

Impact de fibres cellulosiques fonctionnalisées aux (hydr)oxydes de fer en traitement des eaux

par

Manel MEBARKI

MÉMOIRE PAR ARTICLES PRÉSENTÉ À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE
SUPÉRIEURE COMME EXIGENCE PARTIELLE À L'OBTENTION DE LA
MAÎTRISE AVEC MÉMOIRE EN GÉNIE DE L'ENVIRONNEMENT
M. Sc. A.

MONTREAL, LE 28 JUILLET 2025

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

© Tous droits réservés, Manel Mebarki, 2025

©Tous droits réservés

Cette licence signifie qu'il est interdit de reproduire, d'enregistrer ou de diffuser en tout ou en partie, le présent document. Le lecteur qui désire imprimer ou conserver sur un autre media une partie importante de ce document, doit obligatoirement en demander l'autorisation à l'auteur.

PRÉSENTATION DU JURY
CE MÉMOIRE A ÉTÉ ÉVALUÉ
PAR UN JURY COMPOSÉ DE :

M. Mathieu Lapointe, directeur de mémoire
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

Mme Claudiane Ouellet-Plamondon, présidente du jury
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

Mme Josiane Nikiema, membre du jury
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

IL A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC

LE 17 JUILLET 2025

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à mon directeur de recherche, Mathieu Lapointe, pour la qualité exceptionnelle de son encadrement, sa rigueur scientifique, et sa disponibilité constante. Son expertise et ses conseils éclairés ont grandement contribué à la pertinence et à la solidité de ce travail. Sa confiance et son soutien ont été essentiels à chaque étape de cette recherche, et je lui en suis profondément reconnaissante. Merci pour toutes les opportunités accordées.

Je souhaite également remercier mes parents, mon mari et mon frère pour leur appui indéfectible tout au long de mon parcours. Leur soutien moral au quotidien, leur patience face aux exigences de cette formation ont constitué un pilier fondamental sans lequel cette aventure n'aurait pu être menée à bien. Leur présence bienveillante et constante a été une source de motivation inestimable.

J'adresse mes remerciements à l'ensemble du personnel technique et scientifique du laboratoire, pour leur accompagnement, leur disponibilité et leur professionnalisme, qui ont largement facilité la réalisation des expérimentations dans des conditions optimales.

Je tiens également à exprimer ma reconnaissance aux membres du jury pour avoir accepté d'évaluer et d'apporter de l'attention à ce mémoire. Je remercie à la professeure Claudiane Ouellet-Plamondon de présider le jury. Je remercie également la professeure Josiane Nikiema de faire partie du jury.

Merci à toutes les personnes qui ont été impliquées de près ou de loin au bon fonctionnement de ce travail.

Impact de fibres cellulosiques fonctionnalisées aux (hydr)oxydes de fer en traitement des eaux

MEBARKI, Manel

RÉSUMÉ

Les eaux usées pétrochimiques posent un important enjeu environnemental au Canada, en raison de leur lente décantation et de leur toxicité, principalement attribuables à leur forte teneur en acides naphthéniques (NA) et en composés organiques récalcitrants aux traitements conventionnels. L'objectif principal de cette recherche est d'explorer une stratégie innovante combinant des polymères synthétiques (polyacrylamide, PAM) et des fibres cellulosiques fonctionnalisées par greffage de fer, issues notamment de papier recyclé, afin d'améliorer significativement l'efficacité du procédé de floculation appliqué aux effluents pétrochimiques, caractérisés par leur complexité. Des essais jar test ont permis d'évaluer l'efficacité de différents polyacrylamides (c-PAM et a-PAM) seuls ou en combinés à des fibres greffées ou non. Le greffage au fer a renforcé la capacité d'adsorption et de pontage entre particules colloïdales et matières organiques dissoutes. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec le c-PAM 3 associé aux fibres greffées, permettant d'éliminer jusqu'à 66 % d'acides naphthéniques et 55-66 % du carbone organique total (COT) avec une turbidité résiduelle inférieure à 2 NTU dans des conditions optimisées. Une des conclusions majeures est l'importance cruciale du rapport optimal entre fibres et polymère pour éviter les phénomènes de surdosage, tels que la restabilisation des floes ou la diminution des performances d'adsorption, de plus, les fibres favorisent la formation de floes robustes et facilement déshydratables.

Les résultats préliminaires obtenus sur d'autres types d'eaux usées (hydrocarbures, lixiviats, compost, eaux agroalimentaires) témoignent du potentiel plus large de cette technologie. Ces perspectives ouvrent la voie à des travaux futurs prometteurs, notamment dans le cadre d'un doctorat, pour généraliser et approfondir l'application de cette approche innovante à une diversité d'effluents industriels complexes.

Un concept innovant de traitement basé sur un réacteur 3-en-1, combinant floculation, séparation solide-liquide et déshydratation dans une seule unité grâce aux fibres comme agent de pontage, a été développé et publié en 2025 dans *npj Clean Water* (facteur d'impact: 12,3). (CHAPITRE 4) D'abord testé sur des eaux africaines très turbides, il a ensuite été évalué sur les effluents pétrochimiques dans un second article soumis. Cette technologie, à la fois performante, et écologique, présente un fort potentiel d'intégration dans les procédés industriels existants.

Mots clés : fibres cellulosiques greffées; polyacrylamide (PAM); acides naphthéniques (NA); carbone organique total (COT); floculation; traitement des MFT; effluents industriels complexes

Impact of iron-(hydr)oxide functionalized cellulose fibers on water treatment

MEBARKI, Manel

ABSTRACT

Petrochemical wastewater represents a major environmental challenge in Canada due to its complex composition, slow sedimentation behavior, and high toxicity—mainly attributed to naphthenic acids (NAs) and recalcitrant organic compounds. This study explores an innovative flocculation strategy combining synthetic polyacrylamides (PAM) with iron-grafted cellulose fibers to enhance treatment efficiency. The fibers, derived from recycled paper, offer a low-cost and environmentally friendly alternative to conventional reagents. Jar tests were conducted using different types of PAMs (cationic and anionic), alone or in combination with grafted and non-grafted fibers. The results show that iron-grafted fibers significantly improve pollutant removal through enhanced adsorption and bridging mechanisms. The best performance was obtained with 200 mg/L of grafted fibers and 1–2 mg/L of cationic PAM (particularly c-PAM 3), achieving up to 66 % removal of NAs and total organic carbon (TOC), with residual turbidity below 2 NTU.

An optimal polymer-to-fiber ratio was shown to be crucial to avoid overdosing effects, such as floc restabilization. Grafted fibers also produced more robust flocs, improving sludge dewatering and reducing downstream operational costs. Preliminary tests on other wastewater types (e.g., hydrocarbon-laden water, leachate, compost, and agro-industrial effluents) highlight the broader potential of this approach. These promising results support future work at the doctoral level to generalize its application to a wider range of industrial effluents.

In addition, a compact three-in-one reactor was developed and published in *npj Clean Water* (2025, IF = 12.3), integrating flocculation, solid-liquid separation, and sludge dewatering in a single unit using bridging fibers. A second paper evaluating this technology on petrochemical wastewater is currently in preparation. Overall, this approach offers a sustainable, cost-effective solution for advanced treatment of petrochemical effluents and holds strong potential for industrial-scale integration.

Keywords: iron-grafted cellulose fibers; polyacrylamide (PAM); naphthenic acids (NA); total organic carbon (TOC); flocculation; mature fine tailings (MFT); industrial wastewater treatment

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LA LITTERATURE.....	9
1.1 Caractéristiques des eaux usées pétrochimiques.....	9
1.1.1 Résidus fins non décantables (<i>Mature Fine Tailings</i>)	9
1.1.2 Les acides naphténiqes.....	11
1.1.3 Hydrocarbures et matières organiques.....	13
1.2 Traitement conventionnel	15
1.2.1 La coagulation classique	15
1.2.2 La floculation	16
1.2.3 Traitement des eaux pétrochimiques	21
1.3 Effet des Fibres de cellulose	21
1.3.1 Utilisation des fibres cellulosiques	22
1.3.2 Fibres fonctionnalisées : greffage et amélioration des performances	23
1.3.3 Avantages et limites	24
1.4 Lacunes identifiées dans la littérature.....	25
CHAPITRE 2 MATÉRIEL ET MÉTHODES.....	27
2.1 Description de la matrice d'eau usée étudiée.....	27
2.2 Matériaux utilisés.....	28
2.2.1 Floculants utilisés.....	28
2.2.2 Fibres cellulosiques.....	29
2.2.3 Autres matériaux et réactifs	31
2.3 Méthodologie	32
2.3.1 Essais de jar test – floculation.....	32
2.3.2 Protocole de dosage	33
2.4 Analyses physico-chimiques.....	35
2.4.1 pH.....	35
2.4.2 Turbidité.....	36
2.4.3 Carbone organique total.....	36
2.4.4 Acides naphténiqes	36
2.4.5 Spectroscopie photoélectronique par rayon X	37
2.4.6 Fréquence des mesures et validation.....	37
CHAPITRE 3 RÉSULTATS ET DISCUSSION	39
3.1 Potentiel combiné de la technologie appliquée aux traitements des eaux	39
3.1.1 Concept du réacteur multifonctionnel à base de fibres (3-en-1).....	39
3.1.2 Déshydratation des boues in situ à l'aide d'agents fibreux.....	40
3.2 Application de la technologie aux eaux usées pétrochimique	40
3.2.1 Synthèse et optimisation des fibres cellulosiques greffées au fer.....	40

3.2.2	Caractérisation de la surface des fibres et fibres greffées par spectroscopie.....	41
3.2.3	Évaluation de la floculation par différents polyacrylamides combinés à des fibres greffées au fer pour le traitement des eaux usées pétrochimiques.....	42
3.2.4	Comparaison de l'efficacité de floculation des fibres greffées et non greffées.....	42
3.2.5	Optimisation du dosage de c-PAM 3 en présence et en l'absence des fibres.....	43
3.2.6	Influence de la concentration en fibres sur la floculation.....	44
3.2.7	Élimination du carbone organique total selon différentes conditions de floculation.....	44
3.3	Résultats préliminaires sur d'autres matrices d'eaux usées.....	45
CHAPITRE 4 FIBROUS SUPER-BRIDGING AGENTS SIMULTANEOUSLY IMPROVE CONTAMINANTS REMOVAL AND SLUDGE DEWATERING VIA A VERY COMPACT THREE-IN-ONE PROCESS.....		
4.1	Abstract.....	47
4.2	Main.....	48
4.3	Results and Discussion.....	50
4.3.1	Impact of super-bridging agents on conventional and emerging contaminants.....	50
4.3.2	Robustness of super-bridging agents for different water types.....	53
4.3.3	Reducing the microbiological risk for decentralized applications.....	56
4.3.4	Performances of fibers with different physicochemical treatments.....	59
4.3.5	Reducing polyacrylamide concentrations for drinking water application.....	62
4.3.6	Sludge dewatering and management, in situ.....	64
4.4	Conclusion.....	65
4.5	Materials and methods.....	66
4.5.1	Chemicals and materials.....	66
4.5.2	Waters characteristics.....	67
4.5.3	Jar tests.....	68
4.5.4	Total organic carbon, nanoplastics, and microplastics measurement.....	69
4.6	Authorship contribution statement.....	70
4.7	Declaration of Competing Interest.....	70
4.8	Acknowledgments.....	71
CHAPITRE 5 IMPACT OF IRON-(HYDR)OXIDE FUNCTIONALIZED CELLULOSE FIBERS ON PETROCHEMICAL WASTEWATER TREATMENT.....		
5.1	Abstract.....	73
5.2	Main.....	74
5.3	Results and Discussion.....	76
5.3.1	Synthesis and optimization of iron-grafted fibers.....	76

5.3.2	Surface characterization of fibers and grafted fibers	78
5.3.3	Evaluation of PAM flocculants combined with iron-grafted cellulose fiber for petrochemical wastewater treatment.....	82
5.3.4	Contribution of grafted and non-Grafted fibers to flocculation efficiency	84
5.3.5	Optimization of c-PAM 3 dosage in the presence and absence of fibers	88
5.3.6	Influence of fiber concentration.....	90
5.3.7	Total Organic Carbon removal under selected flocculation conditions.....	93
5.4	Conclusion	97
5.5	Materials and methods	98
5.5.1	Chemicals and materials	98
5.5.2	Water characteristic	99
5.5.3	Jar tests.....	99
5.5.4	Total organic carbon, fluorescence, turbidity and X-ray photoelectron spectroscopy.....	100
5.6	Authorship contribution statement.....	101
5.7	Declaration of Competing Interest.....	101
5.8	Acknowledgments.....	101
CONCLUSION.....		103
RECOMMANDATIONS		107
ANNEXE I	COURBES D'ÉTALONNAGE POUR LA MESURE DU CARBONE ORGANIQUE TOTAL (COT)	111
ANNEXE II	COURBE DE CALIBRATION POUR LA DETERMINATION DES ACIDES NAPHTÉNIQUES (NA) PAR FUORESCENCE	115
ANNEXE III	ARTICLE SCIENTIFIQUE PUBLIÉ DANS NPJ CLEAN WATER (FACTEUR D'IMPACT : 12,3)	117
LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES		129

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1	Caractéristiques de l'eau brute	27
Tableau 2.2	Propriétés des PAM testés	29
Tableau 4.1	Properties of polyacrylamides.....	67
Tableau 4.2	Location and characteristics of the 4 tested waters.....	68
Tableau 4.3	Properties of nanoplastics and microplastics	70
Tableau 5.1	Properties of polyacrylamides.....	99

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1	Structure interne d'un bassin de résidus issus des sables bitumineux.....11
Figure 2.1	Préparation de la matrice synthétique simulant les MFT.....28
Figure 2.2	Schéma représentant le protocole effectué pour la synthèse des fibres greffées.....31
Figure 2.3	Protocole de floculation33
Figure 2.4	Schéma illustrant le protocole de dosage.....35
Figure 4.1	Contaminant removal improvement using fibers52
Figure 4.2	Performance of fibers on different water types.....55
Figure 4.3	Process optimization to reduce the residual turbidity58
Figure 4.4	Fibers used with physicochemical treatments.....61
Figure 4.5	Limiting the use of synthetic flocculant for flocs separation via screening63
Figure 4.6	Improving sludge dewatering with fibrous agents.....65
Figure 5.1	Optimization of drying conditions for iron-grafted cellulose fibers.....78
Figure 5.2	Surface composition of fiber and grafted fibers and visual appearance of iron-grafted fibers and pristine fibers81
Figure 5.3	Flocculation performance of grafted fibers combined with various polyacrylamides for petrochemical wastewater treatments84
Figure 5.4	Contribution of fiber type to turbidity and naphthenic acid (NA) removal87
Figure 5.5	Impact of c-PAM3 dosage on flocculation performance under different fiber conditions90
Figure 5.6	Impact of fiber concentration on flocculation using 1 mg/L of c-PAM3.....93
Figure 5.7	Impact of fiber type, concentration, and polymer dose on total organic carbon (TOC) removal.....96

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

a-PAM	Polyacrylamide anionique
COT	Carbone organique total
c-PAM	Polyacrylamide cationique
CSR	Composés sulfurés réduits
GES	Gaz à effet de serre
HAP	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
IC	Carbone inorganique (Inorganic Carbon)
MFT	Mature Fine Tailings (résidus fins fluides)
MOD	Matière organique dissoute
MON	Matière organique naturelle
NA	Acides naphténiqes (Naphtenic Acids)
NDIR	Détection par infrarouge non dispersif
PAM	Polyacrylamide
PVBTMAC	Poly(vinylbenzyltrimethylammoniumchloride)(polymère cationique)
SAGD	Stream Assisted Gravity Drainage (drainage gravitaire assisté par vapeur)
TC	Carbon total (Total Carbon)
TOC	Total Organic Carbon (équivalent de COT en anglais)
UV	Ultra-violet
FWHM	Full Width at Half Maximum (Largeur à mi-hauteur)

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

NTU	Unité néphélométrique de turbidité (Nephelometric Turbidity Unit)
λ_{Ex}	Longueur d'onde d'excitation (en nm)
λ_{Em}	Longueur d'onde d'émission (en nm)
mg/L	Milligrammes par litre
g/L	Grammes par litre
μm	Micromètre
eV	électronvolt

INTRODUCTION

L'industrie pétrochimique repose principalement sur la transformation de matières premières fossiles, telles que le pétrole brut et le gaz naturel, en produits chimiques essentiels à une multitude de secteurs. Ces ressources, constituées majoritairement d'hydrocarbures de formule générale C_nH_m , peuvent également contenir d'autres éléments ou molécules composées d'oxygène, d'azote ou de soufre. Les hydrocarbures se distinguent par leur inflammabilité, leur faible miscibilité avec l'eau et leurs propriétés physiques : densité, température d'ébullition, masse volumique, etc., qui varient selon la longueur de leur chaîne carbonée (Lauzon, 2013). Au Canada, l'industrie pétrochimique constitue un pilier stratégique de l'économie, avec une distinction entre les activités primaires, axées sur la production de produits chimiques de base comme l'éthylène, et les activités secondaires, dédiées à la transformation de ces produits en composés utilisés par d'autres secteurs. Toutefois, avant d'obtenir ces dérivés, l'exploitation des ressources pétrolières passe par des étapes complexes d'extraction et de raffinage (Lauzon, 2013).

Le Canada détient la troisième plus grande réserve mondiale de pétrole, avec environ 177 milliards de barils, dont 166,3 milliards enfouis dans les sables bitumineux (Gouvernement du Canada, 2020). Toutefois, cette exploitation engendre d'importants impacts environnementaux, ce qui conduit le gouvernement fédéral à investir environ 200 millions de dollars par an dans la recherche et l'innovation en matière de technologies plus durables.

Les sables bitumineux sont un mélange naturel de sable, d'argile, de minéraux, d'eau et de bitume. Deux méthodes principales permettent l'extraction du bitume : l'exploitation in situ et l'exploitation à ciel ouvert. L'extraction in situ est réservée aux gisements profonds (à plus de 75 mètres), via des techniques telles que le drainage gravitaire par vapeur (SAGD), consistant à injecter de la vapeur dans un puits horizontal supérieur pour fluidifier le bitume, qui s'écoule ensuite vers un puits inférieur (Gouvernement du Canada, 2020). À l'inverse, l'exploitation à ciel ouvert, adaptée aux gisements superficiels, utilise de puissantes pelles mécaniques et

camions pour extraire le sable bitumineux suivi d'un traitement à l'eau chaude dans des broyeurs et des unités de séparation (Gouvernement du Canada, 2020).

Ces deux procédés requièrent de grandes quantités d'eau. Il est donc essentiel de s'intéresser au devenir de cette ressource après usage. En effet, selon CanmetÉNERGIE (Alberta), l'extraction d'un mètre cube de bitume nécessite entre 7 et 10 m³ d'eau. Si environ 75 % de cette eau est récupérée et recyclée, le reste est piégé dans les résidus solides, hautement contaminés, puis stocké dans des bassins appelés *tailings ponds* (bassin de décantation). Le recyclage de l'eau devient de plus en plus problématique en raison de la concentration croissante de contaminants, ce qui nuit à l'efficacité du processus et engendre l'accumulation continue d'eaux contaminées dans ces bassins (Gouvernement du Canada, 2020).

Les *tailings ponds* représentent aujourd'hui l'une des problématiques environnementales les plus critiques liées à l'exploitation des sables bitumineux. Ils contiennent un mélange instable et toxique d'eau, de sable, d'argile, de matières en suspension, de métaux lourds, de composés organiques, de résidus bactériens et de gaz dissous comme le CO₂, O₂ ou H₂S. Des particules de bitume non récupérées flottent également à la surface, formant des films huileux potentiellement mortels pour la faune aviaire (Oil Sands Environmental Management Division, 2008).

Avec le temps, les composants de ces résidus se séparent, formant plusieurs couches sédimentaires : sable, résidus fins terminaux, résidus fin fluides (mature fine tailings, MFT) et eau recyclable. Les sables se déposent rapidement, tandis que les argiles et matières colloïdales restent en suspension pendant des années, voire des décennies (Oil Sands Environmental Management Division, 2008). Les MFT résultent de la décantation des particules grossières, laissant en suspension un mélange stable d'argiles fines, de sable, d'eau et de bitume résiduel. Ces suspensions sont particulièrement difficiles à traiter, car elles présentent une faible séparation entre les phases solides et liquides. Typiquement, les MFT contiennent environ 30 à 40% (w/w) de matières solides, moins de 5% (w/w) de bitume et le reste en eau de procédé (Dixon & Soares, 2024).

La dégradation naturelle des résidus fins fluides (MFT) est extrêmement lente, jusqu'à 150 ans selon certaines estimations, bien que des techniques récentes permettent d'obtenir des résidus consolidés en 3 à 5 ans (Oil Sands Environmental Management Division, 2008). Cette lenteur, combinée à la poursuite des activités extractives, accentue les risques environnementaux (Oil Sands Environmental Management Division, 2008).

En plus des risques pour les écosystèmes aquatiques et les oiseaux migrateurs, comme en témoigne la mort de plusieurs hérons en 2015 sur un site de Syncrude, des fuites de contaminants ont été détectées vers la rivière Athabasca (Benaza, 2019). Des études scientifiques ont mis en évidence des niveaux anormaux de métaux lourds, et des cas de cancers chez les poissons ont été rapportés (Benaza, 2019). Les polluants atmosphériques issus des tailings ponds, tels que les composés organiques volatils (COV), les composés sulfurés réduits (CSR) et les gaz à effet de serre (GES), notamment le méthane CH_4 et le CO_2 , participent également à la dégradation de la qualité de l'air. Ces émissions sont difficilement quantifiables en raison de leur variabilité spatio-temporelle et de la complexité des processus de biodégradation du bitume (L. Zhang et al., 2019).

Face à cette situation, la nécessité de développer des solutions de traitement efficaces des résidus s'impose comme une priorité scientifique et environnementale. Une des principales limitations actuelles réside dans le traitement des résidus fins fluides MFT, qui présentent une faible teneur en solides (souvent inférieurs à 30-40 %) et nécessitent des décennies pour se stabiliser (Wan et al., 2019). L'amélioration de leur sédimentation par des procédés physico-chimiques comme la coagulation-floculation constitue donc une voie de recherche prometteuse.

La coagulation-floculation est un procédé couramment utilisé pour éliminer les particules colloïdales en suspension dans les eaux usées. La coagulation induit la neutralisation des charges électrostatiques répulsives des particules par l'ajout de coagulants, permettant ainsi leur rapprochement. La floculation favorise ensuite l'agglomération de ces microflocs en flocs

plus volumineux par brassage lent. Les paramètres influents incluent la température, la nature des impuretés, le type de coagulant et la force d'agitation (Duan & Gregory, 2003).

Dans ce contexte, ces travaux de recherche s'inscrivent dans une volonté de contribuer à cette problématique environnementale en explorant des approches innovantes basées sur l'usage de matériaux biosourcés. Une attention particulière a été portée aux fibres cellulosiques, notamment greffées au fer, en tant qu'alternatives ou compléments aux flocculants, afin d'accélérer la sédimentation des MFT

Problématique et objectifs de la recherche

Malgré les nombreux efforts déployés par les acteurs de l'industrie pétrolière pour limiter les impacts environnementaux de l'exploitation des sables bitumineux, la gestion des *tailings ponds* demeure un enjeu critique non résolu. En particulier, le traitement des MFT pose des défis majeurs en raison de leur lente décantation, de leur faible teneur en matières solides et de leur potentiel de contamination prolongée des milieux environnants. Les technologies existantes peinent à atteindre une stabilisation efficace de ces résidus dans des délais compatibles avec les exigences environnementales et industrielles. De plus, la majorité des solutions testées à ce jour reposent sur des coagulants et flocculants synthétiques, souvent coûteux, peu biodégradables et eux-mêmes source potentielles de pollution secondaire (Cancelli & Gobas, 2020; Duan & Gregory, 2003).

Dans ce contexte, il est impératif d'explorer des solutions de traitement fondées sur l'utilisation de matériaux biosourcés, renouvelables, et respectueux de l'environnement. Les fibres cellulosiques, abondantes, peu coûteuses et facilement modifiables, présentent un fort potentiel d'application dans les domaines du traitement des eaux contaminées (Lapointe et al., 2022). Toutefois, les études portant sur leur usage dans des matrices complexes telles que les effluents issus des *tailings ponds* restent très limitées. Peu de recherches ont évalué leur performance en comparaison directe avec des coagulant/ flocculants conventionnels, et encore moins en conditions réelles ou semi-industrielles.

Ce mémoire de maîtrise s'inscrit dans cette problématique, en proposant une approche innovante basée sur l'utilisation de fibres cellulosiques greffées au fer pour améliorer la performance du procédé de coagulation-floculation appliqué aux eaux usées pétrochimiques.

Objectifs de recherche

Les objectifs principaux se résument à évaluer l'efficacité des fibres cellulosiques brutes et greffées dans la sédimentation des résidus présents dans les effluents pétrochimiques, les utiliser avec plusieurs types de floculant (polyacrylamide) sans utiliser de coagulant et comparer leur performance avec la présence du polyacrylamide à lui seul en condition de laboratoire. Le projet vise également à analyser l'influence des différents paramètres opératoires, notamment les concentrations et temps de décantation sur les performances de traitement.

En contribuant à combler certaines lacunes identifiées dans la littérature, en particulier le manque d'études appliquées à des matrices pétrochimiques complexes et l'absence de comparaison systématique avec des réactifs conventionnels, ce travail vise à proposer une alternative prometteuse et écologiquement responsable pour la gestion des tailings ponds.

Contributions et limites de l'étude

Cette étude apporte plusieurs contributions originales sur les plans méthodologiques et applicatifs. Elle repose d'abord sur l'évaluation de fibres cellulosiques greffées au fer pour le traitement de véritables eaux usées pétrochimiques, ce qui représente une avancée notable par rapport aux nombreuses études menées en conditions simulées ou diluées. Elle propose également une comparaison directe entre fibres brutes, fibres greffées et différents polyacrylamides, afin d'optimiser le procédé de floculation. De plus une partie de l'étude a permis d'explorer l'interaction entre ces fibres et des nanoplastiques, un type de contaminants émergent dont le comportement dans les matrices industrielles est encore peu documenté. Ces éléments confèrent à cette recherche une portée appliquée et innovante, à la fois sur le plan

environnemental et méthodologique, et visent ainsi à élargir l'applicabilité des fibres fonctionnalisées à d'autres contaminants émergents. Cette recherche repose sur des expérimentations reproductibles en laboratoire, tout en posant les bases d'une intégration à plus grande échelle. Elle ouvre la voie à des applications concrètes dans le domaine du traitement des résidus des sables bitumineux, tout en contribuant à la transition vers des solutions plus écocompatibles.

