fer qui a donné le meilleur taux d'élimination est de 15mg/L et un rapport molaire $[\text{H}_2\text{O}_2]/[\text{P}]$ optimal de 10 a été obtenu.

Mots clés : Paracétamol, polluants émergents, résidus pharmaceutiques, oxydation Fenton, catalyseur,

1. INTRODUCTION

Parmi les pollutions importantes et bien répertoriées, en plus des pesticides et autres polluants organiques persistants(POP), les produits pharmaceutiques sont maintenant ciblés [1].

Chaque année, des milliers de tonnes de produits pharmaceutiques sont utilisées en médecine humaine et en médecine vétérinaire. Chez l'humain, les médicaments sont notamment utilisés pour le traitement des symptômes, des maladies et du stress et pour la prévention des grossesses... Dans les domaines de l'agriculture et de l'aquaculture, les produits pharmaceutiques servent principalement au contrôle des parasites et à la stimulation de la croissance des élevages [2].

Des études ont mis en relief la présence de plus de 80 produits pharmaceutiques dans les eaux usées de plusieurs municipalités américaines et européennes. Plusieurs effluents municipaux présentent des concentrations de produits pharmaceutiques variant du nano gramme au microgramme, un exemple pour le paracétamol : 55.3-292 microgrammes par litre retrouvé à l'entrée de station d'épuration [1].

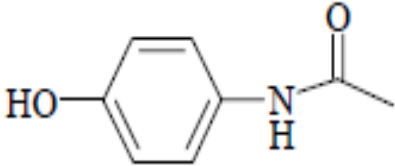
Cette prise de conscience incite à participer à la rémédiation de ces pollutions émergentes, en testant des procédés nouveaux sur des produits pharmaceutiques fréquemment retrouvés à concentration significative dans les milieux aquatiques [1].

2- MATERIEL ET METHODES

L'objectif de ce travail est l'étude de l'élimination du paracétamol par oxydation Fenton (H_2O_2/Fe^{2+}). Pour cela des volumes de 250ml de paracétamol à 50mg/L ont été mis en contact, sous agitation continue, pendant une heure de temps, à température ambiante $\sim 20C^\circ$, avec un volume défini de H_2O_2 en présence d'une quantité connue de catalyseur Fe^{2+} . En prenant la précaution de manipuler à l'abri de la lumière. Une étude paramétrique a été suivie pour fixer les paramètres optimums. Ainsi l'influence du pH, l'effet de la concentration du catalyseur et l'effet du rapport $[H_2O_2]/ [paracétamol]$ ont été étudiés. L'élimination du paracétamol dans le milieu, a été suivie par la mesure de la demande chimique en oxygène DCO.

Les principales caractéristiques du paracétamol sont regroupées dans le tableau 1

Tableau 1 . Caractéristiques du paracétamol

Formule chimique	Masse molaire g/mole	Absorbance UV	Nom chimique
	151.2	240 nm	N-Acetyl-p Amino Phénol

3-OPTIMISATION DES PARAMETRES DE L'OXYDATION

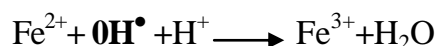
3-1 Influence du pH

Le tableau 2 présente l'évolution de DCO en fonction du pH du milieu réactionnel

Tableau 2 - Influence du pH sur l'élimination de la DCO

pH	1.51	2.06	2.6	2.8	3.07	4
Taux d'élimination R(%) DCO	33.94	47.16	55.08	44.55	33.21	34.77

La réaction de Fenton a lieu en milieu très acide (pH= 2 à 4) pour prévenir la précipitation des sels de fer (particulièrement les sels ferriques) en hydroxydes correspondants. En effet, pour des valeurs de pH plus élevées (> 4), les ions ferriques se précipitent sous forme d'hydroxyde de fer Fe (OH)₃. Ce précipité étant très stable, la réduction du Fe³⁺ en Fe²⁺ devient très lente et la régénération de Fe²⁺, comme initiateur de production de radicaux (OH[•]) devient l'étape cinétiquement limitante du procédé [3]. Cependant, si la concentration en protons est trop élevée, il peut y avoir consommation des radicaux hydroxyles par la demi-réaction rédox ci-dessous dont la constante de vitesse est relativement élevée [3].