Bien que cette étude apporte des éléments prometteurs pour le traitement des effluents pétrochimiques à l'aide de fibres cellulosiques greffées, plusieurs limites doivent être reconnues. Certains paramètres expérimentaux n'ont pas été optimisés ou systématiquement étudiés. La vitesse d'agitation utilisée lors des jar tests a été maintenue constante sans être revalidée pour toutes les doses de polymère et de fibre testées, ce qui pourrait avoir affecté la formation ou la stabilité des floccs en raison de force de cisaillement légèrement excessives. De même, tous les essais ont été réalisés à température pièce, sans évaluation de l'effet de la température sur les performances de floculation, alors que ce paramètre peut jouer un rôle significatif dans des conditions industrielles instables. Par ailleurs les expérimentations ont été menées en conditions contrôlées de laboratoire, ce qui peut limiter l'utilisation des résultats à des environnements industriels réels, caractérisés par des charges variables, des volumes importants et des conditions opératoires plus complexe. De plus, l'étude n'a pas intégré d'analyse approfondie des coûts de mise en œuvre à l'échelle industrielle ni des impacts potentiels à long terme des matériaux introduits dans les boues traitées. En outre, le couplage de ces matériaux biosourcés à des réacteurs continus ou semi-pilote reste à explorer pour valider leur intégration dans des procédés de traitement existants. Enfin, une autre limite concerne la gestion des boues générées après traitement. Bien que les fibres cellulosiques greffées améliorent la floculation et la déshydratation, leur ajout en tant que matière solide peut augmenter le volume et la masse des boues produites. Cela pourrait complexifier les étapes à grande échelle. Une analyse complémentaire serait donc nécessaire pour évaluer le bilan global du procédé, en tenant compte non seulement de la performance de clarification, mais aussi de l'impact sur la filière de traitement des boues.

Ce mémoire de maîtrise repose en partie sur deux articles scientifiques rédigés dans le cadre du projet de recherche. Le premier a été publié dans la revue *npj Clean Water*, tandis que le second est en cours de soumission. Ces deux articles, sont reproduits dans le CHAPITRE 4 et CHAPITRE 5 respectivement.

CHAPITRE 1

REVUE DE LA LITTÉRATURE

1.1 Caractéristiques des eaux usées pétrochimiques

Les effluents issus des installations pétrochimiques, incluant les raffineries et l'exploitation des sables bitumineux, présentent une composition particulièrement complexe et variée. Ces eaux usées contiennent typiquement des hydrocarbures, des acides naphténiques (NA), une grande variété de matières organiques dissoutes et particulaires, ainsi que des métaux lourds tels que le cuivre, le plomb, le nickel et le zinc (Kawaguchi et al., 2012; Yu et al., 2017). Dans le contexte spécifique des sables bitumineux, les tailings ponds sont un mélange d'eau, de fines particules minérales, de bitume résiduel, de sels dissous, d'acides naphténiques, des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), d'acide humiques et de métaux, ce qui contribue à une forte hétérogénéité physico-chimique des effluents (Cancelli & Gobas, 2020, 2024; Mahaffey & Dubé, 2017). La toxicité de ces effluents résulte de l'effet combiné de plusieurs groupes de contaminants.

1.1.1 Résidus fins non décantables (*Mature Fine Tailings*)

Les *Mature fine Tailings* (MFT), issues du traitement des sables bitumineux, constituent une suspension stable composée d'environ 30 à 40 % en masse de solides, principalement des argiles fines comme la kaolinite et l'illite, et d'environ 1 à 3 % de bitume résiduel (Wan et al., 2019). Ces solides sont très fins, avec plus de 90 % des particules inférieures à 44 µm de diamètre (Haroon, 2014). En raison de leur structure colloïdale stable, ces suspensions ne se séparent pas naturellement, ce qui les rend difficiles à traiter et entraîne une accumulation continue dans les bassins de décantation (Dixon & Soares, 2024).

Cette accumulation représente un enjeu majeur, car sans traitement efficace, les MFT peuvent rester en suspension dans les bassins pendant des décennies, voire des siècles (Oil Sands

Environmental Management Division, 2008). Actuellement, environ 1.5 m³ de résidus fins s'accumulent par baril de bitume produit, contribuant à un volume total de MFT estimé à plus d'un milliard de m³ (Haroon, 2014). Selon le dernier rapport de l'Alberta Energie Regulator (2023), l'inventaire net de résidus fluides a augmenté de 31,5 millions de m³ entre 2021 et 2022, ce qui correspond à la production annuelle moyenne actuelle de MFT dans les sites de sables bitumineux canadiens (AER, 2023).

Les impacts environnementaux des MFT sont considérables. Ces bassins contiennent des composés toxiques tels que les acides naphéniques, les composés phénoliques, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), l'ammoniaque, ainsi que des métaux lourds comme le mercure, ayant une toxicité aiguë pour la faune et les organismes aquatiques avoisinants (Haroon, 2014). La stabilité exceptionnelle des MFT est due à la structure particule formée par les argiles fines, créant des réseaux colloïdaux en suspension dans l'eau qui emprisonnent efficacement l'eau et rendent la décantation gravitaire très lente (Haroon, 2014; Islam & Shang, 2019).

Diverses approches ont été explorées pour accélérer la déshydratation et la consolidation des MFT, notamment l'utilisation combinée de coagulants et de polymères floculants. Les traitements utilisant des systèmes de polymères doubles, notamment des polymères anioniques associés à des polymères cationiques, se sont avérés particulièrement prometteurs, permettant d'obtenir des solides plus concentrés et une libération plus rapide de l'eau interstitielle (Haroon, 2014). Enfin des techniques complémentaires comme la sédimentation électrocinétique, combinée à l'ajout de coagulants tels que le chlorure ferrique, permettent d'améliorer la concentration des solides dans les sédiments, réduisant ainsi le temps et l'énergie nécessaire au traitement des MFT (Islam & Shang, 2019). La recherche actuelle se concentre donc sur l'optimisation de ces approches pour trouver un équilibre entre l'efficacité environnementale, faisabilité technique et économique, pour répondre au défi que représentent les MFT.



Figure 1.1 Structure interne d'un bassin de résidus issus des sables bitumineux

1.1.2 Les acides naphténiques

Les acides naphténiques (NA) constituent l'un des principaux groupes de contaminants présents dans les eaux usées issues de l'exploitation des sables bitumineux et du raffinage pétrochimiques (Wu et al., 2019). Il s'agit d'un mélange complexe d'acides carboxyliques cycliques et aliphatiques, dont la formule générale est $C_nH_{2n-z}O_2$ où z représente le nombre d'atomes d'hydrogène perdu par cyclisation (Mohamed et al., 2008; Wu et al., 2019). Leur structure amphiphile leur confère des propriétés tensioactives importantes, ce qui favorise la stabilisation des émulsions eau/bitume dans les effluents pétrochimiques (Wu et al., 2019).

Les NA sont connus pour leur toxicité aiguë et chronique vis-à-vis d'une grande variété d'organismes aquatiques. Leur présence dans les bassins de décantation des sables bitumineux a été associée à des altérations du développement embryonnaire chez les poissons, à des troubles du comportement chez les amphibiens, ainsi qu'à des effets toxiques sublétaux sur les invertébrés benthiques lors d'une exposition à long terme (Howland et al., 2019). Leur

présence dans les tailings ponds (bassin de décantation) est préoccupante, surtout que certaines formes ionisées de NA peuvent former des complexes métalliques toxiques (ex. : naphthénates de fer ou de cuivre), renforçant leur impact écotoxique (Howland et al., 2019).

Sur le plan environnemental, les NA sont considérés comme persistants et partiellement biodégradables, en particulier lorsqu'ils présentent un haut degré de cyclisation (Wu et al., 2019). Leur récalcitrance pose des défis importants pour les traitements biologiques conventionnels, notamment dans les réacteurs à boues activées et les système bioréacteur à membranes, qui présentent un rendement limité sur ces molécules résistantes (Sandhu et al., 2024). Ils sont également difficiles à extraire de la phase aqueuse par les méthodes classiques de coagulation-floculation, du fait de leur nature partiellement hydrophobe, et de leur affinité avec la matière organique dissoute (MOD), en particulier les fractions humiques (Mohamed et al., 2008; Salvé, 2020). Ces substances agissent comme des colloïdes organiques qui complexent les acides naphéniques, réduisant leur disponibilité pour les mécanismes de déstabilisation particulière habituellement ciblés par les coagulants métalliques. En effet, la coagulation par des sels d'aluminium ou de fer montre une efficacité fortement variable selon les fractions organiques ciblées : elle permet une bonne élimination des composés hydrophobes à masse moléculaire élevée, mais reste inefficace pour les fractions hydrophiles, qui comprennent une part importante des NA et de leurs complexes avec la matière organique. (Salvé, 2020). Par ailleurs, des tests réalisés avec du chitosane ont montré que même en présence de surfactants et d'acides gras associés aux NA, les performances de coagulation-floculation sont très limitées, à cause de la formation de complexes stables qui échappent à la décantation (Gidas, 1998).

Enfin, leur accumulation dans les bassins de décantation (tailings ponds) représente une menace pour les écosystèmes adjacents. Des études ont montré que les NA peuvent migrer lentement vers les eaux souterraines et les rivières, contribuant à une contamination diffuse de longue durée (Sandhu et al., 2024). Leur photodégradation naturelle en surface est lente et incomplète, ce qui justifie la recherche de méthodes alternatives de traitement, telles que

l'adsorption sur matériaux fonctionnalisés, la nanofiltration catalytique ou les procédés d'oxydation avancée (Aher et al., 2017; Mohamed et al., 2008).

1.1.3 Hydrocarbures et matières organiques

Les eaux usées générées par l'industrie pétrochimique, notamment dans le contexte des sables bitumineux ou du raffinage, contiennent une grande variété de composés organique naturelle (MON), souvent d'origine humique et de composés pétroliers tels que les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), les solvants organiques, les huiles et les fractions résiduelles de bitume (Mahaffey & Dubé, 2017; Yu et al., 2017). Ces composés présentent tous une forte stabilité chimique, une hydrophobicité partielle et une faible biodégradabilité, ce qui les rend particulièrement persistants dans l'environnement et résistants aux traitements conventionnels (Cancelli & Gobas, 2024; Kawaguchi et al., 2012).

La matière organique présente dans ces effluents comprend des substances humiques, fulviques et des acides carboxyliques. Ces composés sont classés en fonction de leur masse moléculaire, de leur charge électrique et de leur comportement hydrophobe/hydrophile, influençant directement leur interaction avec les coagulants, flocculants, les membranes ou les adsorbants (Park et al., 2022). La fraction hydrophobe et colloïdale de la matière organique est souvent responsable d'une grande part du carbone organique total (COT) mesuré dans les eaux usées (Kawaguchi et al., 2012; Park et al., 2022). Les substances humiques jouent un rôle clé dans la mobilité et la complexation des métaux et des composés pétroliers, grâce à leur capacité à former des complexes stables, elles réduisent la biodisponibilité de certains contaminants, mais peuvent aussi protéger partiellement les hydrocarbures et autres polluants organiques de l'action des coagulants ou des oxydants, ce qui diminue l'efficacité des procédés conventionnels (Cancelli & Gobas, 2024).

Les hydrocarbures, en particulier les HAP à faible masse moléculaire, les huiles minérales et le bitume résiduel, constituent une source majeure de pollution organique dans les bassins de décantation des sables bitumineux (Cancelli & Gobas, 2020; Mahaffey & Dubé, 2017). Ces

hydrocarbures peuvent exister sous forme dissoute, colloïdale ou émulsionnée, ce qui les rend très difficiles à séparer. Leur structure polycyclique aromatique les rend hydrophobes, faiblement volatils, et fortement persistants, contribuant à leur biodégradabilité limitée dans les conditions semi-aérobies des bassins de traitement (Cancelli & Gobas, 2020; Yu et al., 2017).

En pratique, la mesure du COT constitue un indicateur global de cette pollution organique, car elle capture la totalité des composés organiques oxydables qu'ils soient d'origine naturelle (humique) ou pétrochimique (HAP). Dans les études expérimentales, le COT est fréquemment utilisé pour suivre l'efficacité des traitements comme la coagulation-floculation, l'adsorption ou les procédés d'oxydation avancée. Cependant, cette approche intégrée masque les différences de comportement des différentes fractions organiques. Par exemple; les composés hydrophobes à masse moléculaire élevée peuvent être efficacement éliminés par coagulation, tandis que les fractions hydrophiles persistent dans les eaux traitées (Park et al., 2022).

Enfin, dans les contextes nord-américains comme celui des sables bitumineux, la gestion de cette pollution est cruciale, car ils couvrent des surfaces importantes et peuvent donc contenir des millions de mètres cubes d'eaux organiquement contaminées, susceptibles de migrer vers les nappes phréatiques ou de relarguer des vapeurs toxiques dans l'atmosphère (Yu et al., 2017). Ces risques environnementaux justifient l'adoption de techniques de traitement plus sélectives et robustes, tels que l'adsorption sur des fibres fonctionnalisées.

En résumé, les eaux usées issues des activités pétrochimiques, et particulièrement de l'exploitation des sables bitumineux, se distinguent par leur forte teneur en carbone organique total (COT), leur complexité moléculaire et la toxicité élevée de leurs constituants. Les acides naphténiques, les hydrocarbures et les substances humiques font partie des contaminants les plus problématiques en raison de leur stabilité chimique, de leur caractère hydrophobe, de leur faible volatilité et de leur résistance à la biodégradation, même prolongée, et leur complexe stable accentue leur persistance dans l'environnement (Cancelli & Gobas, 2020; Park et al., 2022; Yu et al., 2017).

1.2 Traitement conventionnel

Les traitements conventionnels sont historiquement les premières méthodes mises en œuvre pour le traitement des eaux usées industrielles. Ils reposent essentiellement sur des procédés physico-chimiques simples, dont le plus répandu est la coagulation-floculation, utilisé pour éliminer les matières en suspension, le phosphore, les colloïdes, et certaines fractions de la matière organique dissoute (Duan & Gregory, 2003). Cette technique, bien qu'efficace sur certaines classes de polluants montre des limites importantes dans le cas des effluents pétrochimiques, riches en composés hydrophobes, acides naphténiques, hydrocarbures aromatiques, et substance non ou peu biodégradables.

1.2.1 La coagulation classique

La coagulation est l'une des étapes clés du traitement conventionnel des eaux usées industrielles, notamment dans les procédés physico-chimiques appliqués aux effluents pétrochimiques. Elle vise à déstabiliser les particules colloïdales présentes dans l'eau, souvent porteuses de charges négatives, en réduisant leur potentiel zêta et en favorisant leur agglomération (Duan & Gregory, 2003).

Le mécanisme de coagulation repose sur plusieurs phénomènes physico-chimiques :

- La compression de la double couche électrique (coagulation électrostatique),
- L'adsorption suivie de neutralisation des charges,
- L'emprisonnement des particules dans un précipité (*sweep flocculation*),
- L'adsorption avec pontage, souvent lié aux polymères de masse moléculaire élevée (Bolto & Gregory, 2007; Duan & Gregory, 2003).

Les coagulants les plus couramment utilisés dans l'industrie sont les sels métalliques hydrolysables tels que le sulfate d'aluminium (alun) et le chlorure ferrique. Ces composés libèrent des ions multivalents qui interagissent avec les colloïdes, provoquant soit une

neutralisation directe, soit une précipitation d'hydroxydes métalliques qui entraînent les particules en suspension (Duan & Gregory, 2003).

L'efficacité de ces coagulants est fortement influencée par le pH du milieu, l'alcalinité, la dose appliquée, et la nature des particules. Par exemple, l'alun est efficace dans une plage de pH étroite (5.0 à 7.0), et son emploi entraîne souvent une consommation d'alcalinité ainsi qu'une production importante de boues, parfois difficile à déshydrater (Duan & Gregory, 2003). En réponse aux préoccupations sanitaires et environnementales liées à l'usage intensif de sels métalliques, plusieurs recherches se sont orientées vers des alternatives naturelles. Par exemple le chitosane, qui se distingue par sa biodégradabilité, sa faible toxicité et son efficacité à de faibles doses notamment pour l'élimination de métaux. Toutefois, ces alternatives présentent également certaines limites, car le chitosane peut entraîner une restabilisation des colloïdes en cas de surdosage, notamment en saturant les sites actifs à la surface des particules (Gidas, 1998). Le choix du coagulant est une étape déterminante dans le traitement des eaux usées, en particulier pour des eaux qui sont complexes comme les effluents issus des sables bitumineux qui ont des charges colloïdales élevées, forte teneur en matières organiques hydrophobe et faible biodégradabilité (Mahaffey & Dubé, 2017; Yu et al., 2017). Les sels métalliques conventionnels, tels que le sulfate d'aluminium (alun) et le chlorure ferrique (FeCl_3), sont encore largement utilisés, mais ils peuvent laisser des résidus préoccupants en sortie de traitement. De plus les coagulants métalliques ont montré une efficacité limitée sur les composés organiques dissous hydrophiles, notamment les acides naphthéniques et certaines fractions humiques complexes (Cancelli & Gobas, 2020; Kawaguchi et al., 2012). En résumé, aucun coagulant unique ne permet à lui seul de traiter efficacement toute la complexité des eaux usées pétrochimiques, et les quantités demandées sont parfois beaucoup trop élevées, ce qui au niveau environnemental et économique n'est pas l'idéal.

1.2.2 La floculation

La floculation est une étape clé du traitement physico-chimique des effluents en général, souvent utilisée en complément de la coagulation. Elle consiste à rassembler les particules

préalablement déstabilisées en floccs plus gros, plus denses et plus faciles à éliminer par décantation ou flottation. Ce processus repose principalement sur l'adsorption et le pontage entre particules, mécanisme connu sous le nom de pontage interparticulaire (*interparticle bridging*), qui implique l'utilisation de polymères à longue chaîne (i.e. masse moléculaire élevé, $> 10^6$ g/mol) capable de relier plusieurs colloïdes simultanément (Yukselen & Gregory, 2004).

Selon Gregory et al., la floculation peut être affectée par plusieurs paramètres, notamment la concentration en polymères, leur conformation moléculaire en solution, le degré d'agitation, ainsi que la présence d'ions dans le milieu. Une agitation excessive peut entraîner une rupture des floccs (*floc breakage*), phénomène documenté dans les effluents industriels où les forces de cisaillement peuvent altérer la structure des floccs formés (Yukselen & Gregory, 2004).

Le choix du flocculant est crucial, l'efficacité de ces polymères repose à la fois sur leur charge fonctionnelle et leur masse moléculaire, deux facteurs qui influencent la vitesse de formation des floccs, leur taille et leur résistance mécanique (Gregory, 1985; Yukselen & Gregory, 2004). La charge électrique des polymères flocculants joue un rôle déterminant dans les mécanismes d'interaction avec les colloïdes présents dans les eaux usées pétrochimiques. Les polymères cationiques sont généralement efficaces pour les suspensions anioniques naturelles, comme celles riches en argile, en substances humiques ou en résidus pétroliers, ils déstabilisent les particules à charge négative et agissent par neutralisation électrostatique, suivie d'un pontage entre les particules, favorisant ainsi la formation de floccs volumineux et facilement décantables (Bolto & Gregory, 2007; Shatat et al., 2019). À l'inverse, les polymères anioniques sont principalement utilisés pour les particules chargées positivement, mais peuvent également être efficaces en présence de cations multivalents (Fe^{2+} , Al^{3+}), qui agissent comme ponts électrostatiques entre charges opposées (Assaad, 2006). Leur performance est davantage gouvernée par la conformation moléculaire, et leur mécanisme repose souvent sur la formation de mailles poreuses plutôt que sur la neutralisation directe. Ces polymères, souvent dérivés de l'acide acrylique (ex. polyacrylamide anionique), présentent une forte efficacité à faible dose,

mais sont sensibles à la nature des ions en solution et à la présence de matières organiques dissoutes (Salvé, 2020).

Des études sur les effluents issus des sables bitumineux et de la raffinerie ont montré que la séquence d'ajout des réactifs (coagulants puis flocculants ou inversement) joue également un rôle significatif dans la performance de la floculation. Une mauvaise séquence peut conduire à des floccs fragiles, sensibles, à la rupture lors du traitement ou de la manipulation (D. Wang et al., 2025). Il a été observé que la rupture de floccs sous agitation modérée n'est pas toujours entièrement réversible, après chaque cycle de rupture, les floccs reformés présentent souvent une structure différente, parfois plus fragile ou plus poreuse affectant ainsi l'efficacité de la séparation solide-liquide (Gregory & O'Melia, 1989; Loukili et al., 2024; Yukselen & Gregory, 2004).

La floculation est également influencée par la concentration en polymères, la longueur et la conformation des chaînes moléculaires, ainsi que la densité de charge. Une concentration trop faible entraîne une formation de flocc incomplète, tandis qu'un surdosage peut conduire à une saturation des surfaces colloïdales et à une re stabilisation du système (Fu et al., 2023; Gregory, 1985). Le surdosage de polymères, qu'ils soient anioniques ou cationiques, entraînant une saturation de tous les sites d'adsorption disponibles et empêchent la formation de ponts interparticulaires ce qui mène soit à une saturation des surfaces, ou à une rupture des floccs sous un agitation prolongée (Bolto & Gregory, 2007).

Les flocculants à masse moléculaire élevée, lorsqu'ils sont correctement dosés, permettent de générer des floccs plus résistants, grâce à des ponts interparticulaires étendus. Toutefois, ils sont aussi plus sensibles au cisaillement en raison de leur conformation allongée en solution, ce qui peut limiter leur usage dans les procédés à agitation turbulente (Yukselen & Gregory, 2004). Il est également primordial que les concentrations de polymères soient réduites au minimum afin de limiter les rejets dans l'environnement (Bolto & Gregory, 2007).

L'efficacité de la floculation est souvent évaluée par la mesure de la turbidité résiduelle, un indicateur indirect, mais sensible de la performance du procédé. Des fluctuations de turbidité dans les systèmes à écoulement turbulent ont été observées lorsque les conditions de floculation sont instables ou sous-optimales (Gregory, 1985).

1.2.2.1 Le polyacrylamide

Le polyacrylamide (PAM) est un polymère hydrosoluble synthétisé à partir du monomère d'acrylamide. Il existe sous trois formes principales selon la nature des groupements fonctionnels incorporés dans sa chaîne : anionique, cationique et non-ionique. La version anionique est obtenue par hydrolyse partielle des groupes amides, qui introduisent des fonctions carboxyles, tandis que la version cationique incorpore des groupes ammonium quaternaires. Les formes non ioniques, quant à elles, sont chimiquement neutres et souvent utilisées en tant qu'auxiliaires de coagulation (Shatat et al., 2019; Xiong et al., 2018).

La masse molaire du PAM, souvent très élevée généralement comprise entre 10^5 et 10^7 g/mol, influence fortement ses propriétés floculantes par effet de pontage, toutefois, des versions greffées, telle que le PAM modifié avec du poly(éthylène oxyde méthyle méthacrylate) (PEOMA), ont montré des performances accrues en floculation en raison d'interactions hydrophobes supplémentaires (Hripko et al., 2018).

Ces caractéristiques physico-chimiques influencent directement le comportement du PAM dans les procédés de floculation. Les sections suivantes résument les principaux aspects liés à ses mécanismes d'action, son efficacité, sa sensibilité aux paramètres opératoires et les considérations environnementales associées :

- **Mécanismes de floculation :** Le PAM agit principalement par adsorption et pontage (bridging) des particules colloïdales déstabilisées, formant des floes plus gros et plus denses. Dans les systèmes à charge négative (eaux chargées en argiles ou matières organiques), les PAM cationiques sont souvent plus efficaces en raison de leur capacité

à neutraliser la charge des particules. Les anioniques, quant à eux, interagissent favorablement avec les cations divalents, favorisant leur adsorption sur les surfaces négatives des particules (Liu et al., 2014; Shatat et al., 2019).

- **Efficacité dans les eaux usées industrielles :** De nombreux travaux ont démontré l'efficacité du PAM dans le traitement des effluents industriels, notamment ceux issus du secteur pétrolier. Par exemple, l'usage du PAM anionique à masse moléculaire très élevée a permis de flocculer les fines particules argileuses des boues de sable bitumineux, mais avec un compactage de sédiments souvent insuffisant. Des copolymères hydrophobes ont permis d'augmenter significativement le taux de décantation et la turbidité résiduelle grâce à une meilleure structuration des floccs et un taux de rétention d'eau réduit (Hripko et al., 2018). Une autre étude a montré que le couplage du PAM avec de l'amidon activé permettait de réduire les doses de PAM nécessaires tout en maintenant une performance équivalente, voire supérieure, en termes de turbidité et de taille de floccs (Lapointe & Barbeau, 2017).
- **Influence des paramètres opératoires :** Les performances du PAM sont sensibles à plusieurs facteurs expérimentaux : le pH, la présence d'ions divalents, la dose injectée, mais aussi la conformation moléculaire du polymère en solution. Par exemple, une température élevée (jusqu'à 60 °C) augmente l'adsorption du PAM anionique sur les argiles en diminuant les liaisons hydrogène avec l'eau (Xiong et al., 2018).
- **Considérations environnementales et toxicité :** Bien que le PAM soit largement utilisé, sa stabilité chimique et son potentiel de libération de monomère d'acrylamide posent des enjeux sanitaires. L'acrylamide est un composé classé comme probablement cancérogène pour l'humain. Même si les formulations commerciales garantissent des niveaux résiduels faibles (<0.05 %), des conditions environnementales (UV, pH) peuvent favoriser sa libération (Li et al., 2023; Xiong et al., 2018). La biodégradabilité du PAM reste limitée, bien que certaines souches bactériennes soient capables de dégrader partiellement les chaînes polymériques sous conditions aérobies ou

anaérobies (Xiong et al., 2018). En revanche, les copolymères hydrophobes ou les formulations greffées sont souvent moins biodégradables et peuvent persister dans les milieux aquatiques, justifiant la recherche d'alternatives biosourcées ou écoresponsables.

1.2.3 Traitement des eaux pétrochimiques

Comme mentionné précédemment, l'exploitation des sables bitumineux génère d'important volume d'effluents appelés *mature fine tailings* (MFT) qui sont stockés dans d'immenses bassins, qui dans la majorité des cas, ne reçoivent aucun traitement actif pendant de longues périodes, entraînant des problèmes environnementaux majeurs, notamment la pollution des eaux souterraines et la perte de grandes superficies de terres (Hripko et al., 2018; Li et al., 2023). Parmi les solutions industrielles explorées pour accélérer la consolidation des sédiments et permettre la récupération de l'eau, on retrouve des technologies comme le séchage en couche minces, la centrifugation, ou encore la stabilisation des MFT par ajout de sable (composite tailing). Ces approches reposent toutes sur l'usage de flocculants polymériques, dont le polyacrylamide anionique à masse moléculaire très élevée reste l'agent standard. Toutefois, l'efficacité de ces traitements est limitée, les floes formés présentent souvent une structure gélatineuse à faible résistance mécanique, incapable de supporter des opérations de remblai ou de réhabilitation du site (Hripko et al., 2018).

En l'absence de traitement adéquat, ces bassins peuvent rester actifs pendant plusieurs décennies, retardant considérablement les projets de réhabilitation environnementale. Ce constat souligne l'urgence de développer des procédés de traitement plus performants, durables et adaptés aux particularités des effluents pétrochimiques complexes.

1.3 Effet des Fibres de cellulose

La cellulose est le biopolymère naturel le plus abondant sur terre. Elle est constituée de chaînes linéaires de D-glucose reliées par des liaisons $\beta(1\rightarrow4)$, formant des micro- et nano-fibrilles grâce à de nombreuses liaisons hydrogène inter- et intra-chaînes (Jamshaid et al., 2017). On la

retrouve dans des sources variées (carton recyclé, papiers) grâce à sa structure riche en groupements hydroxyles, elle présente une forte affinité avec divers contaminants via des mécanismes d'interaction chimique ou physique (Peng et al., 2020).

1.3.1 Utilisation des fibres cellulosiques

Les fibres cellulosiques ont été utilisées avec succès comme matériaux d'adsorption, de floculation ou de filtration dans le traitement des eaux contaminées. Leur structure poreuse, leur surface spécifique élevée et leur caractère biodégradable en font des alternatives prometteuses, ces fibres présentent également une bonne dispersion dans l'eau et leur structure est propice à l'agrégation (Alioua & Lapointe, 2023).

Plusieurs études ont démontré leur efficacité pour :

- l'adsorption de métaux lourds (Pb, Cd, Cu, Ni) (Jamshaid et al., 2017).
- La rétention de polluants organiques (BTEX, huiles, phénols) (Peng et al., 2020).
- La floculation des solides en suspension dans les effluents issus du forage ou du traitement du pétrole (Peng et al., 2020).

Contrairement aux polymères classiques, les fibres cellulosiques ne présentent pas de toxicité résiduelle, sont biodégradables et peuvent parfois être recyclées ou valorisées. Leur coût de production peut aussi être réduit si elles sont issues de résidus industriels (ex. carton recyclé, papier recyclé). En outre, leur structure bidimensionnelle permet une action combinée d'adsorption et de floculation, ce que les polymères linéaires peinent à réaliser dans certains contextes complexes comme les effluents pétrochimiques.

Récemment, des fibres cellulosiques ont été réétudiées et fonctionnalisées pour agir comme super-bridging agents dans les procédés de coagulation/floculation. Lorsqu'elles sont combinées à des coagulants (comme l'alun) et des floculants (comme le polyacrylamide), ces fibres permettent la formation de floes 10 à 100 fois plus grands que ceux issus des traitements conventionnels (Alioua & Lapointe, 2023). Ces floes de grande dimension facilitent non

seulement la décantation rapide, mais permettent aussi l'utilisation de systèmes de séparation alternatifs tels que le tamisage, réduisant ainsi les besoins en infrastructures lourdes comme les bassins de sédimentation. Ces matériaux dits « super-bridging agents » ont aussi l'avantage de gérer des floes de grande taille, plus faciles à retirer par décantation, flottation ou tamisage, et permettre parfois de combiner clarification, désinfection partielle et déshydratation des boues dans un seul procédé (Mebarki et al., 2025; Raissouni et al., 2024).

Dans le contexte du traitement des eaux usées, les fibres ont montré une efficacité remarquable pour la rétention des solides en suspension, des microplastiques, et de la matière organique (Lapointe et al., 2022). De plus, elles permettent d'améliorer le rendement de procédés tels que la flottation ou la décantation, souvent utilisées dans les stations de traitement en milieu industriel (Lapointe et al., 2022; Raissouni et al., 2024). Une étude récente a démontré que l'usage des fibres permettait non seulement de réduire les doses de coagulants métalliques, mais aussi de favoriser leur réutilisation grâce à un mécanisme de recyclage intégré basé sur la rétention sur support fibreux (Raissouni et al., 2024).

1.3.2 Fibres fonctionnalisées : greffage et amélioration des performances

Pour accroître leur efficacité, les fibres cellulosiques peuvent être modifiées par greffage chimique ou physique. Le greffage au fer (Fe^{3+}) est l'une des stratégies les plus étudiées. Ce procédé permet l'introduction de fonctions complexantes (hydroxydes de fer, sites d'échange ionique) capable de capturer des anions (phosphates, sulfates), des colloïdes ou des matières organiques dissoutes. Les fibres greffées au fer ont démontré une capacité accrue de floculation, une vitesse de sédimentation améliorée, et une réduction significative de la turbidité et des matières en suspension (Kurusu et al., 2022). Ces fibres greffées ont une capacité supplémentaire d'adsorption des matières organiques naturelle (NOM) et du phosphore, tout en permettant une réduction de plus de 60 % de la consommation de coagulant en recyclant ce dernier à travers les floes récupérés (Kurusu et al., 2022).

Jusqu'à présent aucune utilisation n'a encore été effectuée sur les eaux usées issues de l'industrie pétrochimique. Mais l'intégration des fibres cellulosique, en particulier celles modifiées, dans les procédés de traitement, représente une avancée prometteuse vers des technologies économiques et efficaces, notamment pour le traitement des eaux usées très contaminées et mal traité.

1.3.3 Avantages et limites

L'intégration de fibre de cellulose, qu'elle soit greffée ou non, présente de nombreux avantages dans le cadre du traitement des eaux. Ces fibres agissent comme des agents de pontage « super-bridging agents », permettant la formation de floccs de très grande taille 10 à 100 fois supérieurs à ceux obtenus par les procédés conventionnels. Cette propriété améliore considérablement l'efficacité de la décantation ou permet même de la remplacer par des procédés plus compacts comme le tamisage (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022). Par ailleurs, l'ajout de fibres permet une réduction notable des doses nécessaires en coagulant et en floculant, ce qui diminue les coûts d'exploitation (Kurusu et al., 2022).

Lorsque les fibres sont greffées, elles offrent des fonctionnalités supplémentaires, elles adsorbent plus efficacement les contaminants (Kurusu et al., 2022). Cependant, leur utilisation comporte certaines limites, une concentration trop élevée en fibre peut générer des fibres libres non intégrées dans les floccs, ce qui augmente la turbidité résiduelle si le système de séparation n'est pas adapté (Kurusu et al., 2022). De plus, leur efficacité dépend étroitement de la synergie avec le floculant, des dosages inappropriés de PAM peuvent compromettre la formation et la stabilité des floccs (Raissouni et al., 2024).

Le risque de colmatage des tamis existe également, en particulier si la taille des floccs ou le type de fibre ne sont pas bien maîtrisés. Enfin, la variabilité des performances peut être influencée par la nature des fibres utilisée, leur traitement préalable, leurs caractéristiques morphologiques, mais aussi la matrice d'eaux usées à traiter. En dépit des contraintes, les fibres représentent une alternative prometteuse, conciliant performance et faible impact

environnemental, notamment dans le contexte du traitement des effluents industriels complexe comme ceux de la pétrochimie.

1.4 Lacunes identifiées dans la littérature

Malgré l'abondance de travaux sur l'utilisation de coagulants et flocculants naturels ou modifiés, plusieurs lacunes importantes persistent dans la littérature actuelle, en particulier concernant les effluents issus du secteur pétrochimique. Premièrement, peu d'études se sont intéressées à l'efficacité des fibres cellulosiques (modifiées ou non) ou des polymères dans des matrices complexes riches en composés organique récalcitrants tels que les acides naphténiques, les hydrocarbures ou les métaux lourds typiques des eaux de procédés pétrochimiques. La majorité des expérimentations rapportées concernent des eaux simulées ou sur des MFT préalablement diluées, ce qui implique une consommation supplémentaire d'eau et limite la transférabilité des résultats en conditions réelles. Le développement de procédés efficace applicables directement aux MFT non diluées, comme ceux récemment testés avec des systèmes flocculants duals, représente un enjeu crucial pour la viabilité environnementale et industrielles de ces technologies (Dixon & Soares, 2024). Deuxièmement, les études comparatives rigoureuses entre ces matériaux biosourcés et les coagulants conventionnels à base de sels métalliques (comme l'alun ou le chlorure ferrique) restent rares. Lorsqu'elles existent, elles se limitent souvent à une comparaison de rendement en matière de turbidité ou de DCO, sans approfondir les mécanismes de déstabilisation colloïdale ni les impacts environnementaux associés aux résidus générés. Parmi les solutions explorées, les systèmes de floculation duale utilisant un polymère anionique (comme le polyacrylamide hydrolysé) combiné à un polymère cationique (comme le PVBTMAC) ont démontré une efficacité supérieure en matière de décantation et déshydratation des MFT. Ce type de système permet d'atteindre un taux de solides de 61 % après filtration à basse pression, contre moins de 30M avec les flocculants traditionnels seuls. La performance optimale est obtenue lorsque le potentiel zêta est proche de 0 mV, favorisant la neutralisation des charges et l'agrégation des particules colloïdales (Dixon & Soares, 2024). Enfin très peu de travaux ont été conduits à l'échelle pilote ou semi-industrielle, ce qui constitue un frein majeur à la validation de ces solutions

pour une application réelle à grande échelle. Ce manque d'investigation en conditions opérationnelles soulève des incertitudes quant à la stabilité, la reproductibilité et la faisabilité économique de ces alternatives dans les traitements des eaux industrielles complexes.

La présente recherche s'inscrit donc dans une volonté de combler plusieurs lacunes identifiées dans la littérature, notamment le manque de données expérimentales sur les matrices pétrochimiques complexes et la rare évaluation comparative entre biomatériaux et floculants. En explorant l'efficacité de fibres cellulosiques brute et greffées au fer dans le traitement d'effluents industriels réels par floculation, cette étude propose une approche originale, fondée sur des essais normalisés (jar tests) et un protocole reproductible. Ce positionnement méthodologique permet non seulement d'apporter des données inédites sur le comportement de ces matériaux dans un contexte réel, mais aussi de contribuer à l'évaluation de leur pertinence dans des scénarios semi-industriels, souvent absents des travaux antérieurs.

CHAPITRE 2

MATÉRIEL ET MÉTHODES

2.1 Description de la matrice d'eau usée étudiée

Les expérimentations ont été réalisées sur des effluents pétrochimiques collectés à partir d'un site industriel. La chaudière réceptionnée au laboratoire contenait des boues pétrochimiques très denses qui proviennent des bassins de décantation (tailings ponds), où sont entreposés les résidus de traitement issus de l'extraction des hydrocarbures. Pour les besoins des tests en laboratoire, ces boues ont été remises en suspension dans l'eau osmosée afin de reproduire une turbidité cible de 75 NTU, valeur caractéristique de la couche colloïdale des MFT, difficile à déstabiliser. Ce protocole de re-suspension permet de simuler des conditions réalistes de traitement tout en assurant la reproductibilité des essais (Wan et al., 2019). Avant chaque essai, les échantillons ont été homogénéisés par agitation mécanique pendant 5 min afin d'assurer une répartition uniforme des particules, et le pH ajusté à 7 à l'aide du NaOH afin d'assurer une bonne floculation. Aucun prétraitement (filtration ou dilution) n'a été appliqué, afin de préserver les caractéristiques réelles de l'effluent.

Tableau 2.1 Caractéristiques de l'eau brute

Turbidité (NTU)	pH	COT (mg/L)	Fluorescence
75 ± 1	7.1 ± 0.2	5.5 ± 0.2	6.4 ± 1.9

Ces résultats montrent que la matrice présente une composition typique des effluents issus de bassins de décantation pétrochimiques. La turbidité reflète une charge colloïdale importante, associée à une forte concentration comme dans les MFT. La valeur du COT modéré suggère la présence de composés organiques peu biodégradables, souvent issus de procédés de transformation pétrolière. Enfin la concentration notable en acides naphténiques souligne la toxicité potentielle de cette matrice, justifiant le recours à des matériaux innovants capables d'interagir avec ces composés récalcitrants.

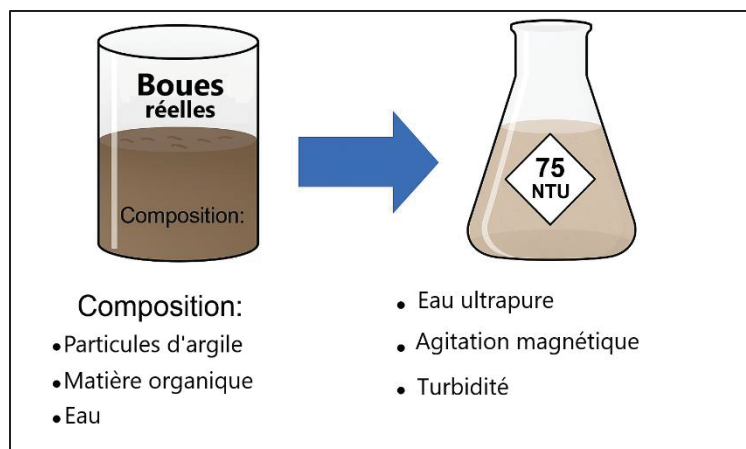


Figure 2.1 Préparation de la matrice synthétique simulant les MFT

2.2 Matériaux utilisés

2.2.1 Flocculants utilisés

Dans cette étude, quatre flocculants à base de polyacrylamide (PAM) ont été évalués afin d'étudier l'effet de la nature et de la densité de charge sur l'efficacité de la floculation des boues pétrochimiques en suspension. Trois d'entre eux sont cationiques (c-PAM 1, c-PAM 2, c-PAM 3) et un est anionique (a-PAM), chacun présentant des densités de charge et des masses moléculaires différents. L'efficacité de ces flocculants dépend notamment de leur masse moléculaire (favorisant le pontage entre particules) et de leur densité de charge (conditionnant leur capacité d'adsorption électrostatique). Les PAM cationiques ont une affinité élevée pour les particules colloïdales chargées négativement, quant au PAM anionique bien que son efficacité soit généralement inférieure dans les matrices majoritairement négatives comme les MFT il a été utilisé à des fins comparatives.

Ces flocculants ont été sélectionnés pour représenter une gamme étendue de conditions électrostatiques, afin d'identifier les formulations les plus performantes dans le contexte de traitement d'effluents pétrochimiques complexes. Les PAM cationiques ont été fournis par Kemira Water Solution Canada Inc. Et le PAM anionique a été fourni par Hydrex.

Tableau 2.2 Propriétés des PAM testés.
Adapté de Mebarki et al. (2025)

Tested polyacrylamides	Charge	Charge Density (%)	Molecular weight
c-PAM 1	cationic	~ 7 % 	high
c-PAM 2	cationic	~ 35 % 	high
c-PAM 3	cationic	~ 55 % 	high
a-PAM	anionic	< 10 % 	very high

Une solution mère de 500 mg/L a été préparée pour chacun des PAM en dissolvant 50 mg dans 100 mL d'eau osmosée sous agitation magnétique pendant 15 min.

2.2.2 Fibres cellulosiques

Les fibres cellulosiques utilisées proviennent de papier d'eucalyptus, sélectionné pour sa structure fibreuse homogène et sa bonne dispersion. La préparation des suspensions de fibres non greffées (5 g/L) a été réalisée en dispersant 2.5 g de fibres sèches non greffées dans 500 mL d'eau osmosée, suivie d'une homogénéisation à l'aide d'un mélangeur à haute vitesse (Ninja blender) pendant 15 à 20 secondes. Cette étape permet d'obtenir une suspension homogène sans altérer la structure fibrillaire.

Greffage au fer : les fibres greffées ont été synthétisées selon un protocole en plusieurs étapes, visant à améliorer leurs propriétés de floculation par l'incorporation de fer sous forme d'oxydes/hydroxydes à leur surface. Le greffage a été réalisé avec le coagulant PIX 311 (solution commerciale de chlorure ferrique), choisi pour sa capacité de formation d'oxydes et d'oxydes-hydroxydes de fer stables lors de l'hydrolyse, favorisant à la fois l'adsorption de contaminants et les interactions de pontage au cours du processus de floculation (Kurusu et al., 2022).

Le protocole détaillé est le suivant :

- Disperser 1g de fibres dans 100 mL d'eau ultrapure et homogénéisé mécaniquement pendant 15 à 20 s à l'aide d'un blender.
- Injecter sous agitation 2.35 g Fe/L à partir du PIX 311.
- Ajuster le pH à 5.0 ± 0.2 à l'aide d'une solution de NaOH 2 M.
- Introduire une dose de 20 mg/L de polyacrylamide pour renforcer le pontage entre les fibres et améliorer la fixation du fer.
- Agiter la suspension pendant 30 à 50 secondes supplémentaires pour favoriser le greffage.
- Sécher et stabiliser : les fibres greffées ont été récupérées puis soumises à différentes conditions de séchage, en faisant varier à la fois la température (30 °C, 45 °C, 60 °C et 90 °C) et la durée (1 h, 2 h, 3.5 h, 4 h et 24h). Le séchage a été réalisé dans une étuve, les fibres étant étalées en couche mince sur des nacelles en aluminium.

Ces conditions ont été sélectionnées dans le but d'identifier un compromis optimal entre la réduction de l'humidité résiduelle et la stabilisation du fer greffé. Et afin de déterminer la condition optimale de séchage, des tests ont été menés selon les étapes suivantes ;

- Peser les fibres humides greffées immédiatement après leur récupération;
- Mettre les fibres dans l'étuve selon les combinaisons temps/température ciblées;
- Peser les fibres sèches à chaque temps ciblé;
- Calculer les pourcentages de séchage pour chaque condition;
- Prendre les échantillons de fibres selon le temps/température de séchage, les rincer et re broyer au blender, et récupérer le surnageant afin de le soumettre au turbidimètre.

Cette approche a permis d'évaluer l'efficacité du séchage par variation de masse ainsi que la stabilité du greffage par contrôle de la turbidité. La condition présentant un compromis favorable entre séchage rapide et faible relargage de fer a été retenue pour la suite des essais

de floculation. Ensuite, une suspension de 5 g/L de fibre greffée a été préparée 2.5 g de fibres sèches greffées dans 500 mL d'eau osmosée.

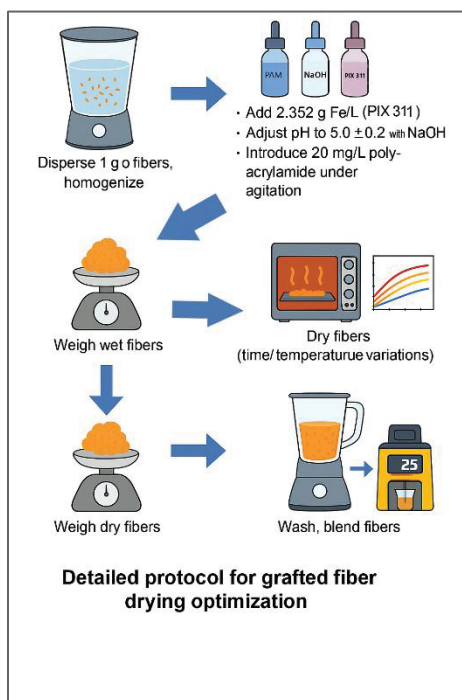


Figure 2.2 Schéma représentant le protocole effectué pour la synthèse des fibres greffées
Tirée de Mebarki et al. (2025) (article soumis)

2.2.3 Autres matériaux et réactifs

Les autres produits chimiques et matériels utilisés au cours de cette étude sont listés ci-dessous :

- Base forte : une solution de NaOH 2 M a été utilisée pour ajuster le pH lors du greffage des fibres et pour ajuster le pH des échantillons d'eau brute.
- Dilutions, rinçages, préparation de fibres, et toutes les suspensions ont été réalisées à l'aide de l'eau osmosée.
- Contenant et verreries :
 - Bêchers en verre (100 mL, 250 mL, 500 mL, 1 L)
 - Pressoir munit d'un tamis 100 μm

- Cylindre gradué (10 mL, 100mL, 250 mL, 500 mL)
- Nacelles en aluminium
- Tubes en plastique
- Pipette automatique (10 mL, 1000 μ L, 100 μ L)
- Barreaux magnétiques en croix (3.5 cm x 3.5 cm)
- Appareillage complémentaire :
 - Balance analytique (précision $\pm$ 0.1 mg)
 - Blender (Ninja[®])
 - Étuve (Binder ED 56)

2.3 Méthodologie

2.3.1 Essais de jar test – floculation

Les jar tests ont été réalisés dans des béchers équipés de barreaux magnétiques en croix placés au fond du récipient, avec une agitation magnétique à vitesse constante (300 rpm) tout au long du test. Chaque essai a été mené sur un échantillon d'eau brute de 250 mL, et a été conduit un par un de manière manuelle et reproductible, dans les mêmes conditions de température $\sim$ 21 °C, en duplicata. Aucune étape de coagulation n'a été réalisée, seule la floculation a été étudiée, en présence ou non de fibres.

Protocole de la floculation

Les étapes de la floculation se déroulent comme suit :

- Durée totale de floculation : 4 minutes;
- Injection du polymère en deux temps :
 - T= 0 min : première moitié de la dose totale de polyacrylamide (PAM), ajoutée sous agitation;
 - T= 2 min : seconde moitié du PAM, injectée sans interruption de l'agitation;
- En cas d'ajout de fibres (greffées ou non greffées) : celles-ci étaient introduites en même temps que la première portion de PAM (à T = 0 min);

- Arrêt du jar test : à $T = 4$ min arrêter l'agitation;
- Décantation, pressage et prélèvement : à l'arrêt du jar test, laisser décanter et prélever des échantillons du surnageant après 30 secondes puis un autre après 3 minutes de décantation. Prendre le pressoir et appliquer une légère force afin de l'abaisser au fond du presse-café, pour permettre une séparation mécanique des flocs sans grosse perturbation, et prélever un échantillon de surnageant. Cette étape de pressage n'a été réalisée que pour certains essais ciblés;
- Soumettre les échantillons prélevés pour analyses (turbidité, COT, fluoromètre).

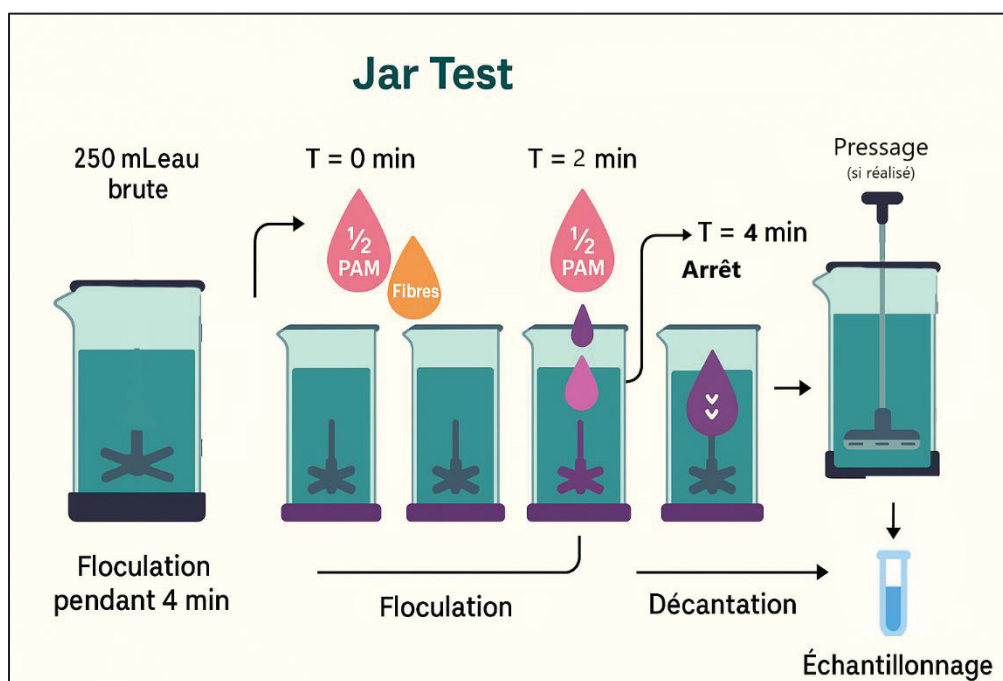


Figure 2.3 Protocole de floculation

2.3.2 Protocole de dosage

Les dosages des flocculants et des fibres (greffées et non greffées) ont été définis afin d'évaluer leur efficacité dans le traitement de la matrice d'eau étudié et de déterminer les doses et la combinaison la plus optimale donnant le meilleur résultat. Tous les essais ont été réalisés en duplicata sur un volume fixe de 250 mL. Plusieurs PAM ont été testés, différant par leur type

(cationique ou anionique) et leur densité de charge (cf. section 2.2.1). Les différents PAM (c-PAM 1, c-PAM 2, c-PAM 3, a-PAM) ont été testés sur deux doses : 2 mg/L et 5 mg/L avec une concentration en fibres greffées de 200 mg/L. Ensuite, le c-PAM 3 a été choisi pour la suite des essais, et sa concentration a été varié selon les doses qui suivent : 0.5 mg/L, 1 mg/L, 2 mg/L, 3 mg/L, 5 mg/L. Avec une dose de fibres greffée et non greffée fixe de 200 mg/L. La dose de c-PAM 3 a ensuite été fixé à 1 mg/L et les fibres cellulosiques, qu'elles soient non greffées ou greffées, ont été testées à différentes concentrations : 50 mg/L, 100 mg/L, 150 mg/L, 200 mg/L, 250 mg/L, 300 mg/L.

Des conditions de référence et comparaison pour les séries d'essais ont été effectuées, des témoins sans ajout de fibres (mais avec PAM seul) ont été réalisés, de même que des essais sans aucun réactif (ni fibres ni PAM) afin de connaître les caractéristiques de l'eau brute et d'obtenir une base de référence pour évaluer le rendement de clarification. L'ensemble de ces conditions a permis de comparer l'impact du flocculant seul, et des combinaisons fibres + flocculant, en fonction de leur nature (greffée ou non greffée) et de leur concentration.

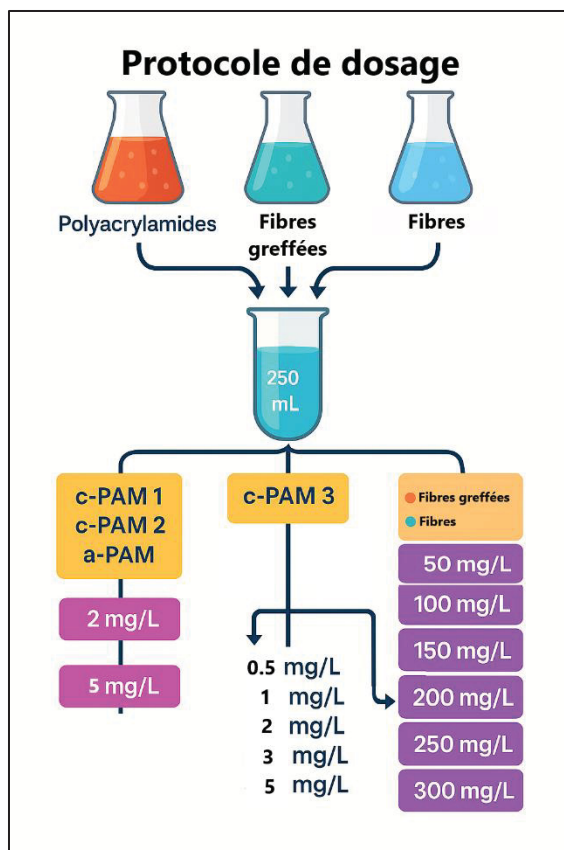


Figure 2.4 Schéma illustrant le protocole de dosage

2.4 Analyses physico-chimiques

À l'issue des essais de floculation, les surnageants récupérés ont été soumis à plusieurs analyses physico-chimiques afin d'évaluer les performances de clarification et la rétention des contaminants organiques et colloïdaux. Les paramètres mesurés incluent la turbidité, le carbone organique total (COT) et la concentration en acides naphéniques (NA).

2.4.1 pH

Le pH a été déterminé à l'aide d'un pH-mètre étalonné, avec une électrode combinée standard, préalablement calibrée avec des solutions tampon pH 4, 7 et 10.

2.4.2 Turbidité

La turbidité a été mesurée selon le standard Method 2130B, à l'aide d'un turbidimètre Hach 2100N, les résultats sont exprimés en unités néphélométriques (NTU).

2.4.3 Carbone organique total

La mesure du carbone organique total (COT) a été réalisée selon le Standard Method 5310C, à l'aide d'un analyseur Sievers 5310C (GE Analytical Instruments, GE water). Cet appareil utilise une oxydation catalytique à haute température ($> 800\text{ }^{\circ}\text{C}$) en présence d'un catalyseur et d'un oxydant, suivie d'une détection par infrarouge non dispersif (NDIR).