Dans le présent travail on note que l'efficacité du procédé est optimale à pH=2.6

3.2- Influence de la concentration du catalyseur

Le tableau 3 présente le taux d'élimination de la DCO en fonction de la concentration de Fe²⁺.

Tableau 3- Influence de la [Fe²⁺] sur l'élimination du polluant

[Fe²⁺] (mg/L)	0	5	10	12.7	15	17.5
Taux d'élimination R(%) DCO	0.86	28.66	33.94	44.51	55.08	47.16

Une augmentation de la concentration en fer accélère la cinétique de la réaction sans influencer le rendement. Cependant, un excès de réactifs peut avoir un comportement de facteur limitant car Fe²⁺ et H₂O₂ peuvent devenir des pièges pour les radicaux hydroxyles et ainsi provoquer une diminution de la cinétique de dégradation de la matière organique par inhibition de la réaction de Fenton [4]. Dans le cadre de ce travail, la concentration optimale du catalyseur est de 15mg/L.

3.3 Influence du rapport molaire [H₂O₂] / [Polluant]

Les résultats de l'influence du rapport molaire [H₂O₂] / [P] sur l'efficacité du procédé Fenton sont présentés dans le tableau .3

Tableau 3- Influence du rapport [H₂O₂] / [P]

Rapport molaire [H₂O₂]/[P]	5	8	10	15	21	25	30
R(%) DCO	23.37	49.8	55.08	53.76	45.69	33.94	10.17

Une augmentation due rapport 5 a 10 améliore l'efficacité du procédé Fenton. Après 60 min de traitement, le taux d'abattement de la DCO augmente de 23.37 à 49.80 et enfin à

55.08 % pour les rapports respectivement de 5,8 et 10. En effet l'augmentation graduelle de la concentration du peroxyde d'hydrogène permet la production d'une quantité plus élevée des radicaux hydroxyles nécessaires à l'oxydation de la matière organique. Toutefois, l'augmentation excessive de la dose de H_2O_2 a un effet négatif sur l'abattement de la DCO. Ce phénomène peut s'expliquer par l'accélération des réactions parasites qui consomment les radicaux Hydroxyles [5]. Dans le cadre de ce travail, le rapport molaire $[H_2O_2] / [P]$ optimal est de **10mg/L**.

4- Conclusion

L'étude paramétrique de l'oxydation Fenton du paracétamol a révélé les résultats suivants ; un pH optimal $pH=2.6$. Une concentration optimale en fer de 15mg/L et un rapport molaire $[H_2O_2]/[P]$ optimal de 10.

Comme suite à ce travail, nous préconisons

- Une étude cinétique à différentes concentrations initiales et à différents pH pour déterminer la vitesse de réaction.
- L'étude et l'identification des produits de dégradation organiques.
- L'étude de l'oxydation du produit fini (le médicament paracétamol en vente).

Références

- [1] : **F.A.VELICHKOVA** «Vers un procédé Fenton hétérogène pour le traitement en continu d'eau polluée par des polluants pharmaceutiques » Thèse de doctorat ; Université de Toulouse ; 2014.
- [2] : **J.M. PEPIN** « Impacts Ecotoxicologiques de Certains Médicaments dans l'Environnement » obtention du grade de maître en Environnement ; Centre Universitaire de formation en Environnement Université de Sherbrooke ; Québec, Canada, 2006.
- [3] : **W.Z. TANG, CP. HUANG** «2,4-Dichlorophenol Oxidation Kinetics by Fentoirsreagent» Environ. Sci. Technol,V. 17, 1371-1378 ; 1996
- [4] : **M.PIMENTEL, N.OTURAN, M.DEZOTTI** « Phenol Degradation by Advanced Electrochemical Oxidation Process Electro-Fenton Using a Carbon FeltCathode. » Appl. Catal. B: Environ,V.83, 140-149 ; 2008.
- [5] : **G. KAICHOUH, N.OTURAN, K. EL. KACEMI** «Degradation of the Herbicide Imazapyr by Fenton Reactions » Environ. Chem. Lett, V. 2, 31-33 ; 2004.