L'étalonnage a été effectué à l'aide de solutions standards pour le carbone total (TC) et le carbone inorganique (IC), préparées par dilutions successives (voir Annexe I). Chaque série d'analyse comprenait les standards des blancs analytiques entre chaque gamme d'échantillons et des duplicatas afin d'assurer la stabilité de la réponse instrumentale.

2.4.4 Acides naphténiqes

Les acides naphténiqes (NA) ont été quantifiés par fluorométrie, selon une méthode adaptée de Mohamed et al. Pour l'analyse rapide des acides issus des sables bitumineux (Mohamed et al., 2008).

Les analyses ont été effectuées à l'aide d'un spectrofluoromètre Cary Eclipse, Varian, avec des paramètres optimisés, et une courbe d'étalonnage effectué a $\text{pH} = 7$ (voir Annexe II). La détection a été réalisée avec une longueur d'onde d'excitation $\lambda_{\text{Ex}} = 282\text{ nm}$ et une longueur d'ode d'émission $\lambda_{\text{Em}} = 332\text{ nm}$.

2.4.5 Spectroscopie photoélectronique par rayon X

La caractérisation de surface des fibres (fibres et fibres greffées) a été déterminée par spectroscopie photoélectronique par rayon X (XPS) (Escalab 250Xi, Thermo 435 Fisher Scientific).

2.4.6 Fréquence des mesures et validation

Chaque condition a été analysée en duplicata, sur les échantillons prélevés à 30 secondes et 3 minutes de décantation, et après le pressage (lorsqu'applicable) ainsi que sur des échantillons d'eau brute (non traitée). Des blancs analytiques (eau ultrapure) ont été analysés à chaque série pour détecter d'éventuelles contaminations. Les analyses statistiques avec des test pairé de Student ont été appliquées pour tous les résultats de turbidité et de COT, et pour toutes les concentrations en acides naphéniques obtenues.

CHAPITRE 3

RÉSULTATS ET DISCUSSION

3.1 Potentiel combiné de la technologie appliquée aux traitements des eaux

3.1.1 Concept du réacteur multifonctionnel à base de fibres (3-en-1)

Cette section introduit un concept innovant de traitement des eaux usées développé dans un article scientifique publié en 2025 dans *npj Clean Water* (facteur d'impact: 12,3) (CHAPITRE 4). Le potentiel de la technologie a d'abord été démontré sur des eaux en provenance d'Afrique ayant une turbidité très élevée ($589,0 \pm 0,5$ NTU). Le procédé repose sur un réacteur dit « 3-en-1 », qui intègre de manière simultanée les étapes de floculation, de séparation solide-liquide et de déshydratation des boues, en s'appuyant sur l'usage de superagents de pontage (fibres cellulosiques). Contrairement aux traitements conventionnels requérant l'ajout de coagulants métalliques, une décantation et une filtration granulaire, ce procédé simplifié 3-en-1 repose uniquement sur un floculant synthétique (c-PAM) combiné à des fibres jouant le rôle d'agents de pontage (« super-bridging agents »), facilitant la formation de floes de grande taille directement filtrables/tamisables.

La figure suivante compare visuellement les deux approches (traitement conventionnel vs procédé à base de fibres). Les résultats expérimentaux démontrent une amélioration significative des taux d'élimination du carbone organique total, de la turbidité, ainsi que des nanoplastiques et microplastiques de différentes tailles. Ces performances expérimentales justifient l'intérêt d'évaluer, à l'aide d'essais de jar test en laboratoire, la capacité du système étudié à reproduire le fonctionnement d'un réacteur 3-en-1. La section *Impact of super-bridging agents on conventional and emerging contaminants* est extrait tel quel de l'article publié dans *npj Clean Water* (Mebarki et al., 2025). Elle présente le concept du réacteur 3-en-1 à base de fibres utilisé pour améliorer l'élimination des contaminants émergents dans l'eau.

3.1.2 Déshydratation des boues in situ à l'aide d'agents fibreux

La gestion des boues générées lors du traitement des eaux usées représente un défi majeur, notamment dans les contextes à ressources limitées. La section *Sludge dewatering and management, in situ* à la page 64 présente les résultats des tests menés sur la déshydratation des boues réalisée avec des échantillons d'eau brute prélevée en République Démocratique du Congo (site DRC B). L'objectif était d'évaluer l'impact de l'ajout de fibres cellulosiques sur la teneur en matière sèche des boues, en comparant différents dosages de floculant cationique (c-PAM 3) et deux méthodes de séparation (avec et sans pressage).

Les résultats montrent que les floccs formés en absence de fibres sont trop petits pour permettre une déshydratation mécanique efficace. En revanche, l'ajout de fibres a permis la formation de floccs suffisamment stables pour être filtrés à l'aide d'une maille de 200 μm , ce qui a conduit à une augmentation marquée de la matière sèche des boues, atteignant jusqu'à 3.5 % en masse après pressage. Cette amélioration est significative comparée au traitement conventionnel (0.3 %), et pourrait réduire considérablement les coûts liés au transport et au séchage thermique, notamment en ce qui concerne la distribution homogène des fibres et l'optimisation des paramètres de pressage.

3.2 Application de la technologie aux eaux usées pétrochimique

Les sections suivantes concernent l'application de la technologie dans le contexte de l'eau contaminée aux hydrocarbures. Cela fait l'objet d'un deuxième article en cours de soumission (CHAPITRE 5).

3.2.1 Synthèse et optimisation des fibres cellulosiques greffées au fer

La procédure de synthèse et les tests d'optimisation réalisés sur des fibres cellulosiques greffées au fer, conçues pour améliorer les performances de floculation dans le traitement des eaux usées est représenté dans la section 5.3.1. L'objectif était de maximiser la stabilité du fer greffé tout en maintenant la fonctionnalité des fibres. Après dispersion des fibres de cellulose

et ajout de coagulant ferrique, un greffage assisté par polyacrylamide a été effectué sous agitation contrôlée. Plusieurs conditions de séchage ont été testées afin d'identifier la température et la durée permettant d'assurer à la fois un séchage efficace et une rétention optimale du fer.

Les résultats ont démontré que le séchage à 90 °C pendant 1 heure permettait d'atteindre une efficacité de déshydratation supérieure à 80 % tout en limitant le relargage de fer (< 55 NTU, mesuré dans l'eau de rinçage). Ce comportement serait lié à la conversion progressive des hydroxydes ferriques amorphes ($\text{Fe}(\text{OH})_3$) en formes plus stables comme FeOOH ou Fe_2O_3 à la surface des fibres (Kurusu et al., 2022). Cette condition a donc été retenue pour la suite des expérimentations sur les eaux usées, en raison de son efficacité.

3.2.2 Caractérisation de la surface des fibres et fibres greffées par spectroscopie

Une analyse par spectroscopie photo-électronique à rayon X (XPS) a été réalisée afin de comparer la composition élémentaire en surface des fibres cellulosiques brutes et greffées au fer dans la section 5.3.2. Les fibres présentent majoritairement du carbone (≈ 57 %) et de l'oxygène (≈ 42 %), conformément à la structure polysaccharide de la cellulose. En revanche, les fibres greffées présentent une diminution notable du carbone de surface (≈ 40 %) et une augmentation de l'oxygène (≈ 45 %), traduisant une modification chimique liée à la greffe. La présence exclusive d'un signal de fer (≈ 11 %) sur les fibres greffées confirme l'incorporation réussie d'espèces ferriques à leur surface (Gialanella et al., 2010). De faibles pourcentages en silicium, de chlore, de sodium et d'azote (< 1 %) ont également été détectés, probablement issus des réactifs utilisés ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, NaOH , PAM). Ce résultat corrobore le protocole de synthèse mis en œuvre et met en évidence la stabilité du fer greffé après séchage. Notons que le polyacrylamide (PAM), également utilisé lors des essais de floculation, est impliqué dès l'étape de synthèse des fibres greffées, ce qui suggère un effet synergique potentiel lors de leur utilisation en combinaison dans les essais de traitement.

3.2.3 Évaluation de la floculation par différents polyacrylamides combinés à des fibres greffées au fer pour le traitement des eaux usées pétrochimiques

La section 5.3.3 présente les résultats de tests de floculation réalisés sur les eaux usées pétrochimiques représentant la couche des MFT, dans le but d'évaluer l'efficacité des fibres greffées combinées à différents flocculants de type polyacrylamide. Des essais jar test ont été menées avec quatre types de polyacrylamides comme mentionnés dans le chapitre 2, trois PAM cationiques et un anionique à deux concentrations 2 mg/L et 5 mg/L, avec une dose constante de fibres greffées (200 mg/L). Les performances ont été évaluées à travers les mesures de turbidité résiduelle, d'enlèvement d'acides naphéniques (NA) et de carbone organique total (COT) après des temps de décantation de 30 secondes et 3 minutes.

Les résultats montrent que les dosages faibles (2 mg/L) sont globalement plus efficaces que les dosages élevés (5 mg/L), en raison d'un moindre risque de surdosage et de restabilisation des floes (Fu et al., 2023). Parmi les flocculants testés c-PAM 2 et c-PAM 3 donnent les meilleurs résultats en termes de réduction de la turbidité, des NA et du COT. Ces performances sont attribuées à un équilibre optimal de la densité de charge, favorisant à la fois l'adsorption, la neutralisation de charge et le pontage des particules (Shatat et al., 2019). L'ajout de fibres greffées a significativement renforcé la stabilité et la densité des floes, grâce à un effet synergique entre renforcement mécanique et augmentation des sites d'adsorption (Lee et al., 2014).

3.2.4 Comparaison de l'efficacité de floculation des fibres greffées et non greffées

Pour mieux évaluer l'impact de la modification des fibres sur la performance de floculation, des essais supplémentaires de jar test ont été menés dans des conditions identiques (2 mg polymère/L) à la section 5.3.4, en comparant trois scénarios : sans fibres, avec fibres non greffées, et avec fibres greffées au fer. Tous les essais ont été réalisés avec les mêmes polyacrylamides (c-PAM 1, c-PAM 2, c-PAM 3, a-PAM), et les performances ont été évaluées en mesurant la turbidité résiduelle à 30 secondes et 3 minutes de décantation, ainsi que l'enlèvement des acides naphéniques (NA) par fluorescence après 3 minutes.

Les résultats montrent clairement que l'ajout de fibres greffées améliore significativement les rendements d'élimination de la turbidité et des NA, quelle que soit la nature du polymère utilisé. À l'inverse, les fibres non greffées ont eu un effet limité, tandis que l'absence de fibres s'est traduite par les performances les plus faibles. Cette différence est attribuée à la double action des fibres greffée : une fonction physique de pontage grâce à la structure filamenteuse de la cellulose, et une fonction chimique apportée par le greffage au fer, qui favorise les interactions électrostatiques et l'adsorption des composés organiques dissous (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022).

Fait notable, l'efficacité du PAM anionique (a-PAM), pourtant peu performant seul ou avec des fibres non greffées, a nettement augmenté lorsqu'il a été utilisé avec des fibres greffées, soulignant le rôle central des fonctionnalités de surface pour compenser les incompatibilités de charge. Ces observations confirment l'intérêt des fibres greffées dans l'amélioration de la floculation, y compris en présence de polymères initialement peu compatibles, et suggèrent leur potentiel pour optimiser les traitements dans les effluents industriels complexes.

3.2.5 Optimisation du dosage de c-PAM 3 en présence et en l'absence des fibres

À la suite des résultats précédents ayant identifié c-PAM 3 comme le floculant le plus performant, dans la section 5.3.5 une série d'essais a été menée pour optimiser sa concentration, testée entre 0.5 et 5 mg/L, des trois configurations expérimentales : sans fibres, avec fibres non greffées, et avec fibres greffées au fer. Tous les essais ont été réalisés avec une dose fixe de 200 mg/L de fibres, la turbidité a été mesurée après 30 secondes et 3 minutes de décantation et l'enlèvement des NA a été évalué après décantations de 3 minutes.

Les résultats montrent que l'ajout de fibres greffées améliore systématiquement l'efficacité de traitement à toutes les concentrations testées de c-PAM 3. Le dosage optimal identifié est de 2 mg/L : il permet d'abaisser la turbidité à environ 3.24 NTU après 30 secondes, et à 1.21 NTU après 3 minutes en présence de fibres greffées, contre environ 7 NTU après 30 secondes (fibres

non greffées), et à plus de 11 NTU (sans fibres). L'élimination des NA a atteint 64 % contre 58 % et 45 %, respectivement. Des effets de surdosage ont été observés au-delà de 2 mg/L, surtout sans fibres, mais limités en présence de fibres greffées. La configuration optimale : 2 mg/L c-PAM 3 + 200 mg/L fibres greffées combine faible demande en polymère, adsorption efficace et formation rapide de floes (Y. Q. Zhao, 2003). Un dosage réduit à 1 mg/L c-PAM 3 a toutefois été retenu pour la suite, dans une optique de limitation des intrants chimiques.

3.2.6 Influence de la concentration en fibres sur la floculation

Dans la section 5.3.6 l'effet de la concentration en fibres sur l'efficacité du traitement a été évalué en maintenant une dose fixe de c-PAM 3 à 1 mg/L, et en faisant varier la concentration en fibres (50 à 300 mg/L), pour des fibres greffées et non greffées. Les performances ont été mesurées par la turbidité après 30 s, 3 min et après pressage mécanique sur une maille de 100 μm , ainsi que par l'élimination des acides naphthéniques (NA) après pressage.

Les fibres greffées ont offert les meilleurs résultats à toutes les concentrations. À 250 mg/L, la turbidité tombée à ~ 2 NTU après 3 min de décantation, contre ~ 8 NTU avec les fibres non greffées. Le pressage a révélé une turbidité résiduelle aussi basse que 1.97 NTU avec les fibres greffées, et une efficacité d'élimination des NA atteignant 66 % contre 52 % avec fibres non greffées. Ces performances sont attribuées à l'effet combiné du pontage physique et de l'adsorption électrochimique induit par le fer greffé. Le pressage mécanique s'est montré particulièrement efficace pour concentrer les boues formées avec les fibres, confirmant leur potentiel dans le traitement des effluents industriels complexes (Mebarki et al., 2025).

3.2.7 Élimination du carbone organique total selon différentes conditions de floculation

L'élimination du carbone organique total (COT) a été évaluée pour plusieurs conditions représentatives des configurations typiques et optimisées testées en jar test dans la section 5.3.7. À 250 mg/L de fibres greffées et 1 mg/L de c-PAM 3, l'efficacité maximale atteinte a été de 55 % légèrement supérieure à celle obtenue avec 2 mg/L de c-PAM 3 (53 %), et bien

au-dessus des résultats observés sans fibres (44 – 46 %) ou avec fibres non greffées (50 – 51 %). Cette amélioration est attribuée à la présence d'hydroxydes de fer chargés positivement sur la surface des fibres, favorisant l'adsorption des composés organiques dissous (Kurusu et al., 2022). Une efficacité encore supérieure (66 % de réduction du COT) a été obtenue avec 200 mg/L de fibres greffées et 2 mg/L de c-PAM 3, soulignant l'importance du bon équilibre entre dose de polymère et surface fibreuses. En effet, une concentration trop élevée en fibres (250 mg/L) sans ajustement proportionnel du polymère peut diluer l'effet du flocculant, limiter l'activation des surfaces adsorbantes, et produire des floes moins cohésifs (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022). À l'inverse, une dose modérée de polymère dans un système riche en fibres semble mieux préserver l'accessibilité des surfaces actives (Raissouni et al., 2024). Ces résultats confirment que l'efficacité d'élimination du COT repose moins sur la concentration absolue de chaque composant que sur leur ratio optimal, influençant directement les mécanismes de pontage et d'adsorption.

3.3 Résultats préliminaires sur d'autres matrices d'eaux usées

Par ailleurs, bien que les résultats présentés dans ce chapitre concernent exclusivement les eaux usées pétrochimiques, des essais préliminaires ont été réalisés sur d'autres types d'effluents afin d'explorer le potentiel d'application plus large des fibres et du procédé. Sur une eau contaminée en hydrocarbures, présentant une turbidité initiale de 574 NTU, un abattement de 93 % a été obtenu avec l'ajout de fibres et de PAM, et jusqu'à 98 % en intégrant une faible dose de coagulant. Pour un lixiviat, l'enlèvement de la turbidité a atteint 92 % avec fibres, contre seulement 4 % en leur absence. Un comportement similaire a été observé sur une eau de compost 93 % avec fibre contre 51 % sans ainsi que sur un second lixiviat 87% de réduction. Enfin, une eau agroalimentaire fortement chargée en composés sucrés, une diminution de la turbidité de l'ordre de 68 % a été enregistrée. Ces performances, obtenues dans des matrices très contrastées en termes de composition et de charge polluante, témoignent de la robustesse et de la polyvalence du procédé développé. Bien que ces essais soient encore en cours et nécessitent un approfondissement méthodologique, les résultats préliminaires obtenus sont très encourageants. Ils ouvrent la voie à une généralisation potentielle de l'usage des fibres pour le

traitement de divers effluents industriels et municipaux, au-delà du seul secteur pétrochimique. Ces perspectives renforceront les travaux de recherche à venir dans le cadre d'un projet doctoral, afin d'approfondir les mécanismes d'interaction mis en jeu et d'optimiser les conditions opératoires pour chaque type d'eau.

CHAPITRE 4

FIBROUS SUPER-BRIDGING AGENTS SIMULTANEOUSLY IMPROVE CONTAMINANTS REMOVAL AND SLUDGE DEWATERING VIA A VERY COMPACT THREE-IN-ONE PROCESS

Manel Mebarki^{1,2}, Gabriella Joge Ngale^{1,2}, and Mathieu Lapointe^{1*}

¹ University of Québec – École de technologie supérieure, 1100 Notre-Dame Ouest,
Montréal, Québec, H3C 1K3, Canada

² These authors contributed equally

* Corresponding author

Article publié dans « *npj Clean Water* » (FACTEUR D'IMPACT : 12,3), Février 2025

4.1 Abstract

A compact three-in-one water treatment process, combining a flocculant, a fibrous super-bridging agent, and a screen-based floc retention system, simultaneously improves water treatment and sludge dewatering. The presence of fibrous materials allows for the formation of very large flocs, efficient floc separation via screening (without the need for settling), and sludge dewatering through a compact press-filter system. The implementation of this three-in-one process is possible due to the formation of fiber-based flocs that are 32 times larger in volume than conventional flocs formed without fibers. The process was tested with four water samples: two from African surface waters (78–589 NTU), one from North American surface water (4.5 NTU), and one from synthetic surface water (6.0 NTU). For all the waters tested, very low turbidities were measured after floc separation via settling or screening (0.2–1.6 NTU), with no need for membrane or granular filtration systems. The sludge containing fibers was subsequently dewatered using a screen-based press filter without further chemical addition. The use of fibers also significantly improved the removal of total organic carbon, nanoplastics, and microplastics. This three-in-one process could be used in situ for

decentralized water treatment in drinking water and wastewater applications in small cities, marginalized communities, and developing countries. The compact process, which also performs in situ sludge dewatering, would reduce the risks associated with mismanaged sludge to the environment and human health. This work supports research related to Sustainable Development Goals 6 on clean water and sanitation for all.

4.2 Main

Many populations around the globe still lack access to safe drinking water and proper infrastructure for wastewater treatment and management. (Bradford et al., 2016; Farenhorst et al., 2017) In industrialized countries, urban systems for water transit and sanitation are sewer-based and supported by advanced technologies involving chemistry, microbiology, physical and bioprocess engineering, as well as significant investments from high-income governments. The United Nations Sustainable Development Goals report that more than half of the global population cannot afford proper sanitation and drinking water systems. (Velkushanova et al., 2021) This global issue is exacerbated in low- and middle-income countries, where infrastructure dedicated to water management (treatment and transit) is often prohibitively expensive. (Michalak et al., 2023) Consequently, several developing countries and regions, as well as remote and marginalized communities would greatly benefit from a non-sewered sanitation system combined with decentralized, simple, robust, and inexpensive water treatment processes. Drinking water, wastewater, and sludge management applications must all be prioritized to ensure public health in these regions and to reduce endemic disease. (Adelodun et al., 2021) For many small and remote communities in Africa and North America, the high cost of centralized treatment infrastructure limits access to drinking water. (Morrison et al., 2015; White et al., 2012) In Canada, drinking water primarily comes from treated surface water (> 70 %), (Government of Canada, 2021) which generally requires extensive and costly treatment to sufficiently reduce the microbiological and toxicological risks. The issue of water access primarily affects remote and Indigenous communities. Conventional treatment for drinking water production via surface water involves coagulation-flocculation and chemicals such as metal salts, which require careful monitoring for proper operation. Studies on decentralized treatment emphasize the need for low-maintenance and low-cost technologies in

remote communities. (WHO & UNICEF, 2017) However, many existing systems, including low-energy filtration and decentralized coagulation, often require multiple steps and sequential tanks, posing challenges for scalability. (Tchobanoglous et al., 2003) In contrast, a three-in-one reactor integrating coagulation-flocculation, settling, and sludge dewatering in a single compact unit would minimize the operational complexity. This integrated system achieves high colloid removal and could provide a cost-effective, robust solution for safe water production in small and remote communities.

The performance of coagulation requires constant monitoring and qualified operators and is sensitive to pH, temperature, dose, and mixing time/intensity, among other factors. Consequently, metal-based coagulants cannot be easily implemented in decentralized systems for remote communities. Decentralized, simpler, smaller, more autonomous, and more robust processes could be cheaper than centralized water treatment plants in the long term and could be democratized for drinking water production (Lapointe, Rochman, et al., 2022) to be accepted and used by communities in need that are currently affected by water scarcity and untreated wastewater. However, practical considerations must be addressed for full-scale applications. In high-turbidity waters, the screen clogging and maintenance might increase the operation complexity. Periodic backwashing or cleaning would be necessary to maintain optimal performance.

This work proposes a new decentralized water treatment process that combines fibrous super-bridging agents, cationic flocculants, and screen-based press filters. The objective of this approach is to provide an efficient, compact, and affordable three-in-one solution for small, remote, or marginalized communities, as well as an alternative to conventional centralized plants that require three sequential tanks (coagulation-flocculation (1), settling (2), and sludge dewatering (3)) for the treatment of surface water. The same proposed three-in-one reactor was used for floc removal and sludge dewatering. The combination of super-bridging agents with cationic flocculants (Aguilar et al., 2005; Bolto & Gregory, 2007; Lapointe et al., 2023) can contribute to improving the removal of contaminants present in water through a simple separation process using coarse screens. The optimal flocculant and super-bridging agent

concentrations were first determined, as well as the optimal screen mesh size for floc separation and sludge dewatering. The turbidity was measured for each condition tested. The results showed that the addition of fibers drastically improved the floc removal. (Sieliechi et al., 2016) No metal-based coagulants such as alum were employed (Duan & Gregory, 2003); the flocculant was synergistically combined with fiber-based super-bridging agents to ensure an efficient floc formation and separation via settling and screening (up to 99 % turbidity removal). The impact of fibers was also evaluated on the removal of i) total organic carbon, ii) nanoplastics, and iii) microplastics (polyethylene microbeads and polyester microfibers) all of which showed considerable improvement compared to the conventional treatment without fibers. (Matilainen et al., 2010; Stackelberg et al., 2007) To evaluate the versatility and robustness of the fibrous treatment, two water samples from the Democratic Republic of the Congo (DRC) were also tested. It is crucial to note that these surface water samples exhibited significantly higher turbidity levels than those in Canada. Therefore, adapting the process to the African context is essential for effective treatment while maintaining a simplified and cost-effective approach.

4.3 Results and Discussion

4.3.1 Impact of super-bridging agents on conventional and emerging contaminants

Conventional treatment required large amounts of both metal-based coagulants (e.g., alum) and synthetic flocculants (e.g., PAM) (Figure 4.1a; a1), whereas, fiber-based treatment only required PAM (Figure 4.1b; b1). In the context of decentralized water treatment, it is preferable to avoid the use of metal-based coagulants, which require monitoring, pH control, and precise dosage adjustment to maintain process performance. Herein, the separation process was designed to be more robust and simpler by using PAM without metal-based coagulant. Compared to conventional treatment (PAM, no fibers; Figure 4.1a), the flocs formed by combining fibers and PAM (Figure 4.1b) were approximately 7–10 times larger, depending on the concentration of PAM and fibers. (Jarvis et al., 2005a; Liu et al., 2014) Figures 4.1c and 4.1d show the impact of fiber-based superbridging agents on the removal of total organic carbon, turbidity, nanoplastics, and microplastics (after floc separation with a 500 μm screen

mesh). When fibers were synergistically combined with a cationic flocculant (200 mg fibers/L and 1.2 mg c-PAM3/L), the removal of all contaminants was drastically improved. For turbidity, removal increased from 39% without fibers to 94 % with fibers, while nanoplastic removal increased from 20 % to 72 %. As described elsewhere, (Chae et al., 2008; Stimson et al., 2010) microplastic and nanoplastics could be used to model and predict virus removal during filtration. Consequently, based on the nanoplastic and microplastic removals shown in Fig 1d, the screen-based separation method could be used in combination with fibers for drinking water application to offer some protection against viruses and other pathogens. (Lau et al., 2004; Penrod et al., 1996; H. Zhang et al., 2017) For microplastics, the impact of fiber-based superbridging agents was also noticeable and statistically significant: removal increased from 49 % to 91 % for polyethylene and from 64 % to 95 % for polyester. Such improvements using fibers have also been observed elsewhere. (Abi Farraj et al., 2024) Cellulose fibers act as super-bridging agents due to their effective length, large surface area, high aspect ratio, and functional groups capable of interacting with both particles in suspension and flocculants (e.g., cationic PAM). When fibers are added, they serve as a structural framework within the solution, providing additional sites for particle attachment, which facilitates the formation of larger and more stable flocs. The cationic PAM is attached to the negatively charged sites on both the cellulose fibers and suspended particles, acting as a bridging structure. Such fiber-based bridging agent was also reported before for increasing the overall size and stability of the flocs. (Lapointe et al., 2022) Similar improvements in turbidity and microplastic removal were previously observed for settling treatment when fibers were used in the aggregation process. (Alioua & Lapointe, 2023b; Lapointe et al., 2022)

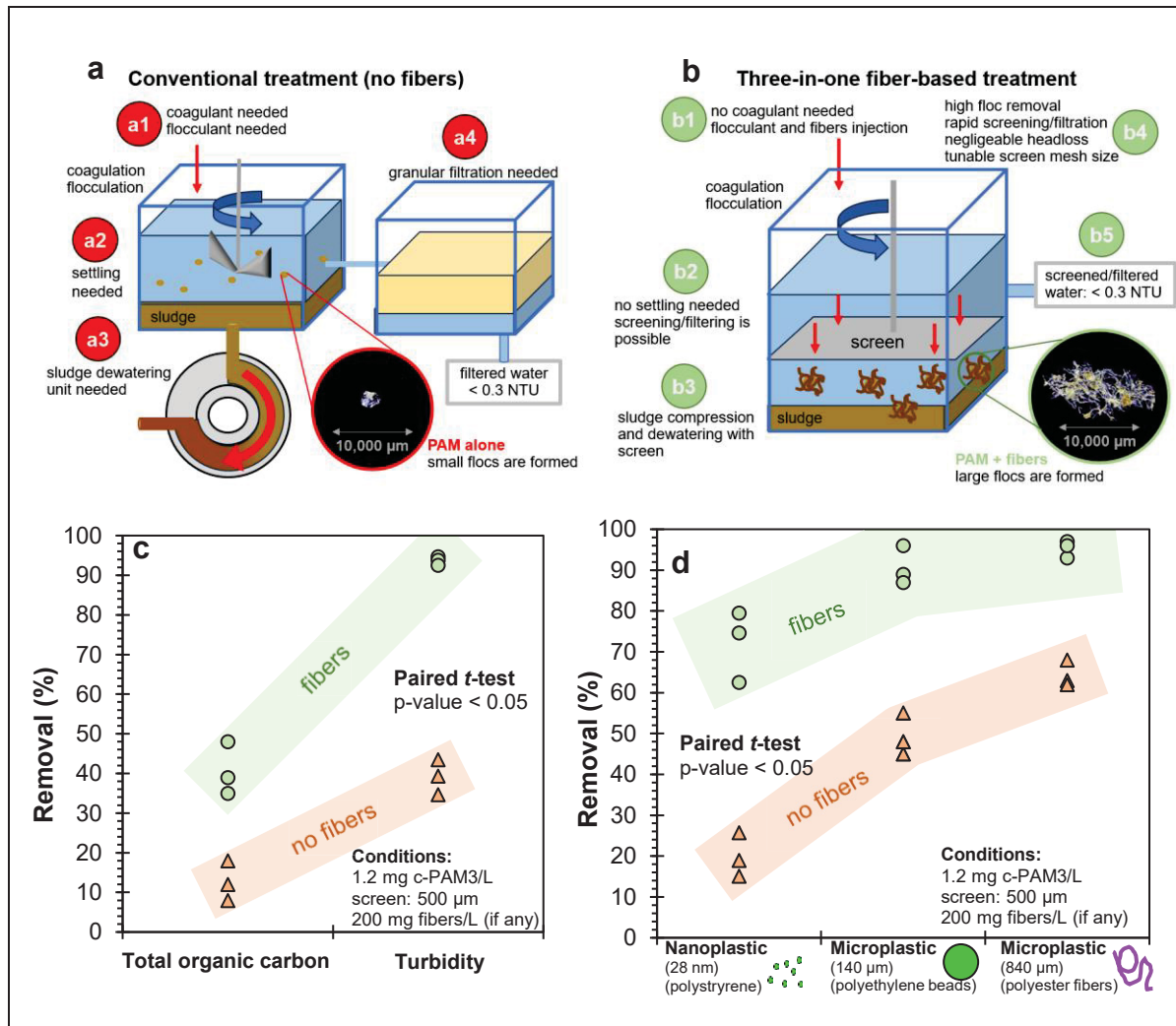


Figure 4.1 Contaminant removal improvement using fibers

(a) Conventional treatment combining polyacrylamide and screening: the flocs formed are too small to be screened and filter press can't be used to dewater the sludge. (b) Fiber-based treatment combining polyacrylamide, fibers, and screening (filter press): the flocs formed are very large and are screenable (filter presses; tested mesh sizes of 20 – 5000 μm), while filter press can be used to dewater the sludge. (c) Impact of fibers on the removal of total organic carbon and turbidity after screening. (d) Impact of fibers on the removal of nanoplastics, polyester fibers, and polyethylene beads after screening. Treatment conditions (c and d): 0.4 – 3.0 mg c-PAM 3/L, 200 mg fibers/L, 4 minutes of flocculation at $\text{pH } 7.0 \pm 0.3$, temperature of 21°C , flocs were removed during pressing with a 500 μm screen mesh (lab-scale press filter). Raw water turbidity: 6.0 ± 0.5 NTU. Colored areas (orange and green) are included as eye guides showing the minimal and maximal values (triplicate experiments). The difference between fibrous and conventional treatment (no fibers) was statistically significant ($p\text{-value} < 0.05$; c and d). Tested waters: St Lawrence River (c) and synthetic water (d)

Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.3.2 Robustness of super-bridging agents for different water types

The impact of PAM concentration was tested during floc separation via settling (3 min) versus pressing (500 μm screen mesh) (Figure 4.1b; b2). The screen-based pressing system replaced the settling unit and was also used as an alternative to membrane filters or granular filters for drinking water applications (objective < 0.3 NTU, as required by regulations in North America; Figure 4.1b; b5). The replacement of membrane or granular filters with a coarse screen mesh was possible due to the formation of very large fiber-based flocs. The drinking water minimal standard (< 0.5 NTU) was not achieved when screens were used in combination with flocculant alone (conventional treatment; no fibers). When the PAM concentration was insufficient to initiate aggregation (< 0.2 mg PAM/L), the impact of fibers was not noticeable, and both treatments provided low turbidity removal ($< 8\%$). However, at a concentration of 0.4 mg PAM/L, the presence of fibers significantly improved floc formation and turbidity removal up to 85%, compared to only 40% without fibers. This improvement with fibers was observed for both floc separation methods: settling (Figure 4.2a) and pressing (Figure 4.2b). When the concentration of PAM was increased to 0.8 mg/L, both treatments resulted in slightly lower turbidity removal of 78% and 33%, with and without fibers, respectively. This decrease was attributable to temporary charge reversal caused by the cationic PAM. (Feng et al., 2018; Gregory & Barany, 2011; Palomino et al., 2011) At concentrations of 1.2, 2.0, and 3.0 mg PAM/L used with fibers, the residual turbidity after settling was 0.39, 0.46, and 0.39 NTU, respectively (93–94% removal). For the same respective PAM concentrations without fibers, turbidity removal drastically dropped to 41–45%. Based on a paired t-test, there was no statistically significant difference between the settled and pressed turbidity values. For suboptimal PAM concentrations (< 0.4 mg/L), contrary to settling, the pressing system captured more (smaller) flocs and partially compensated for the poor aggregation due to insufficient PAM concentration in the system. The concentration of 1.2 mg PAM/L was chosen as the optimal value under which all contaminant removal curves reached a plateau.

The same steps were conducted on Democratic Republic of the Congo B (DRC B) water (Africa) to investigate the impact of PAM concentration during floc separation after settling (3

min) and pressing (200 μm screen mesh). At a lower PAM concentration (0.2 mg/L), the presence of fibers showed no significant impact, reducing turbidity by only 30% after 3 min of settling, indicating poor floc formation. Pressing only achieved a 24% reduction, suggesting that small flocs passed through the mesh. A noticeable impact of fibers was observed at 0.8 mg PAM/L or higher (Figures 4.2 c and d). At 2 and 3 mg PAM/L, turbidity with fibers was 34 and 23 NTU after 3 min of settling, respectively, and 38 and 23 NTU after pressing. Differences between settling and screening were not statistically significant when fibers were used, as large flocs were effectively removed via both separation methods. Considerably higher turbidities were measured without fibers: 62 and 33 NTU after 3 min of settling, and 55 and 37 NTU after pressing, with 2 and 3 mg PAM/L, respectively. To reach the lowest residual turbidity, 3 mg PAM/L was selected for further investigations on DRC B water.

The difference in treatment effectiveness between DRC-B and synthetic water could be explained by the respective raw water turbidity (6 NTU vs. 589 NTU). With higher turbidity, aggregation systems usually required more coagulant and flocculant – hence forming large floc without the need of fibers or other promoting agents such as ballast media. (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022)

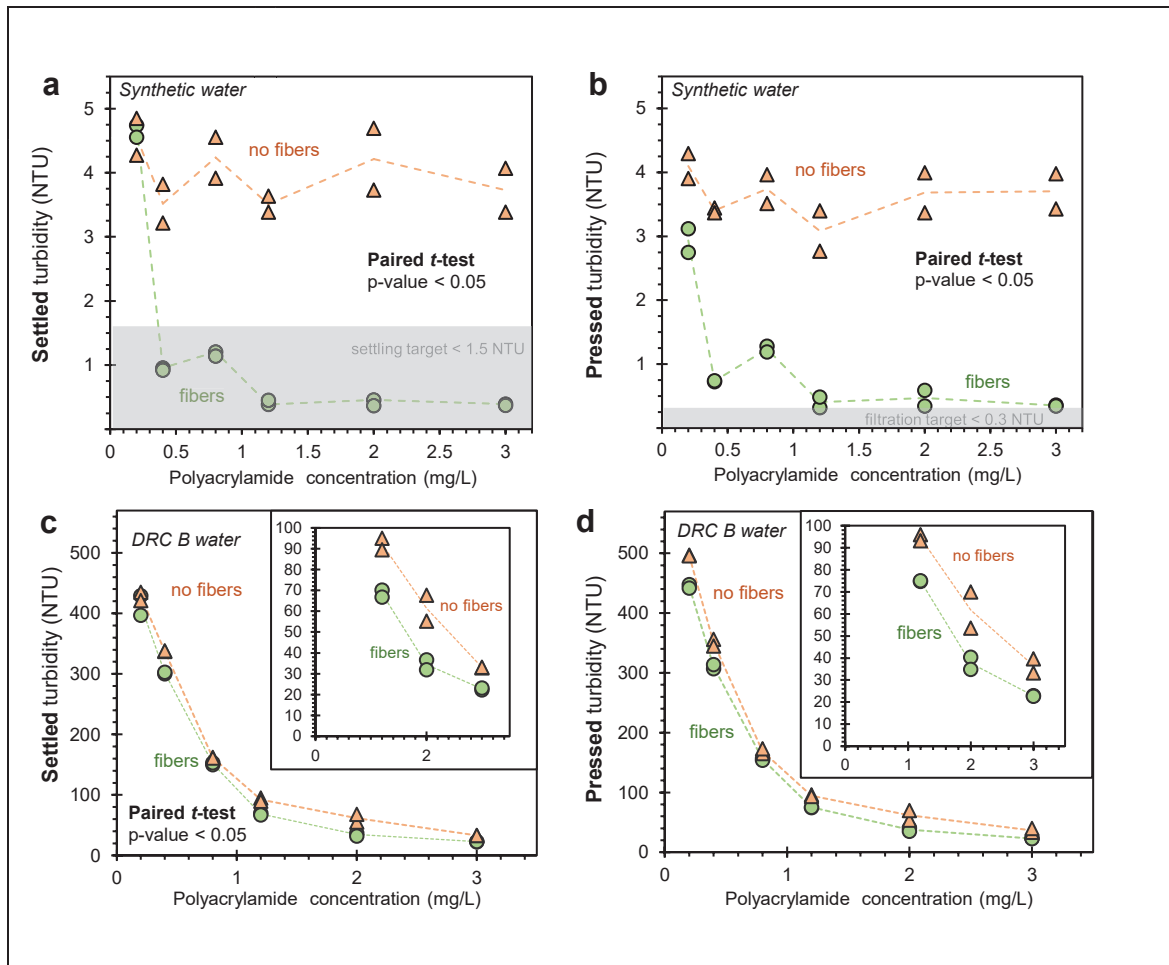


Figure 4.2 Performance of fibers on different water types

(a, c) Impact of fibers on turbidity removal after 3 min of settling (synthetic water (a); DRC B water (c); cf Table 2). (b, d) Impact of fibers on turbidity removal after pressing (synthetic water (b); DRC B water (d)). A 500 μm and a 200 μm screen mesh size were used for synthetic water and DRC B water, respectively. Aggregation conditions: 0.4–3.0 mg c-PAM 3/L, 200 mg fibers/L, 4 minutes of flocculation at $\text{pH } 7.0 \pm 0.3$, temperature of 21°C (a–d). Synthetic water turbidity: 6 NTU (a,b). DRC B water turbidity: 589 NTU (c,d). Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments.

Grey areas show the industry standard after treatment: < 1.5 NTU after settling and < 0.3 NTU after pressing (screened-based press filter used as an alternative to membrane or granular filtration). The difference between fibrous and conventional treatment (no fibers) was statistically significant ($p\text{-value} < 0.05$; a–d)

Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.3.3 Reducing the microbiological risk for decentralized applications

The optimal PAM concentration of 1.2 mg/L (synthetic water) was used to determine the optimal fiber concentration. The lowest turbidity (0.39 NTU) after settling and pressing was observed at 200 mg of fibers/L (Figures 4.3a and b). This value complies with North American standards for drinking water and the design guide for drinking water production facilities, which requires post-filtration turbidity to be less than 0.5 NTU. This suggests that further improvements to the system or the use of smaller screen mesh sizes (e.g., 50 or 100 μm) could potentially achieve higher drinking water quality (e.g., < 0.3 NTU for granular filtration, Surface Water Treatment Rules (SWTRs), USEPA) to reduce the microbiological risk for decentralized applications in marginalized communities and developing countries.

The mesh sizes were modified using the optimal concentrations of PAM and fibers (1.2 mg/L of PAM; 200 mg/L of fibers). The mesh size had minimal influence on turbidity (p-value: 0.37) (Figure 4.3c). This could be explained by the large size of the flocs formed, allowing separation even with larger screen mesh sizes (0.45 NTU with a 2000 μm screen). For these tested conditions, screen mesh sizes of 50 and 20 μm reduced the turbidity to 0.32 NTU and 0.20 NTU respectively (Figure 4.3d). It is hypothesized that smaller meshes were required to remove colloids that were not aggregated into the large fiber-based flocs. The 50 μm mesh in this study acts as a polishing filter to achieve turbidity levels below 0.3 NTU by capturing residual colloids. For such application with finer mesh size, as the turbidity is already low (0.39 NTU), minimal clogging is expected. For scalability, fine-mesh filtration in larger systems may face challenges related to maintenance and operational costs. However, in low-turbidity contexts, a low particle flux suggests less maintenance. Incorporating automated backwashing or using durable mesh materials could further support scalability, durability and performance. Future studies are needed to assess the mesh durability under continuous flow conditions. Optimization of mixing conditions (time and intensity) could also be performed to minimize shear stress on flocs and prevent floc breakage. According to the USEPA, the RQEP (Regulation on the Quality of Drinking Water in Canada), and the drinking water design guide (Ministry of the Environment, Quebec, Canada), after filtration, each filter should have a

turbidity of less than 0.5 NTU, and water entering the distribution network should have a value below 1 NTU. (*Recommandations Pour La Qualité de l'eau Potable Au Canada*, n.d.) Although the results are compliant, they do not qualify for all the removal credits for Giardia, Cryptosporidium, and viruses. (Betancourt & Rose, 2004) For granular filtration, it is advised to achieve a turbidity lower than 0.3 NTU for better removal credits from a safety standpoint, and ideally to achieve a turbidity below 0.15 NTU to obtain all removal credits. (*Guide de conception des installations de production d'eau potable*, n.d.) For drinking water applications, the fiber and screen-based separation process presented in this study could be combined with disinfection to gain additional removal credits. Improving the PAM and fiber synergy and selecting the proper screen mesh size to achieve turbidity below 0.3 NTU would also be necessary to reduce the amount of chlorine needed for providing safer drinking water and reducing disinfection by-product formation (Kim et al., 2003), (Grünwald et al., 2002) in marginalized communities and developing countries.

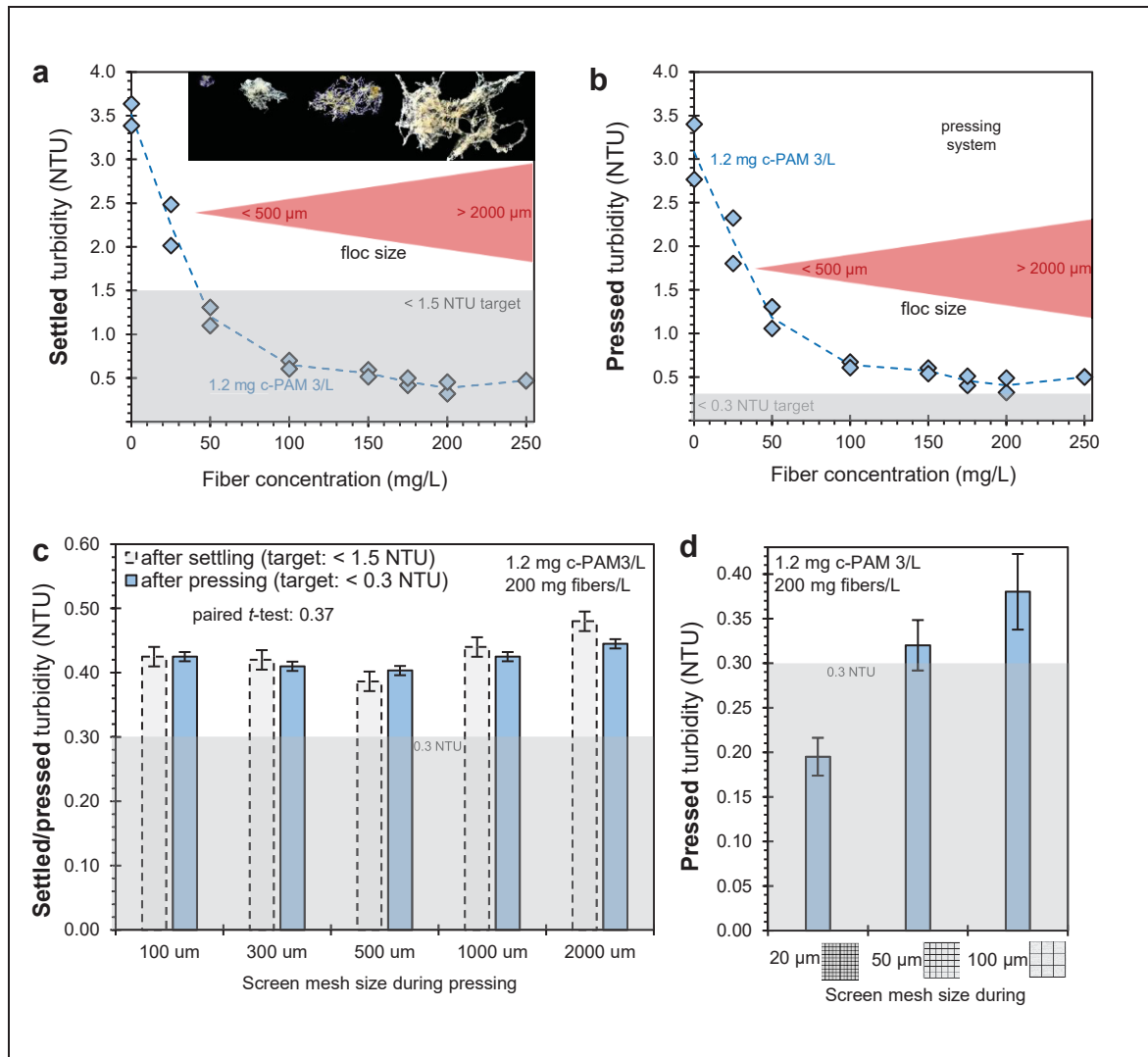


Figure 4.3 Process optimization to reduce the residual turbidity

(a, b) Impact of fibers concentration on settled turbidity (a, 3 min of settling) and pressed turbidity (b, 500 μm screen mesh). (c) Impact of the screen mesh size (100, 300, 500, 1000, and 2000 μm) on pressed turbidity. Settled turbidities (no screen was used, grey bars) are shown as a reference. (d) Impact of smaller screen mesh size (20, 50, and 100 μm) on pressed turbidity. Aggregation conditions (a–d): 1.2 mg c-PAM3/L, 4 minutes of mixing, pH 7 ± 0.5 , temperature of 21°C . Turbidity of synthetic water (a–d): 6.0 ± 0.5 NTU. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments (a,b). Grey areas show the industry standard after treatment: < 1.5 NTU after settling and < 0.3 NTU after press-filtering. Error bars represent the standard deviation (c,d)

Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.3.4 Performances of fibers with different physicochemical treatments

Different PAMs with varying charge densities and molecular weights were tested to determine the optimal flocculant properties for forming very large fiber-based flocs. After settling, the turbidity was 0.7, 0.4, 0.7, and 9.9 NTU for c-PAM 4, c-PAM 3, c-PAM 2, and c-PAM 1, respectively (Figure 4.4a). No significant difference ($p\text{-value} > 0.05$, paired t-test) was observed between the settled (3 min) and pressed turbidities (mesh size of 200 μm), except for c-PAM 1, which showed lower final turbidity of 9.8 NTU and 7.3 NTU after settling and filter-pressing, respectively (Figure 4.4b). In contrast to c-PAM 2, c-PAM 3, and c-PAM 4, which have higher charge densities (35% or 55%), the charge density of c-PAM 1 (only 7%) was not sufficient to destabilize and aggregate colloids via electrostatic affinities. Compared to c-PAM 3 without fibers, c-PAM 4 typically provides better floc formation and removal due to its higher molecular weight (cf. Table 1). However, when fibers are used as super-bridging agents—drastically promoting floc formation and size—the higher molecular weight provided by c-PAM 4 did not result in better turbidity removal compared to c-PAM 3. Based on the settled and pressed turbidities in Figure 4.4b, a minimum charge density of 35% (c-PAM 2) was required to complete colloid destabilization and attachment onto the fiber structure.

Although fibers can be used in a very simple system combining only one flocculant with screen pressing (without settling and filtration), they can also be used in more advanced physicochemical treatments combining metal salts and PAM (both anionic and cationic) (Figures 4.3c and 4.3d). The impact of alum concentration (0–100 mg dry alum/L) is shown in Figure 4.4c, while the impact of more advanced physicochemical treatments on low, moderate, and high turbidity water is shown in Figure 4.4d. Such advanced physicochemical treatment was required to improve aggregation and meet turbidity objectives after settling (<1.5 NTU) for African waters with very high turbidity (589 NTU). Settled turbidities of 3.75 NTU (99.4% removal, raw water: 589 NTU) and 1.63 NTU (98.0% removal, raw water: 78 NTU) were measured for DRC B and DRC A waters, respectively. The enhanced turbidity reduction observed with alum, c-PAM3, and fibers is due to their complementary roles in coagulation-flocculation. Alum neutralizes the negative charges on colloidal particles, allows precipitation

of soluble compounds, and initiating aggregation, while c-PAM3 bridges these aggregates into larger flocs. Fibers further stabilize the flocs by providing additional surface area and structural support, forming a dense, resilient network with improved settling properties. This synergistic effect is evident when comparing results: using alum and c-PAM3 alone (50 mg/L alum and 3 mg/L c-PAM3) resulted in an average turbidity of 12.8 NTU. With the addition of fibers and an increased alum concentration (100 mg/L), turbidity further decreased to 3.75 NTU. These findings highlight the critical role of fibers as bridging agents, significantly enhancing floc formation, size and stability. As shown in Figure 4.4d, further optimization efforts are needed to reach the target of 1.5 NTU for DRC B water; for example, pH adjustment, prehydrolyzed coagulants, optimal agitation intensity and/or aggregation time, optimal settling time, and smaller screen mesh sizes could be tested to achieve better water quality (Lapointe et al., 2021; Tang et al., 2015; Thomas et al., 1999). Nonetheless, the fiber-based treatment considerably improved turbidity removal compared to conventional treatment, which resulted in a settled turbidity of 33 NTU.

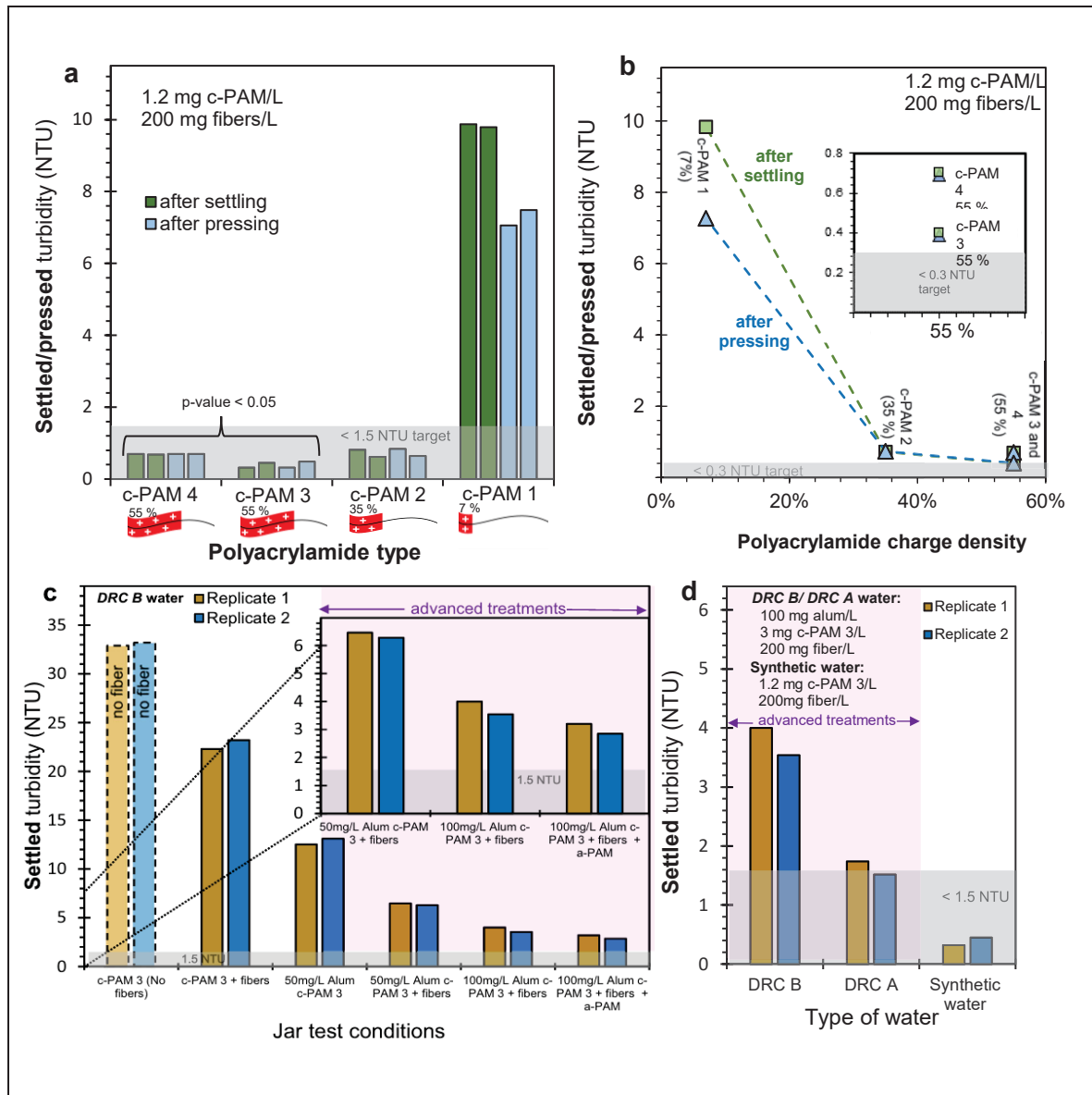


Figure 4.4 Fibers used with physicochemical treatments

(a), Impact of polyacrylamide type (cf Table 1) on settled and pressed turbidity. Paired t-test between c-PAM 3 and c-PAM 4: p-value < 0.05. (b) Impact of polyacrylamide charge density on settled and pressed turbidity. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments (b). (c,d) Different physicochemical treatments combining alum, c-PAM 3, and a high molecular weight anionic flocculant (a-PAM) for highly and moderately turbid water. Synthetic water: 6 NTU, at pH 7.0 (a,b). DRC B water: 589, at pH 6.1 (c,d). DRC A water: 78 NTU, at pH 6.7 (d). Aggregation conditions: 4 minutes of mixing at 21 °C. Floc separation: 3 minutes of settling or press filtering with a 200 μ m screen mesh (a–d). Grey areas show the industry standard after treatment: < 1.5 NTU after settling and < 0.3 NTU after press-filtering (a–d)

Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.3.5 Reducing polyacrylamide concentrations for drinking water application

Synthetic polymers, such as acrylamide-based polymers, are essential in clarification and remain necessary for the proposed fibrous treatment herein. However, these synthetic polymers have faced criticism for their i) potential toxicity (Xiong et al., 2018) (group 2A), ii) clogging effect in membrane/screen, and iii) cost. (Lapointe & Barbeau, 2017, 2019; Rice, 2005). For implementation in marginalized communities and developing countries, the process needs to be operated at low cost (low operational expenditures), and systemic/heavy process maintenance must be avoided. Consequently, the PAM concentration was reduced, and the inevitable formation of smaller flocs was compensated for by using a smaller screen mesh (Figure 4.5).

The 500 μm mesh size was effective for a PAM concentration of 0.2 mg/L. Additional tests were conducted for different mesh sizes at both 0.2 mg/L and 0.35 mg/L PAM concentrations. At this concentration, the floc's size was visibly affected. Turbidity values measured after pressing decreased as the mesh size became finer (Figures 4.5a and b). When the PAM concentration was low, the bridging effect between fibers was diminished, leading to smaller and more fragile flocs, a phenomenon also reported in a previous study. (Kurusu et al., 2022b; Lapointe et al., 2022) However, at 1.2 mg PAM/L, turbidity removal was not noticeably impacted by the screen mesh size, as the flocs formed were very large and were intercepted by all the tested screen mesh sizes (100 – 2000 μm ; Figure 4.5c). The impact of the mesh size and PAM concentration on the turbidity is displayed in Figure 4.4d. As the measured turbidities after pressing were still very low, the process could also be used for sludge dewatering. As shown in Figure 4.5d, the pressed turbidities were < 0.5 NTU, even though the sludge was manually pressed at the bottom of the 250 mL reactor (200 mg fibers/L, 500 μm screen mesh, cf Figure 4.2b). The volume of sludge collected after pressing was < 5 mL for all the jar tests performed. Consequently, this three-in-one reactor is a promising compact technology for contaminant aggregation, floc separation, and sludge dewatering (as shown in Figure 4.1; b3).

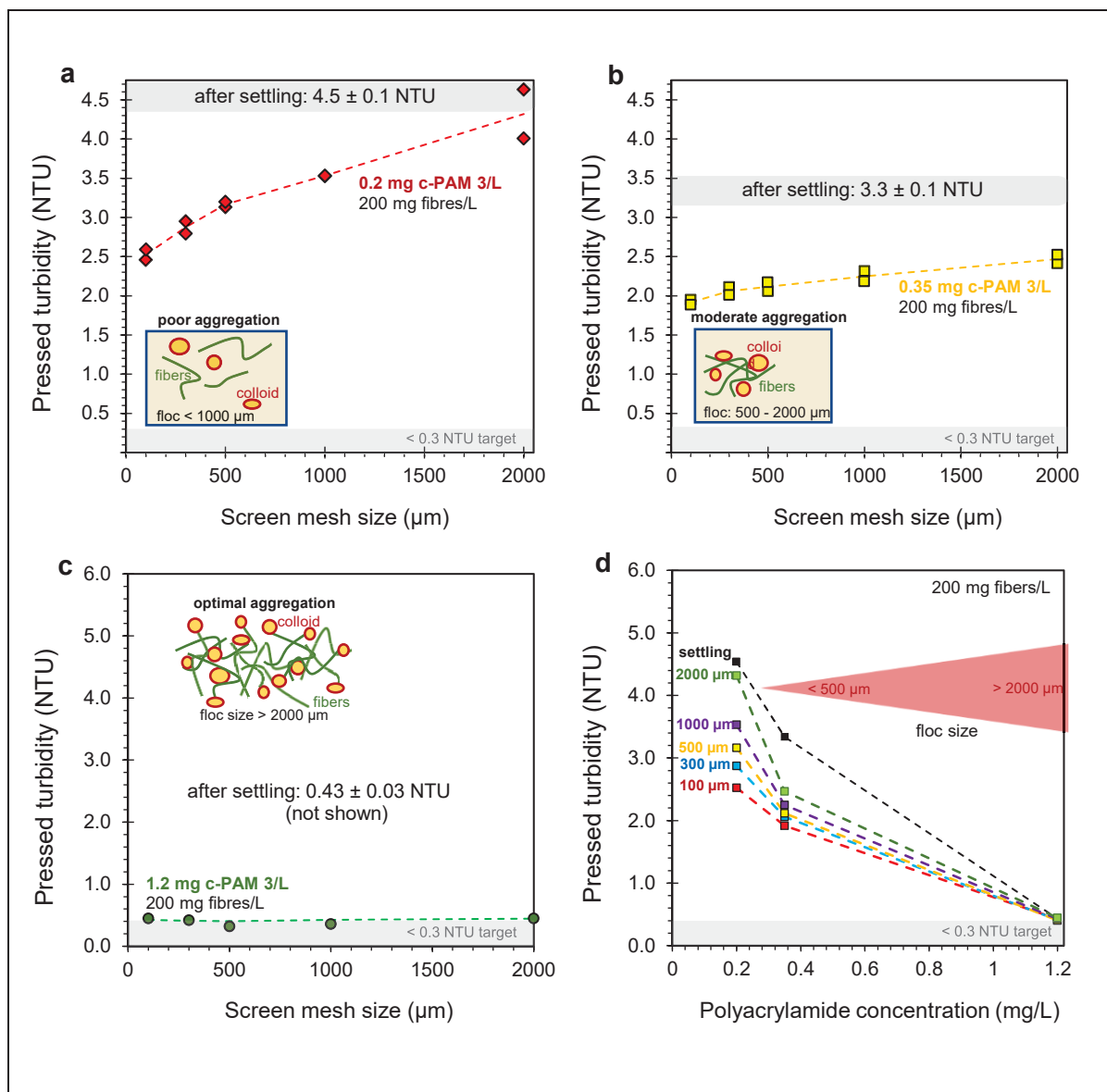


Figure 4.5 Limiting the use of synthetic flocculant for flocs separation via screening (a,b,c) Pressed turbidity with different screen mesh sizes with 0.2 mg c-PAM/L (a) 0.35 mg c-PAM/L (b) and 1.2 mg c-PAM/L (c). (d) Pressed turbidity obtained with different c-PAM concentrations and screen mesh sizes. Settled turbidities in d are shown as a reference (no pressing was performed). Conditions for (a–d): 4 minutes of mixing, pH 7 ± 0.5 , temperature of 21 °C, 3 minutes of settling (if any), tested screen mesh size: 100, 300, 500, 1000, and 2000 μm. Type of PAM: c-PAM 3. Fiber concentration: 200 mg/L. Turbidity of raw water: 6 ± 0.5 NTU. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments

Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.3.6 Sludge dewatering and management, in situ

To evaluate the solid content in African (DRC B) water samples, two concentrations of c-PAM 3 (2 mg/L and 3 mg/L) were assessed under two conditions (with and without fiber addition) and using two dewatering methods (with and without pressing). The solid content was measured by drying the recovered solids at 103°C for 1 hour to determine the dryness. As illustrated in Figure 4.6, the flocs obtained without fibers could not be effectively recovered due to their small size. In contrast, the addition of fibers resulted in more visible floc formation, although the percentage of solids remained relatively low. This can be attributed to the inherent characteristics of the sludge, which may contain extracellular polymeric substances with hydrophilic functional groups. These groups play a crucial role in making i) solid-liquid separation more challenging, ii) the thermal drying process less efficient, iii) the entire process more energy-consuming. (Hou et al., 2024) Comparing the two methods (with and without pressing), the differences are noticeable, with pressing yielding an 11-fold higher solid content in sludge: from 0.3% for the conventional treatment to 3.5% for the fibrous treatment (Figure 4.6a). Increasing the solid content in sludge could considerably reduce the overall costs associated with sludge treatment, such as reducing the amount of sludge transported and the energy input during thermal drying, among others. (Rao et al., 2024) Such applications could benefit both centralized and decentralized wastewater systems by offering significant advantages in terms of public health, environmental sustainability, and operational efficiency. (Mwamlima et al., 2024)

Scaling up this approach would require several adaptations to accommodate operational demands in larger wastewater treatment plants. First, consistent fiber distribution throughout the sludge is crucial to maintaining uniform floc formation and maximizing dewatering efficiency. Transitioning from lab-scale systems to larger pressing systems, such as rotary press or belt press filters, would allow automated cycles that usually improve efficiency and maintain consistency in solid content across batches. (Hou et al., 2024) The increased solid content indicates a reduction in sludge volume, translating to lower transportation and thermal drying costs. In practical settings, this could result in significant energy savings and reduced

operational costs. (Rao et al., 2024) In full-scale systems, regular maintenance and adjustments to fiber dosage and pressing parameters may be necessary to account for varying sludge characteristics. Monitoring systems could enhance scalability by optimizing fiber dispersion and sludge consistency in real time. These adaptations would be essential to replicate lab-scale efficiency at larger scales – and to reduce cost associated to sludge management.

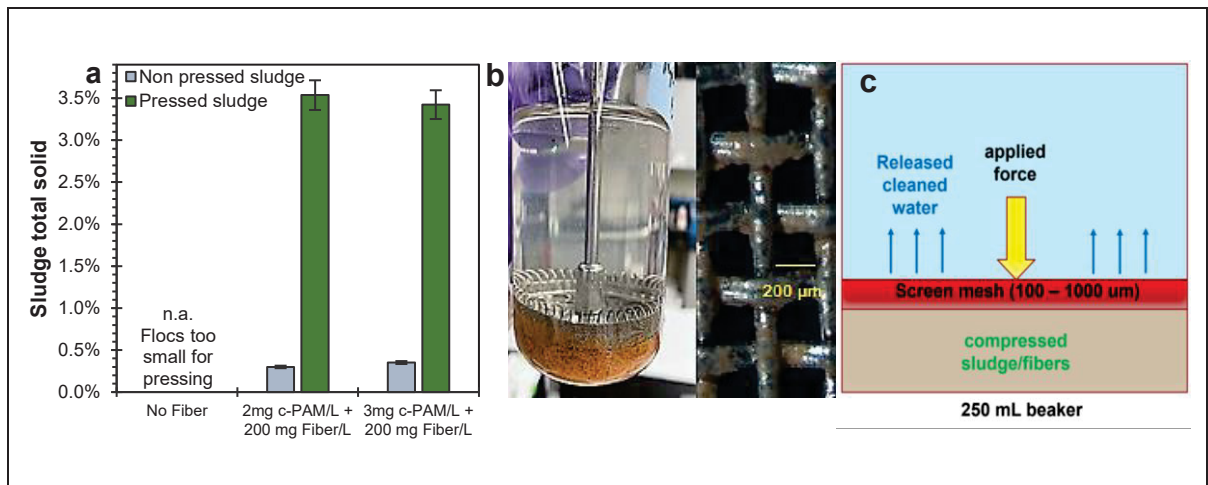


Figure 4.6 Improving sludge dewatering with fibrous agents

(a) Impact of fibers and treatment conditions on the sludge solid content (%) without pressing (grey) vs with pressing (green). (b) Pressed sludge after the fibrous aggregation treatment (left) and microscope image of the 200 µm screen mesh (right). (c) Schematic diagram showing the compression of the fibers-based. DRC B raw water conditions: 589 NTU, pH 7.0, temperature of 21°C. Error bars correspond to the standard deviation calculated from triplicate experiments (a)
Tirée de Mebarki et al. (2025)

4.4 Conclusion

A compact unit using flocculants and fibrous super-bridging agents could serve as an alternative to complex and expensive conventional physicochemical treatments, which involve a coagulant, a flocculant, a settling tank, and granular or membrane filtration. This compact unit is suitable for producing safer drinking water, wastewater applications, and sludge dewatering. When combined with super-bridging agents, coarse screen-based filters offer a cost-effective separation solution compared to granular or membrane filters, which require qualified operators and more maintenance. Various lab-scale experiments were conducted to

determine the optimal PAM concentrations, fiber concentrations, and screen mesh sizes for floc separation and sludge dewatering. The addition of fibers significantly improved the removal of regulated and emerging contaminants, such as nanoplastics and microplastics. The optimized treatment achieved treated water with turbidity levels below 0.2 NTU, thereby complying with drinking water regulations in North America. The treated African waters also demonstrated significant reductions in turbidity, achieving 3.77 NTU with a 99.4% reduction for DRC B raw water, and 1.6 NTU with a 98.0% reduction for DRC A raw water. Further experiments are needed to optimize floc removal, reduce residual turbidity, and minimize microbiological risks for remote, marginalized, and indigenous communities, as well as for developing countries. This three-in-one process could also reduce i) the environmental and health risks associated with mismanaged sludge—potentially at low cost—and ii) the energy required for sludge transport and subsequent processing.

4.5 Materials and methods

4.5.1 Chemicals and materials

The jar tests were conducted to simulate a low-cost compact treatment process (e.g., without granular filtration) to assist isolated populations or those in developing countries that lack access to clean water. According to Health Canada, the USEPA, and the Ministry of the Environment (Environmental Quality Act; EQA), (*Recommandations Pour La Qualité de l'eau Potable Au Canada*, n.d.) the turbidity after filtration in conventional treatment systems must be below 0.3 NTU. The tested cationic polyacrylamides were supplied by Kemira Water Solution Canada Inc. and are listed in Table 1. The tested anionic polyacrylamide (a-PAM) was supplied by Hydrex. All solutions and suspensions were prepared using RO water. As described elsewhere, (Kurusu et al., 2022; Lapointe et al., 2022) the fiber suspensions were prepared by blending 2.5 g of dried fibers in 500 mL of RO water (Ninja blender, for 7 s).

Tableau 4.1 Properties of polyacrylamides
Tiré de Mebarki et al. (2025)

Tested polyacrylamides	Charge	Charge Density (%)	Molecular weight
c-PAM 1	cationic	~ 7 % 	High ($> 10^6$ g/mol)
c-PAM 2	cationic	~ 35 % 	High ($> 10^6$ g/mol)
c-PAM 3	cationic	~ 55 % 	High ($> 10^6$ g/mol)
c-PAM 4	cationic	~ 55 % 	Very high ($> 10^7$ g/mol)
a-PAM	anionic	< 10 % 	Very high ($> 10^7$ g/mol)

4.5.2 Waters characteristics

In this study, several waters were used during jar tests, including two surface waters from Kinshasa, Africa (water characteristics are listed in Table 2). Another surface water sample was taken from the St. Lawrence River in Montréal, Canada (3.2 ± 0.3 mg C/L; 4.5 ± 0.4 NTU; pH 7.8 ± 0.2). The water samples from the DRC and St. Lawrence River were selected to represent high-turbidity, particle-rich conditions and lower-turbidity surface water, respectively, showcasing the reactor's adaptability to diverse contexts. The synthetic water (Alioua & Lapointe, 2023; Raissouni et al., 2024) was composed of 250 mL of tap water stabilized at room temperature, 250 μ L of a kaolin suspension (10 g/L), and 100 μ L of a starch solution (500 mg/L). Starch was included to simulate organic matter commonly found in natural surface waters, creating a more representative model with both organic and inorganic particles for more realistic flocculation experiments. The kaolin suspension was made from fine white clay powder (Cattier), and the starch solution was made from cornstarch powder (Selection). To prepare the starch solution, 250 mg of corn starch was dissolved in 500 mL of water. For the kaolin suspension, 5 g of white clay powder was mixed with 500 mL of water. The turbidity and pH of the synthetic water were approximately 6 ± 0.5 NTU and 7 ± 0.5 , respectively. The jar tests were performed using a 250 mL volume of samples in a glass beaker agitated at 200 rpm with a cross-shaped magnetic stir bar (3.5 cm x 3.5 cm). The raw waters were all equilibrated at ~ 21 °C before each experiment.

Tableau 4.2 Location and characteristics of the 4 tested waters
Tiré de Mebarki et al. (2025)

Type and source	Location	Turbidity (NTU)	pH
Surface water, St. Lawrence River	Montréal, Canada	4.5 ± 0.4	7.8 ± 0.2
Synthetic water	n.a.	6.0 ± 0.5	7.0 ± 0.5
Surface water, DRC A	Democratic Republic of the Congo	78.1 ± 0.5	6.7 ± 0.2
Surface water, DRC B	Democratic Republic of the Congo	589.0 ± 0.5	6.1 ± 0.2

4.5.3 Jar tests

Various concentrations of fibers, flocculant (PAM, 500 mg/L solution), and mesh sizes were tested during the jar tests. Four types of cationic PAM were used: c-PAM 1, c-PAM 2, c-PAM 3, and c-PAM 4 (see Table 1). The PAM solutions were prepared by dissolving 50 mg of dried PAM in 100 mL of water and mixing with a magnetic stirrer for 15 minutes. The turbidity objectives after settling and pressing were set to be below 1.5 NTU and 0.3 NTU, respectively (measurement range: 0.1 – 2000 NTU; turbidimeter Hach TL2350 model). Jar tests were performed using a Corning brand magnetic stirring plate. These objectives were used to determine the optimal doses of PAM and fiber, as well as other operational conditions under investigation (mixing time, mesh size, etc.).

The experiment began with the introduction of fibers into the synthetic water (fiber suspension dosed at 5 g/L). The cellulose fibers (eucalyptus hardwood, Sigma, NISTRM8496) were prepared by dispersing 2.5 g of cellulose in 500 mL of ultrapure water, which was blended for 10 seconds to achieve a homogeneous suspension. This blending process ensures the fibers dispersion, hence maximizing surface area for an effective interaction with colloids and PAM. Fibers (initial fibers suspension 5 g/L) were added at a concentration of 200 mg fibers/L to the beaker 10 seconds before the first half of the PAM dose was added into the system. The second half of the PAM was added after two minutes of mixing to reduce the PAM chain desorption and reconfiguration leading to floc fragmentation. (Lapointe & Barbeau, 2017, 2018) Subsequently, two minutes of mixing were followed by three minutes of settling. At this stage, an initial turbidity measurement was taken. A second turbidity measurement was performed

after separating the flocs using a filter press, which kept the flocs at the bottom of the beaker (mesh size: approximately 200 μm). Different concentrations of PAM were tested: 0.2, 0.4, 0.8, 1.2, 2.0, and 3.0 mg/L. These concentrations were tested in the presence of 200 mg of fibers/L as well as in the absence of fibers (i.e., conventional treatment). Once the optimal PAM concentration was determined, additional fiber concentrations were tested to optimize the aggregation system and ultimately reduce the operational costs for full-scale applications: 0, 25, 50, 100, 150, 175, 200, and 250 mg of fibers/L.

The impact of mesh size was also tested once the optimal fiber dose was found. Pore sizes of 100, 300, 500, 1000, and 2000 μm were used. These different mesh sizes were also tested under suboptimal mixing conditions, with PAM doses of 0.2 mg PAM/L and 0.35 mg PAM/L. The quality of the treated water remained the same, except for meshes modified to compensate for aggregation affected by lower PAM doses. The measurements were conducted using a turbidimeter. An analysis vial was measured three times to minimize variability and device imprecision. For each tested treatment condition, replicates were performed in all jar tests. For the highly turbid DRC A (78.1 ± 0.5 NTU) and DRC B surface water (589.0 ± 0.5 NTU), to achieve adequate residual turbidity after treatment, 50 – 100 mg alum/L had to be added, along with the optimal dose of c-PAM 3 (3 mg/L) and 200 mg/L of fibers. Alum was added at the onset of the jar test, with agitation maintained for 2 minutes, followed by the addition of c-PAM 3 and fibers according to the previously mentioned protocol.

4.5.4 Total organic carbon, nanoplastics, and microplastics measurement

Fluorescent latex polystyrene nanoplastics were used in this study (28 nm, carboxylate modified, FluoSpheres, ex/em: 365/415 nm). Jar test experiments were spiked with 0.8 mg/L of nanoplastics. Polyester microfibers (PEST) were produced by blending a textile (SanMar Canada, ATC, ATC3600Y). (Abi Farraj et al., 2024; Lapointe et al., 2022) The textile was blended for 5 minutes at room temperature using a Ninja blender (~ 1200 rpm). (Lapointe et al., 2020) Polyethylene microspheres were obtained from Cospheric (140 μm , ex/em: 515/414 nm). Polyethylene microspheres and polyester microfibers were spiked at a concentration of

1000 microplastics/L. The properties of the tested plastics are listed in Table 3. Turbidity measurements were performed using Standard Method 2130B (Hach 2100N turbidimeter), and total organic carbon (TOC) measurements were performed using Standard Method 5310C (Sievers 5310c total organic carbon analyzer, GE Water).

Tableau 4.3 Properties of nanoplastics and microplastics
Tiré de Mebarki et al. (2025)

Type	Polymer	Shape	Mean size	Size range
Microplastic	Polyester	Fiber	840 μm (length)	460 – 1650 μm (Lapointe et al., 2022)
Microplastic	Polyethylene	Bead	140 μm (diameter)	125 – 150 μm
Nanoplastic	Polystyrene	Bead	28 nm (diameter)	20 – 35 nm

4.6 Authorship contribution statement

Manel Mebarki: Conceptualization, Validation, Formal analysis, Investigation, Data Curation, Visualization, Writing - Original Draft.

Gabriella Joge Ngale: Validation, Formal analysis, Investigation, Data Curation, Writing - Original Draft.

Mathieu Lapointe: Conceptualization, Methodology, Validation, Formal analysis, Investigation, Resources, Data Curation, Writing, Review & Editing, Visualization, Supervision, Project administration, Funding acquisition.

4.7 Declaration of Competing Interest

M.L. has applied for a patent on the use of fibre-based materials for water treatment. The remaining authors declare no competing interests.

4.8 Acknowledgments

The authors acknowledge support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) Discovery Grants program.

CHAPITRE 5

IMPACT OF IRON-(HYDR)OXIDE FUNCTIONALIZED CELLULOSE FIBERS ON PETROCHEMICAL WASTEWATER TREATMENT

Manel Mebarki¹, and Mathieu Lapointe^{1*}

¹ École de technologie supérieure, 1100 Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, H3C 1K3, Canada

* Corresponding author

Article soumis pour publication, Juillet 2025

5.1 Abstract

Petrochemical wastewater is characterized by high levels of suspended solids, dissolved organic matter, and toxic compounds such as naphthenic acids (NAs), which pose significant challenges for conventional treatment technologies. In this study, a flocculation system was developed by combining polyacrylamide (PAM)-based flocculants with iron-grafted cellulose fibers. Jar tests were systematically conducted to evaluate the performance of different PAM types (three cationic and one anionic) at various concentrations (0.5–5 mg/L), both with and without the addition of non-grafted and iron-grafted fibers (50–300 mg/L). Flocculation performance was assessed based on turbidity reduction, total organic carbon (TOC) removal, and NA removal measured by fluorescence. The results demonstrate that iron-grafted fibers significantly enhanced treatment by promoting floc bridging and adsorption. Optimal removal was achieved using 1–2 mg/L of cationic PAM3 combined with 200–250 mg/L of iron-grafted fibers, resulting in up to 66 % TOC removal and over 60 % NA removal after only 3 min of settling. Mechanical pressing of the flocs through a 100 µm mesh further improved water clarity and sludge compactness. Comparisons showed that non-grafted fibers provided moderate improvement, while systems without fibers performed poorly, especially when anionic polymers were used. This study highlights the importance of optimizing the fiber-to-

polymer ratio and introduces iron-grafted cellulose as a sustainable and effective flocculation aid for complex industrial effluents. These findings offer new insights into designing low-chemical, coagulant-free, high-efficiency treatment systems suited for decentralized or resource-limited applications and highly contaminated wastewater.

5.2 Main

Industrial wastewater from the petrochemical sector is among the most challenging to treat due to its complex chemical composition and high load of dissolved organic and colloidal contaminants. These effluents often contain suspended hydrocarbons, surfactants, heavy metals, and naphthenic acids (NAs)—amphiphilic molecules with proven toxicity to aquatic organisms and known persistence in the environment. (Aher et al., 2017) NAs are particularly problematic due to their complex carboxylic structures, acute toxicity to aquatic life, and strong persistence in oil sands tailing ponds and refinery effluents. (Flatley, 2016; Kannel & Gan, 2012) The treatment of such matrices is especially critical in regions managing large volumes of petrochemical discharges, including tailing ponds associated with oil sands and refining activities. These engineered basins are designed for long-term containment of industrial wastewater but have raised environmental concerns due to leaching and poor biodegradability of the contained organic pollutants. (C. Zhao et al., 2021) Tailing ponds thus represent one of the most significant environmental consequences of petrochemical operations. These waters are corrosive, chemically unstable, oily, biologically active, toxic, and often exhibit salinity levels approaching saturation. (“Gouvernement Du Canada,” 2020)

Among conventional remediation technologies, coagulation–flocculation is widely applied due to its simplicity, cost-effectiveness, and ability to remove turbidity and a portion of dissolved organic matter. However, the removal of natural organic matter (NOM) remains challenging during conventional coagulation and flocculation; NOM interference can significantly affect treatment efficiency by competing with other pollutants for adsorption sites, complicating the optimization of treatment processes. (Matilainen et al., 2010) Traditional coagulants (e.g., ferric or aluminum salts) and synthetic flocculants such as cationic polyacrylamide (c-PAM)

can generate large amounts of chemical sludge, increase secondary pollution, and cause toxicity issues, particularly when used at high doses. (Lapointe et al., 2022; C. Zhao et al., 2021) For example, the degradation of PAM under environmental conditions has important implications for treatment sustainability, potentially generating byproducts of concern. Understanding the degradation pathways of PAM is essential for assessing the long-term environmental safety of flocculation practices. (Xiong et al., 2018) Some studies have explored bio-based polymers as sustainable alternatives to synthetic PAMs. Starch-PAM hybrid systems, for instance, exhibit comparable flocculation efficiencies while potentially reducing environmental impacts due to their biodegradability and renewable origin. (Lapointe & Barbeau, 2017)

Recent advances in water treatment have highlighted the potential of fiber-based technologies to serve as high-performance and multifunctional bridging agents. Previous reviews have shown that conventional water treatment technologies have limited success in fully removing NAs due to their hydrophobic nature and wide molecular weight range. (Quinlan & Tam, 2015; B. Wang et al., 2015) Iron-grafted cellulose fibers have emerged as promising candidates due to their dual function: their elongated structure enhances physical entanglement and floc stability, while iron (hydr)oxide functional groups provide additional adsorption capacity and electrostatic interaction with anionic pollutants such as NAs. (Abi Farraj et al., 2024; Lapointe et al., 2023; Lapointe et al., 2022; Raissouni et al., 2024) These fibers, which can be sourced from recycled cellulosic materials, contribute to resource circularity and offer operational versatility for both sedimentation and filtration processes. Cross-linked cellulose-epichlorohydrin polymers have demonstrated high adsorption capacities toward organic contaminants, underlining the potential of modified cellulose derivatives as effective and sustainable adsorbents in water treatment applications. (Udoetok et al., 2016)

Moreover, flocculation systems that combine small doses of synthetic polymers with functionalized fibers have shown superior performance in removing turbidity, dissolved organic matter, and even emerging contaminants, while reducing the demand for conventional chemicals. (Raissouni et al., 2024; C. Zhao et al., 2021) Nevertheless, the performance of such

systems strongly depends on the fiber-to-polymer ratio, which determines the availability of bridging sites and the structural cohesion of the formed flocs. (C. Zhao et al., 2021) While some studies have optimized these ratios for synthetic waters or domestic effluents, no studies have evaluated their effectiveness under the complex conditions typical of petrochemical or tailing pond wastewater.

The present study aims to assess the performance of iron-grafted cellulose fibers in flocculation systems targeting petrochemical wastewater treatment. The investigation focuses on turbidity, removal efficiency of total organic carbon (TOC), and NAs as functions of polymer dose, fiber concentration, and settling/pressing conditions. The overarching goal is to identify the optimal conditions that combine low chemical demand with high pollutant removal, thereby contributing to the development of efficient and sustainable flocculation systems.

5.3 Results and Discussion

5.3.1 Synthesis and optimization of iron-grafted fibers

Iron-grafted cellulose fibers were synthesized through a multi-step procedure designed to enhance their performance as efficient flocculants. Initially, 1 g of cellulose fibers was dispersed in 100 mL of ultrapure water and homogenized using a high-shear blender for 15 to 20 s. The suspension was then transferred into a beaker equipped with mechanical stirring. Ferric coagulant PIX 311 (2.35 g Fe/L) was added under agitation, followed by pH adjustment to 5.0 ± 0.2 using 2 M NaOH, while minimizing volume changes. Finally, 20 mg/L of PAM was introduced, and the mixture was stirred for an additional 30 to 50 s to facilitate iron grafting. (Kurusu et al., 2022) The grafted fibers were subsequently recovered by mechanical pressing and subjected to a range of drying conditions to identify an optimal balance between moisture removal and iron immobilization.

As shown in Figure 5.1-a, drying efficiency increased with both temperature and time. Notably, fibers dried at 90°C achieved over 80% efficiency within just 1 h and plateaued at 88% thereafter. In contrast, lower drying temperatures (30°C and 45°C) resulted in persistently low efficiency, even after prolonged drying periods. To evaluate the stability of iron binding, selected dried fiber samples were rinsed with ultrapure water, and the resulting supernatants were analyzed for turbidity, used here as an indirect indicator of iron leaching. As shown in Figure 5.1-b, fibers dried at 60°C for 4 h exhibited the highest turbidity (> 100 NTU), suggesting substantial iron release into the aqueous phase. In contrast, samples dried at 90°C for 1 h showed markedly lower turbidity values (< 55 NTU), indicating improved grafting stability and reduced leachability. These results highlight 90°C for 1 h as the most favorable drying condition, combining high efficiency with minimal iron loss, likely due to improved conversion of $\text{Fe}(\text{OH})_3$ into more stable FeOOH or Fe_2O_3 forms on the fiber surface. (Kurusu et al., 2022)

During drying, iron oxyhydroxide species on cellulose fibers can undergo transformation into more stable iron oxide phases such as hematite, enhancing iron retention and reducing leachability in aqueous environments. (Gialanella et al., 2010) PAM-grafted cellulose fiber have previously shown significant potential for efficient turbidity and organic contaminant removal due to their enhanced bridging and adsorption, as demonstrated in a previous study. (Liu et al., 2014) This condition was therefore selected for subsequent use in wastewater treatment trials, as it preserves the functional integrity of the grafted fibers while aligning with operational feasibility and environmental safety.

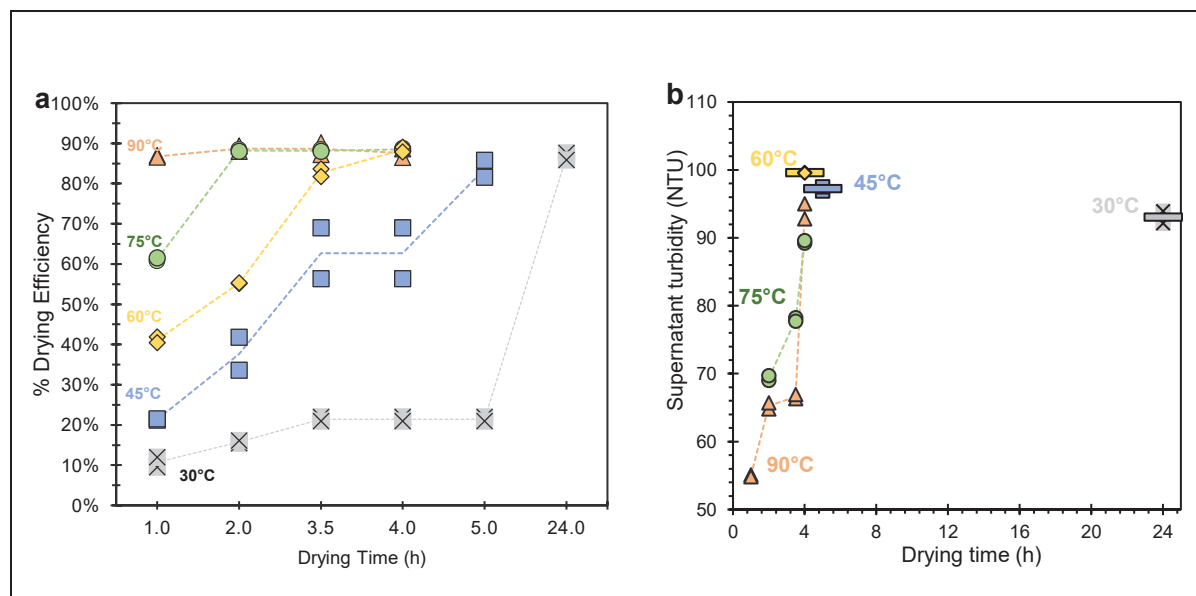


Figure 5.1 Optimization of drying conditions for iron-grafted cellulose fibers

(a) Drying efficiency (%) of fibers as a function of drying time at different temperatures (30 °C, 45 °C, 60 °C, 75 °C, and 90 °C). (b) Turbidity of rinse water collected after washing dried fibers with ultrapure water, used as an indirect indicator of iron leaching. High turbidity values suggest poor grafting stability. Experiments were performed in duplicate (a–b). Fibers were synthesized with 2.35 g Fe/L of PIX 311 at pH 5.0 ± 0.2 and 20 mg/L of PAM. Drying was conducted immediately after pressing. Rinsing was performed by blending a fixed mass of fiber in 100 mL ultrapure water for 10 s, followed by turbidity measurement of the supernatant

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.2 Surface characterization of fibers and grafted fibers

X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) was employed to investigate the surface elemental composition of pristine and iron-grafted fibers. As presented in Figure 2-a, the fibers exhibited a surface composition dominated by carbon (C1s: 56–58 %) and oxygen (O1s: 41–44 %), typical for this material. In contrast, the grafted fibers showed a marked decrease in surface carbon content (~40 %) and a relative increase in oxygen (~45 %), suggesting partial surface coverage by inorganic species or oxidative modifications resulting from the grafting process.

A prominent peak corresponding to Fe2p (~10–12 %) was detected exclusively on the grafted samples, confirming the successful immobilization of iron onto the fiber surface. This is

consistent with the multi-step grafting strategy, which involved pH-controlled precipitation of ferric ions (PIX-311, Fe^{3+}) in the presence of cellulose and PAM under mild acidic conditions (pH 5.0), favoring the formation of surface-bound $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Subsequent drying at 90 °C likely promoted the partial transformation of this phase into more stable iron oxides such as FeOOH or Fe_2O_3 , as previously described by Gialanella et al. (2010), enhancing the durability of the grafted layer and minimizing iron leaching. The $\text{Fe}2p$ peak was observed at 709.9 eV on both grafted fiber replicates and is characteristic of trivalent iron (Fe^{3+}), consistent with the formation of iron (oxy)hydroxide species and thermally induced iron oxidesf. (*XPS Database*, n.d.) The relatively broad full width at half maximum (FWHM > 5.5 eV) suggests the coexistence of amorphous phases, such as ferrihydrite or FeOOH , alongside more crystalline forms like hematite (Fe_2O_3). (Biesinger et al., 2011; Grosvenor et al., 2004) The low-intensity satellite features near 719 eV further support the presence of stable, oxidized iron phases. (Gialanella et al., 2010; *XPS Database*, n.d.) Additionally, the separation between the $\text{Fe } 2p_{3/2}$ (*XPS Database*, n.d.) main peak and its associated satellite, as well as the shape and energy of multiple splitting features, corroborate the presence of Fe^{3+} in an oxidized environment typical of hematite-like structures. (Grosvenor et al., 2004) These findings reinforce the hypothesis that drying at 90 °C facilitated a partial phase transformation into hematite-like structures, known for their chemical stability and low solubility. (Biesinger et al., 2011; Gialanella et al., 2010; Grosvenor et al., 2004) The observed binding energies and satellite features closely match the reference spectra and peak fitting parameters reported in the XPS database for iron oxides, (*XPS Database*, n.d.) further validating the Fe oxidation state assignment. The resulting surface composition, with Fe accounting for ~10–12 %, indicates a high grafting density, thereby contributing to the observed resistance to iron leaching in aqueous environments.

In addition to iron, small amounts of $\text{Si}2p$, $\text{Cl}2p$, and $\text{N}1s$ were detected on the grafted fibers, each contributing less than 1% to the atomic composition. These signals are consistent with the presence of trace reagents or ionic species introduced during synthesis: silicon possibly arising from contamination or equipment wear, chlorine from $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, sodium from NaOH used for pH adjustment, and nitrogen from the PAM backbone. Their very low intensity suggests limited surface coverage or partial removal during post-grafting rinsing. The XPS

results provide direct surface-level evidence of successful iron incorporation and functionalization of the fibers. These modifications are expected to enhance surface charge heterogeneity and increase binding affinity for contaminants during wastewater treatment applications.

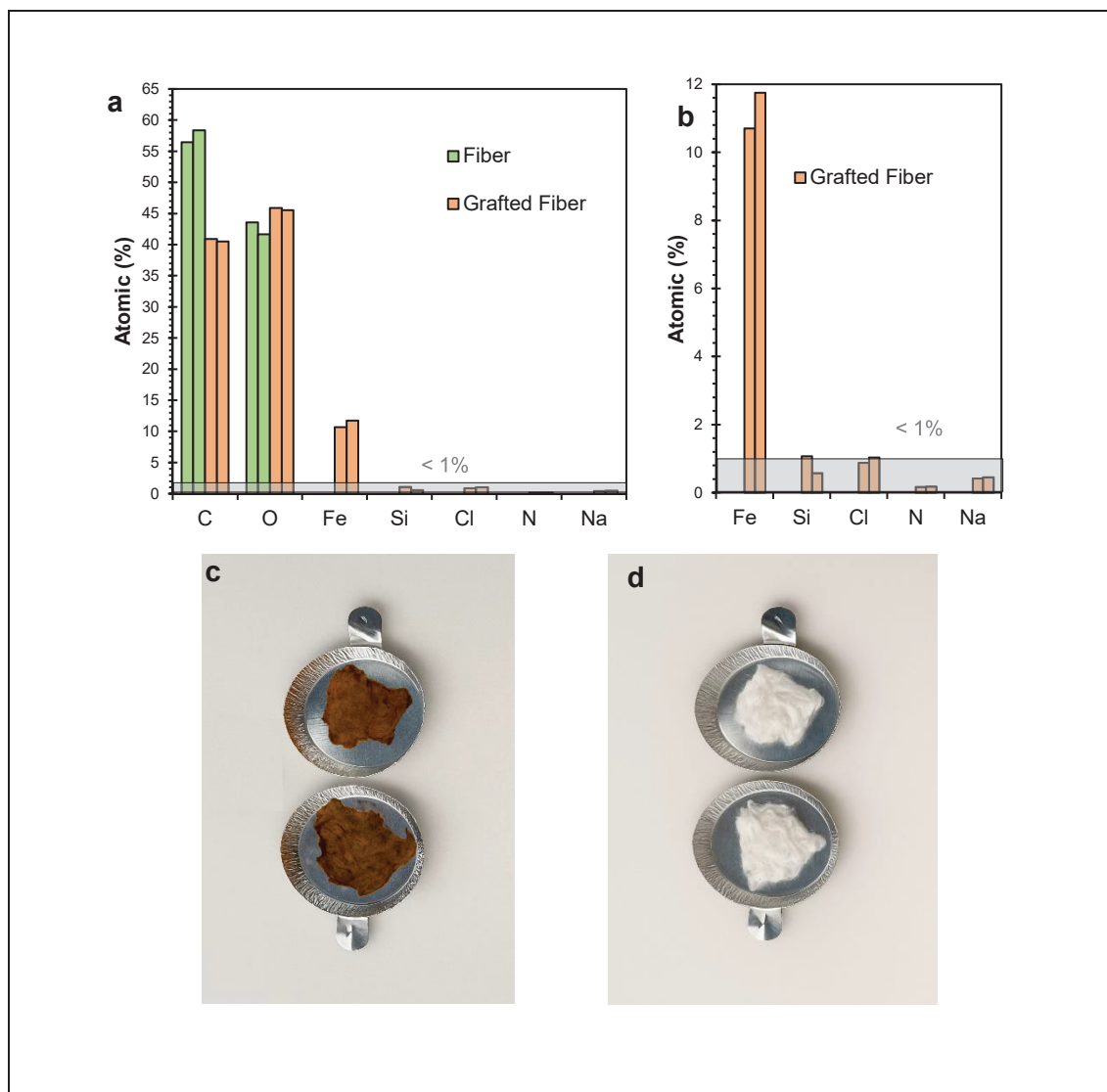


Figure 5.2 Surface composition of fiber and grafted fibers and visual appearance of iron-grafted fibers and pristine fibers

(a) XPS atomic composition (%) of pristine and grafted fibers. Grafted fibers exhibit a marked increase in surface iron content (~11 %) and a decrease in carbon, indicating successful surface modification. (b) Close-up of panel (a) highlighting the significant iron content in grafted fibers and focusing on minor elements (Si, Cl, N, Na), each representing less than 1 %. (c) Visual appearance of iron-grafted fibers after drying at 90 °C for 1 h. The reddish-brown coloration is consistent with the presence of surface-bound iron oxides. Fibers were synthesized using 2.35 g Fe/L of PIX 311 at pH 5.0 ± 0.2 with 20 mg/L of PAM. (d) Visual appearance of pristine fibers. XPS analysis was performed on duplicate samples

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.3 Evaluation of PAM flocculants combined with iron-grafted cellulose fiber for petrochemical wastewater treatment

To investigate the synergistic effects between functionalized cellulose fibers and polymeric flocculants, jar tests were conducted on petrochemical wastewater (initial turbidity: 75 NTU; pH: 7.1) using four types of PAMs: three cationic (c-PAM1, c-PAM2, c-PAM3) and one anionic (a-PAM). The grafted fiber dose was fixed at 200 mg/L in all conditions, while polymer dosages of 2 and 5 mg/L were tested. After flocculation, samples were allowed to settle for 30 s and 3 min. Turbidity measurements were performed at both time points, while NAs and TOC were measured in the supernatant after 3 min of settling.

Across all polymers, 2 mg/L consistently outperformed the 5 mg/L dosage, demonstrating that lower dosages minimized the risk of restabilization due to polymer overdosing and charge reversal—an effect well documented in the literature. (Fu et al., 2023) Polymeric architecture significantly influences flocculation performance; linear and branched c-PAMs differ in their bridging efficiency, highlighting the importance of polymer structure optimization as observed in these comparative trials between different PAM types. (Palomino et al., 2011) Among the polymers tested, c-PAM2 and c-PAM3 provided the best results in turbidity and NA removal, likely due to their optimized balance between intrinsic viscosity and cationic charge density, favoring both adsorption-bridging and charge neutralization mechanisms. (Shatat et al., 2019) The use of iron-grafted cellulose fibers significantly enhanced floc size and density, contributing to better settling and pollutant entrapment. Grafted materials are known to combine the structural integrity with the electrostatic properties of synthetic polymers, leading to improved charge density and enhanced floc stability. (Lee et al., 2014) The synergistic effect observed between c-PAM and iron-functionalized fibers can be attributed to increased adsorption sites and mechanical reinforcement of flocs, a mechanism consistent with recent studies on flocculants. (Lee et al., 2014)

In terms of NA removal, fluorescence intensity indicated significant reduction, particularly for c-PAM2 and c-PAM3 at 2 mg/L, which may be due to the stronger interaction between positively charged polymer chains and the carboxylate groups present in NAs. These acids,

known for their surfactant-like behavior and toxicity, can be destabilized through both electrostatic attraction and hydrophobic interactions. NAs are amphiphilic molecules containing carboxylic groups that confer negative charge at neutral pH and are recognized for disrupting cytoplasmic membranes and being harmful to aquatic ecosystems. (Aher et al., 2017)

TOC results (Figure 5.3-d) closely aligned with NA removal, further confirming the superior performance of c-PAM2 and c-PAM3 at 2 mg/L in reducing the organic pollutant load. Interestingly, increasing the dose to 5 mg/L did not consistently improve removal rates and, in some cases, caused overdosing effects such as charge reversal or floc restabilization—a phenomenon previously reported for cationic polymers in high-solid systems. (Fu et al., 2023) Humic substances can compete with other pollutants for adsorption sites on metal oxide surfaces. This competition could partially explain variations observed in NA and TOC removal efficiencies under different treatment conditions, emphasizing the complexity of treating organic-rich petrochemical wastewater. (Borggaard et al., 2005)

Overall, the results highlight the critical importance of polymer type and dosage, as well as the beneficial role of grafted cellulose fibers in enhancing flocculation efficiency. The formulation combining 200 mg/L iron-grafted fibers with 2 mg/L of c-PAM3 was identified as the most effective, balancing turbidity reduction, NA removal, and TOC performance under short settling conditions.

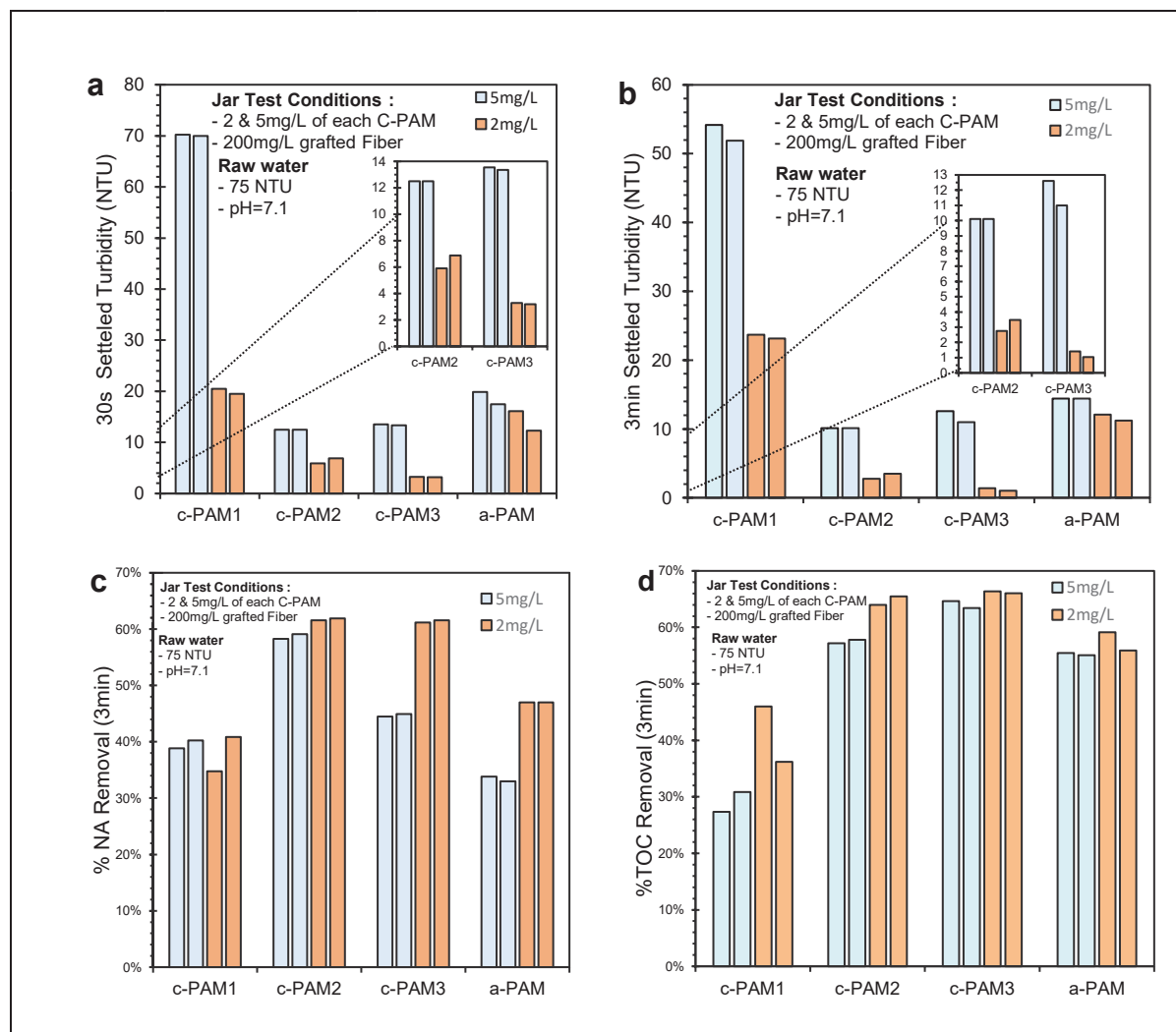


Figure 5.3 Flocculation performance of grafted fibers combined with various polyacrylamides for petrochemical wastewater treatments

(a) Residual turbidity after 30 s of settling using grafted fibers (200 mg/L) and different polymers (2 and 5 mg/L). (b) Residual turbidity after 3 min of settling under the same conditions. (c) Naphthenic acid (NA) removal after 3 min, based on fluorescence reduction. (d) Total organic carbon (TOC) removal measured after 3 min of settling. Experiments were conducted on petrochemical wastewater with initial turbidity of 75 NTU and pH 7.1

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.4 Contribution of grafted and non-Grafted fibers to flocculation efficiency

To better understand the contribution of fiber modification to flocculation performance, additional jar tests were conducted under identical polymer conditions (2 mg/L) using three

scenarios: no fibers, non-grafted fibers, and iron-grafted fibers. All tests were performed with the same set of PAMs (c-PAM1, c-PAM2, c-PAM3, and a-PAM) and evaluated for turbidity removal after 30 s and 3 min of settling, as well as NA reduction based on fluorescence after 3 min. The results clearly highlight the pivotal role of grafted fibers in enhancing treatment efficiency. As shown in Figure 5.4, the presence of grafted fibers significantly improved both turbidity and NA removal across all PAM types. In contrast, non-grafted fibers provided only limited performance gains, while the absence of fibers consistently yielded the poorest results.

The superior performance of grafted fibers is attributed to their dual functionality: the cellulose backbone promotes floc bridging due to its filamentous structure and high aspect ratio, while the iron grafting introduces reactive sites that enhance adsorption and electrostatic interactions with colloidal and dissolved contaminants. (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022) Fiber-based super-bridging agents have been shown to form flocs that are 10–100 times larger than those produced by conventional treatments, resulting in faster settling and higher separation efficiency. These materials increase floc size through extended polymer-fiber-particle networks, and the presence of iron further promotes the immobilization of negatively charged organic compounds such as NAs. (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022) Non-grafted cellulose fibers, while still acting as bridging media, lack the chemical reactivity and surface charge density needed for effective interaction with organic micropollutants. (Bolto & Gregory, 2007)

Interestingly, while the anionic polymer a-PAM showed poor performance in the absence of fibers or with non-grafted fibers, its efficacy significantly improved when combined with iron-grafted cellulose. The limited performance of anionic PAM observed in this study contrasts with other findings indicating its utility as a coagulant aid, but no coagulant was added in this case. However, these results suggest that its efficacy is significantly enhanced when combined with iron-grafted fibers, potentially due to improved adsorption sites for negatively charged contaminants. (Aguilar et al., 2005) This highlights the potential of surface-functionalized fibers to enhance the applicability of otherwise less compatible polymer types by providing additional binding sites and charge compensation mechanisms. Grafted fibers thus represent a

promising platform for broadening the operational window of both cationic and anionic flocculants in complex industrial effluents.

Moreover, the absence of fibers results in a marked reduction in floc size and density, requiring longer settling times to reach acceptable clarity levels. This aligns with previous observations that high molecular weight polymers alone are limited in their capacity to produce dense, rapidly settling flocs when operating under short hydraulic retention times. (Loukili et al., 2024; Raissouni et al., 2024) The comparison confirms that grafted fibers act not only as physical scaffolds but also as chemically active supports that extend the flocculation mechanisms beyond charge neutralization to include targeted adsorption.

These findings reinforce the importance of fiber surface functionalization in high-performance flocculation systems and offer a pathway to repurpose anionic polymers in challenging water matrices where charge compatibility is otherwise limiting. The condition combining 200 mg/L iron-grafted fibers with 2 mg/L of c-PAM3 remains the most effective configuration, achieving optimal contaminant removal through both physical and chemical enhancement mechanisms.

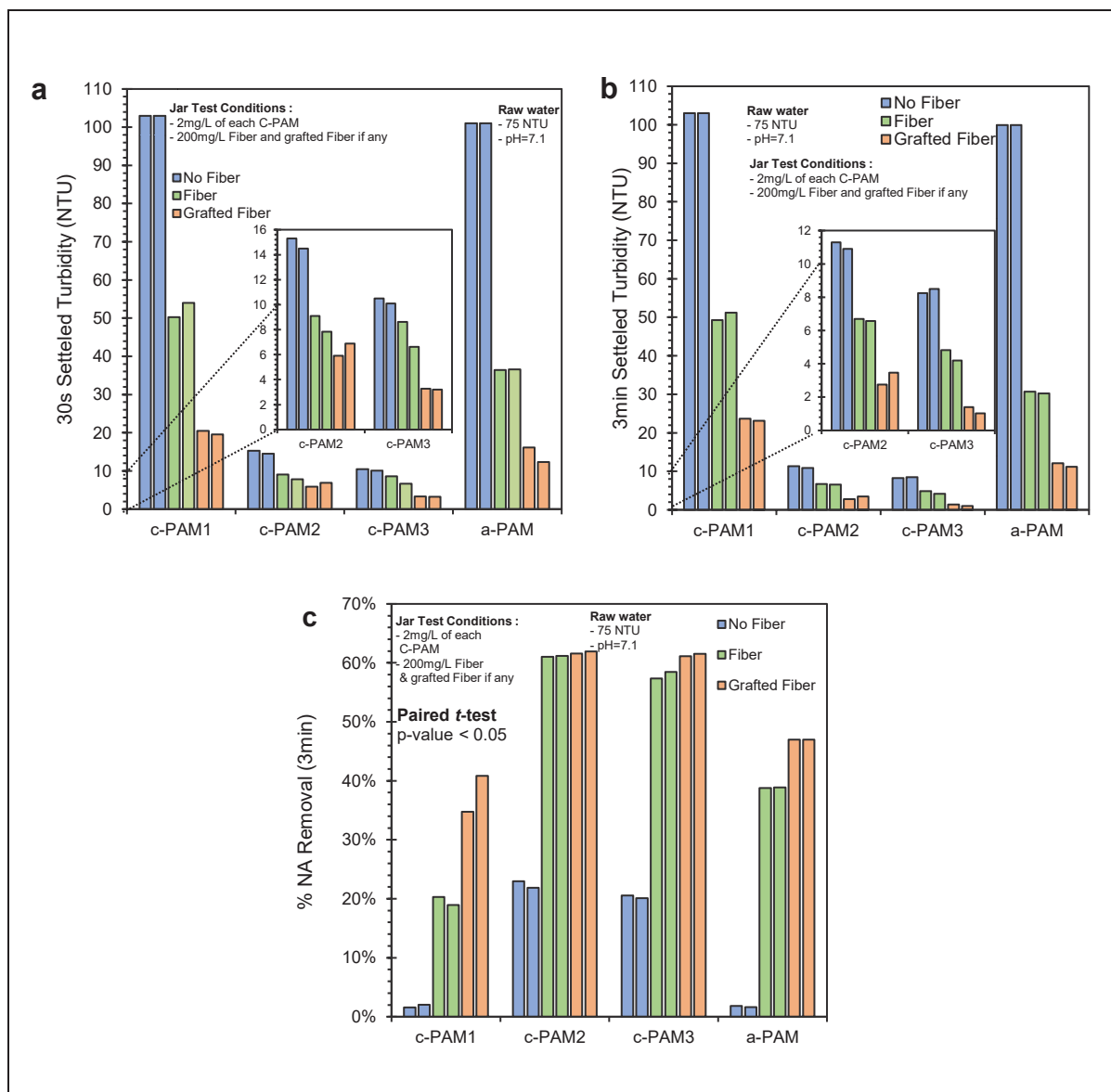


Figure 5.4 Contribution of fiber type to turbidity and naphthenic acid (NA) removal
 (a) Residual turbidity after 30 s of settling using different polyacrylamides (c-PAM1, c-PAM2, c-PAM3, and a-PAM) at 2 mg/L, combined with either 200 mg/L of iron-grafted cellulose fibers, non-grafted fibers, or no fibers. (b) Residual turbidity after 3 min of settling under the same conditions. (c) NA removal efficiency based on fluorescence reduction measured in supernatants after 3 min of settling. All jar tests were performed using petrochemical wastewater (initial turbidity: 75 NTU, pH: 7.1). Experiments were conducted in duplicate (a–c)

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.5 Optimization of c-PAM 3 dosage in the presence and absence of fibers

Following the identification of c-PAM3 as the most efficient flocculant in previous tests, its concentration was varied (from 0.5 to 5 mg/L) to evaluate the optimal dosage under three configurations: without fibers, with non-grafted fibers, and with iron-grafted fibers. All experiments were conducted on petrochemical wastewater (initial turbidity: 75 NTU, pH: 7.1), with a fixed fiber concentration of 200 mg/L (when applicable). As shown in Figure 5.5 the presence of iron-grafted fibers consistently enhanced treatment efficiency across the tested c-PAM3 concentrations. At the optimal dosage of 2 mg/L, turbidity dropped to approximately 3.24 NTU after 30 s and to an average of 1.21 NTU after 3 min in the presence of grafted fibers, compared to approximately 7 NTU and 5 NTU, respectively, with non-grafted fibers, and over 11 NTU without fibers. The superior performance of grafted fibers is attributed to their dual action as both bridging structures and active adsorbents. Iron species on the fiber surface provide positively charged sites that enhance the capture of colloids and soluble anionic pollutants through electrostatic interactions. (Kurusu et al., 2022)

NA removal followed the same trend. At 1 mg/L of c-PAM3, removal reached up to 64 % with grafted fibers, compared to approximately 58 % with non-grafted fibers and only about 45 % without fibers. These results confirm the role of fiber surface chemistry in the adsorption of amphiphilic organic acids, consistent with previous findings on iron (hydr)oxide-coated materials acting as selective adsorbents for negatively charged contaminants. (Kurusu et al., 2022; Lapointe et al., 2022) Statistical comparisons highlighted distinct behaviors between turbidity reduction and NA removal across treatment conditions. Paired t-tests conducted on turbidity data revealed a statistically significant improvement upon the addition of fibers, both non-grafted ($p < 0.05$) and grafted ($p < 0.05$), compared to the control condition without fibers. Nevertheless, the difference between non-grafted and grafted fibers was not statistically significant ($p = 0.43$), suggesting that under the tested conditions, fiber grafting did not result in a measurable enhancement of turbidity removal. Conversely, NA removal efficiencies exhibited statistically significant differences across all three conditions, as confirmed by paired

t-tests, thereby underscoring the stronger influence of fiber grafting on the retention of dissolved organic contaminants.

Interestingly, increasing the polymer concentration beyond 2 mg/L led to a reduction in performance, particularly in systems without fibers. This is consistent with polymer overdosage phenomena, where charge reversal and floc restabilization can occur. (Loukili et al., 2024) In contrast, systems containing grafted fibers maintained relatively stable performance even at 3–5 mg/L, suggesting a buffering effect likely due to the high availability of anchoring and adsorption sites on the fiber surface. (Alioua & Lapointe, 2023) Optimal dosing of cationic PAM significantly influences flocculation efficiency. Recent studies using UV-initiated polymerization confirmed that exceeding the optimal PAM dosage can reduce flocculation efficiency due to charge reversal and polymer saturation effects, aligning with our observations at higher PAM dosages. (Fu et al., 2023)

Altogether, these results demonstrate that the combination of 2 mg/L c-PAM3 with 200 mg/L iron-grafted cellulose fibers provides optimal removal performance, balancing rapid floc formation, reduced polymer demand, and enhanced contaminant adsorption. This is particularly relevant for NAs, whose removal efficiencies are sensitive to flocculant dosage and system operating conditions. (Flatley, 2016; B. Wang et al., 2015) The correlation between floc physical properties and optimal polymer dosage is critical, as higher dosages do not necessarily improve floc stability, consistent with studies indicating that optimal polymer dosing closely relates to achieving a balance between floc size, density, and dewatering efficiency. (Y. Q. Zhao, 2003) For the remainder of this study, however, a dosage of 1 mg/L c-PAM3 was selected to explore a formulation favoring lower polymer usage and greater reliance on fiber-based mechanisms, in line with objectives of reduced chemical dependency, environmental compatibility, and cost-efficiency.

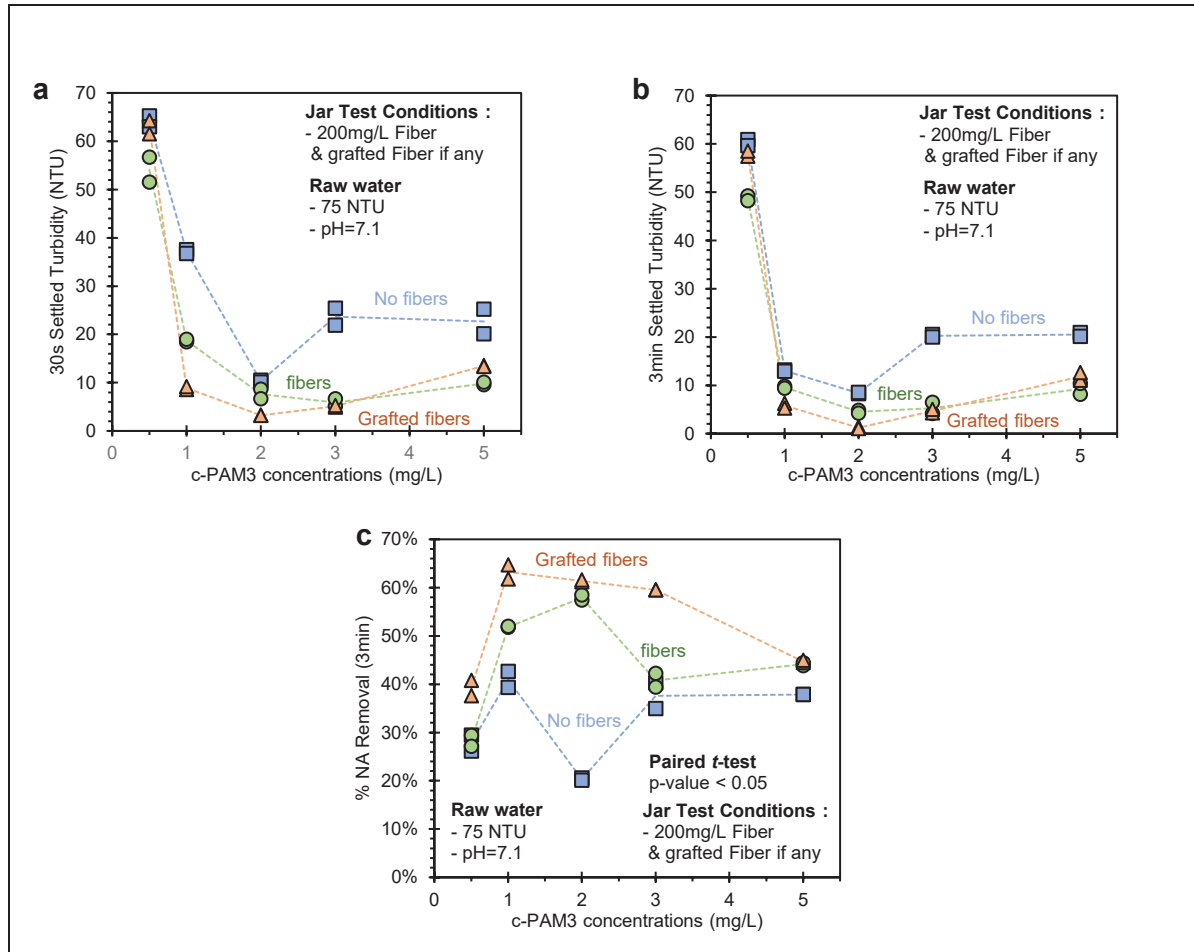


Figure 5.5 Impact of c-PAM3 dosage on flocculation performance under different fiber conditions

(a) Residual turbidity after 30 s of settling at varying concentrations of c-PAM3 (0.5 to 5 mg/L), tested in the absence of fibers, in the presence of non-grafted fibers, or with 200 mg/L of iron-grafted cellulose fibers. (b) Residual turbidity after 3 min of settling under the same experimental conditions. (c) Naphthenic acid (NA) removal efficiency evaluated by fluorescence at 3 min of settling. All jar tests were conducted using petrochemical wastewater (initial turbidity: 75 NTU, pH 7.1). A fixed fiber concentration of 200 mg/L was used when applicable. Experiments were conducted in duplicate (a–c)

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.6 Influence of fiber concentration

To assess the effect of fiber dosage on treatment efficiency, jar tests were conducted using a fixed c-PAM3 concentration of 1 mg/L while varying the fiber concentration from 50 to 300

mg/L. Both non-grafted and iron-grafted cellulose fibers were tested. Turbidity was measured after 30 s and 3 min of settling, as well as after mechanical pressing through a 100 μm mesh screen. Pressed samples were also analyzed for NA removal using fluorescence. As shown in Figure 5.6, the presence of iron-grafted fibers led to superior performance across all fiber concentrations and evaluation methods. At 250 mg/L, turbidity dropped to approximately 2.25 NTU after 30 s and to about 2 NTU after 3 min with grafted fibers, compared to about 9 NTU and 8 NTU, respectively, for non-grafted fibers. Pressed water turbidity at the same concentration was 1.97 NTU with grafted fibers, while remaining above 6 NTU with non-grafted fibers. These results highlight the importance of both bridging and adsorption mechanisms introduced by the grafted iron, which enhances floc size, density, and stability during pressing. (Alioua & Lapointe, 2023; Kurusu et al., 2022)

The improvement was particularly notable for sludge management. The pressability of the flocs increased markedly with grafted fibers, forming compact structures that allowed efficient water release through the mesh. This suggests that pressing could serve as a viable alternative to traditional settling when using large, dense flocs generated by fiber-based systems. (Mebarki et al., 2025) The mechanical pressing step employed in this study significantly improved sludge compactness. Similar phenomena were previously reported as enhanced dewatering, suggesting a broader applicability of mechanical pressing for compact water treatment strategies. (Sieliechi et al., 2016) The resistance and morphology of flocs under cyclic shearing significantly influence the sustainability of flocculation processes, particularly under mechanical pressing conditions. Studies show that certain flocs formed under specific conditions exhibit better recovery from shear-induced disruptions, aligning with observations in our press-based dewatering experiments. (McCurdy et al., 2004)

NA removal after pressing also followed a clear trend. At 250–300 mg/L of grafted fibers, removal efficiencies reached up to 66 %, compared to a maximum of about 52 % for non-grafted fibers. This demonstrates that functionalized fiber surfaces not only promote aggregation but also contribute to the adsorption of dissolved organic contaminants, such as NAs, even after mechanical dewatering. (Sieliechi et al., 2016) Altogether, these results

confirm that the concentration of iron-grafted cellulose fibers, up to 250 mg/L, in combination with a low PAM dosage (1 mg/L), maximizes treatment efficiency while enhancing sludge handling. The synergy between fiber structure and surface chemistry provides both operational flexibility and performance robustness for industrial wastewater treatment systems.

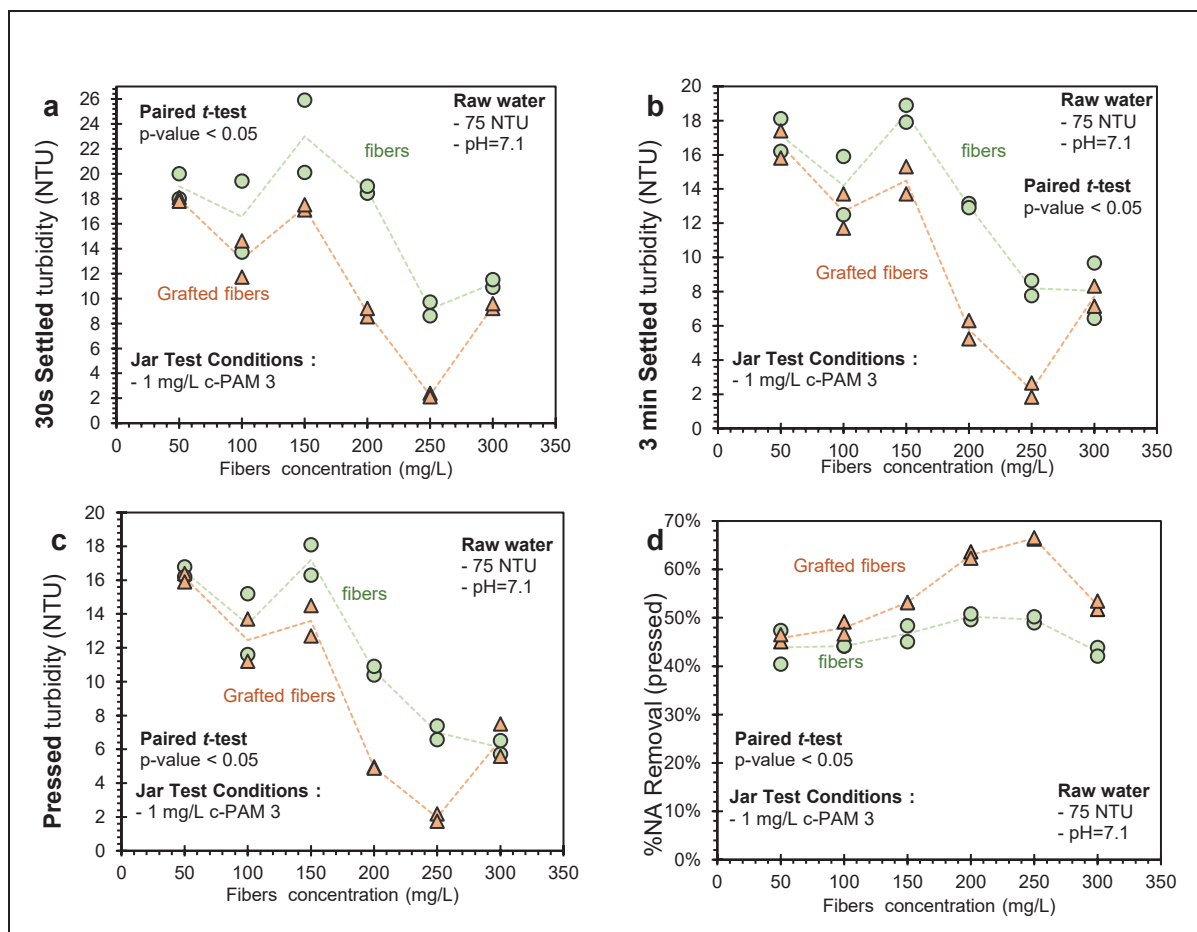


Figure 5.6 Impact of fiber concentration on flocculation using 1 mg/L of c-PAM3 (a) Residual turbidity after 30 s of settling for increasing concentrations (50–300 mg/L) of non-grafted and iron-grafted cellulose fibers. (b) Residual turbidity after 3 min of settling under the same conditions. (c) Residual turbidity after mechanical pressing through a 100 μ m mesh screen. (d) Naphthenic acid (NA) removal after pressing, measured by fluorescence. Jar tests were performed on petrochemical wastewater (initial turbidity: 75 NTU, pH 7.1) with a fixed c-PAM3 concentration of 1 mg/L. Mechanical pressing was carried out after 3 min of settling. Experiments were performed in duplicate (a–d)

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.3.7 Total Organic Carbon removal under selected flocculation conditions

To further assess treatment performance, TOC removal was evaluated under selected conditions representative of typical and optimized jar tests. As shown in Figure 5.7, which compares 250 mg/L of fibers (grafted and non-grafted) under both 1 and 2

mg/L of c-PAM3, the most favorable result was achieved with 1 mg/L of c-PAM3 and 250 mg/L of grafted fibers, reaching a TOC removal of 55%. This performance was slightly higher than the 53 % obtained at 2 mg/L of c-PAM3 under the same fiber concentration, and markedly better than the removal rates observed with non-grafted fibers (approximately 51 % and 50 % for 1 and 2 mg/L, respectively) and without fibers (44–46 %). These results demonstrate the enhanced bridging and adsorption capacity provided by the positively charged iron hydr(oxides) on the grafted fiber surfaces and the crucial role it plays in TOC removal by promoting interactions with dissolved organic compounds. (Kurusu et al., 2022) Similar optimization studies have shown that polymer dosage critically influences TOC removal, confirming the importance of careful dosage control in complex petrochemical wastewater. (Santo et al., 2012)

Figure 3.9-b three fiber/grafting conditions under higher-performance scenarios. Despite the generally strong performance of iron-grafted cellulose fibers, the efficiency of TOC removal was shown to depend critically on the balance between polymer dosage and fiber concentration. The best performance (66 % TOC removal) was achieved with 2 mg/L of c-PAM3 and 200 mg/L of grafted fibers, highlighting a favorable synergy where the polymer dose was sufficient to activate most fiber surfaces and support optimal floc formation. (Alioua & Lapointe, 2023; Lapointe et al., 2022) Furthermore, studies using graphene oxide nanosheets in conventional treatment reinforce the crucial role of optimized polymer-adsorbent interactions to significantly improve TOC removal efficiency in challenging surface water treatment applications. (Parsa et al., 2020) In contrast, increasing the fiber concentration to 250 mg/L while maintaining the same polymer dose (2 mg/L) slightly reduced TOC removal to 53 %, likely due to polymer dilution across excessive surface area, leading to incomplete activation and less cohesive flocs. This effect of dilution and suboptimal polymer coverage leading to weaker and less stable flocs has also been documented in previous research, indicating that higher fiber concentrations without proportionate polymer dosages may negatively impact treatment efficiency. (Kurusu et al., 2022)

Interestingly, reducing the polymer dose to 1 at 250 mg/L of fibers produced 55% TOC removal—slightly higher than the 2 mg/L condition—suggesting that overdosing the polymer in fiber-rich systems may impair bridging or restabilize particles, while a lower PAM dose better maintains structural openness and surface accessibility. (Raissouni et al., 2024) The optimal contaminant removal efficiency is heavily influenced by maintaining the correct balance between adsorbent surface area, polymer dosage, and the nature of the polymer-fiber interaction. (Kurusu et al., 2022; Raissouni et al., 2024) Comprehensive reviews on petrochemical wastewater treatment underline the complexity of optimizing polymer and adsorbent dosages, indicating that improper ratios can significantly diminish removal efficiency and compromise the overall treatment process performance. (Llop et al., 2009; Tian et al., 2020) These results demonstrate that the fiber-to-polymer ratio is key to optimizing treatment, and that maximizing contaminant removal depends not on the absolute concentration of each component, but on their interplay and dynamic interaction during bridging and adsorption.

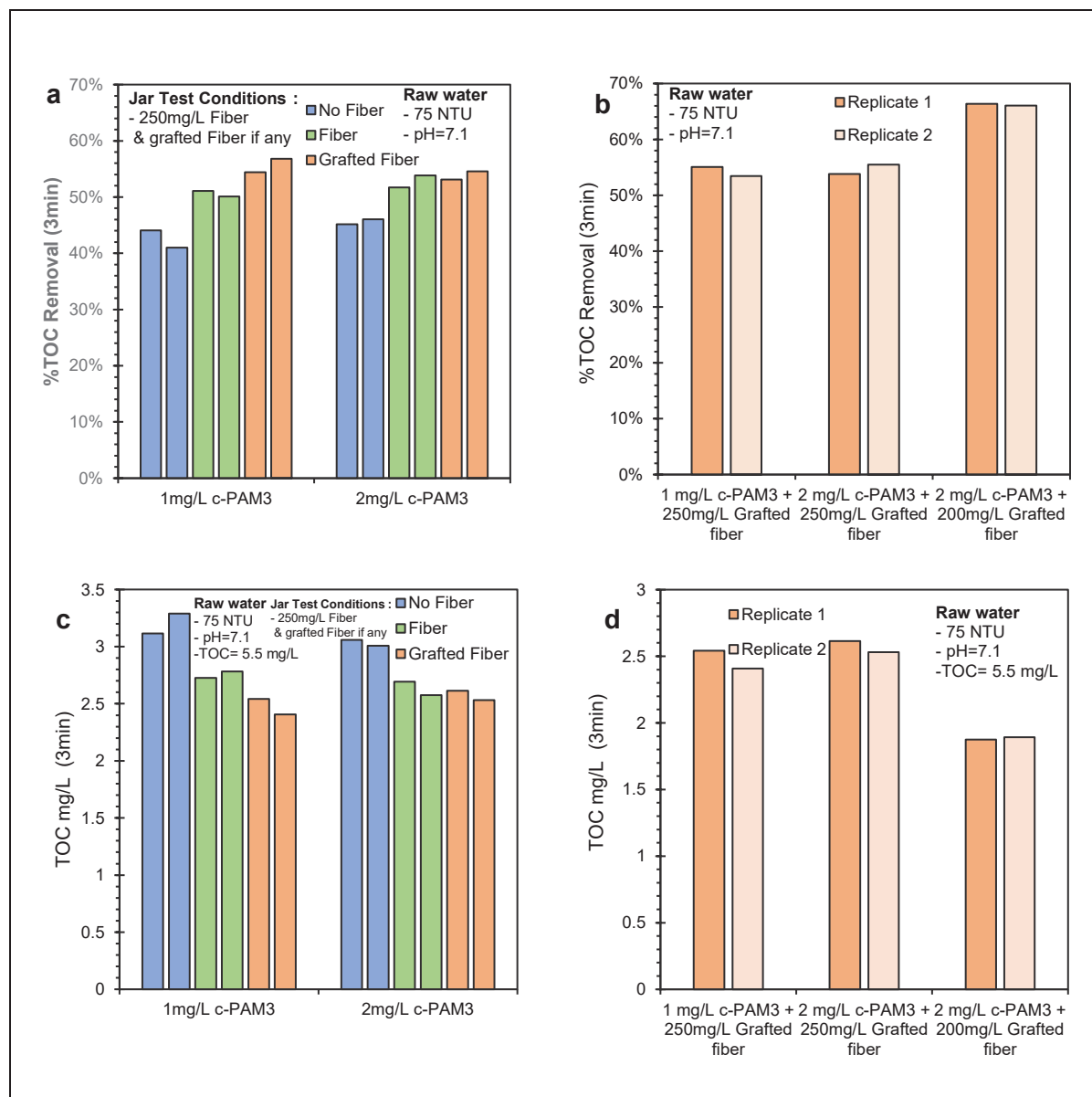


Figure 5.7 Impact of fiber type, concentration, and polymer dose on total organic carbon (TOC) removal

(a) TOC removal under selected treatment configurations using 1 mg/L or 2 mg/L of c-PAM3, with and without 250 mg/L of fibers (non-grafted or iron-grafted). (b) Comparison of optimized conditions using 200–250 mg/L of grafted fibers with 1–2 mg/L of c-PAM3. (c) TOC concentration under the same selected treatment configurations as in (a). (d) Comparison of TOC concentration under the same optimized conditions as in (b). TOC was measured in supernatants collected after 3 min of settling. Each condition was tested in duplicate (a–d)

Tirée de Mebarki et al. (2025) (soumis)

5.4 Conclusion

This study demonstrated the effectiveness of flocculation systems combining PAM flocculants and functionalized fibers for treating petrochemical wastewater. The systematic evaluation of c-PAMs and a-PAMs, used alone and in combination with both non-grafted and iron-grafted fibers, revealed that integrating grafted fibers substantially enhanced flocculation performance. These improvements are attributed to the dual functionality of the grafted fibers: their structural capacity to act as super-bridging agents and their chemically active iron (hydr)oxide surfaces, which enable adsorption of colloids and dissolved organic contaminants such as NAs. (Raissouni et al., 2024)

Floc strength is a critical factor influencing the stability and efficiency of flocculation processes. The superior stability observed with iron-grafted cellulose fibers is consistent with findings indicating that optimized floc structure significantly reduces breakage during mechanical agitation or pressing. (Jarvis et al., 2005) The results showed that grafted fibers significantly reduced turbidity and increased TOC and NA removal when used at concentrations between 200 and 250 mg/L, especially under low PAM dosages (1–2 mg/L). The optimal performance (up to 66 % NA removal and 55–66 % TOC reduction) was achieved with 1–2 mg/L of c-PAM3 and 200–250 mg/L of iron-grafted fibers, underscoring the importance of maintaining a balanced fiber-to-polymer ratio to avoid overdosage and restabilization effects. This aligns with previous findings showing that flocculation and adsorption approaches can significantly lower NA concentrations from oil sands wastewater. (Flatley, 2016; Kannel & Gan, 2012; Quinlan & Tam, 2015)

Furthermore, the introduction of a mechanical pressing step confirmed the robustness of the flocs produced, highlighting their potential for efficient sludge dewatering—critical for minimizing downstream management costs. (Mebarki et al., 2025) Beyond enhancing pollutant removal, this approach aligns with sustainable water treatment principles by leveraging recycled cellulose as a functional material and reducing reliance on high chemical dosages. Such a strategy offers a promising, scalable, and cost-effective alternative for

industrial effluents, especially in contexts requiring compact and efficient treatment solutions. (Kurusu et al., 2022)

Future research should further explore the long-term stability of grafted materials under continuous operation, the regeneration or reuse potential of fibers, and their applicability across a broader range of complex wastewaters. Additionally, future work could investigate scaling up the synthesis process, use alternative grafting agents to enhance adsorption capacity and diversify application fields, and apply this fiber-based treatment process to other industrial and municipal wastewaters.

5.5 Materials and methods

5.5.1 Chemicals and materials

The polyacrylamides used in this study included three cationic polymers supplied by Kemira Water Solution Canada Inc. along with one anionic PAM (a-PAM) supplied by Hydrex and are listed in Table 5.1. All solutions and suspensions were prepared using RO water. As described elsewhere, (Kurusu et al., 2022; Lapointe et al., 2022) the non-grafted fiber suspensions were prepared by blending 2.5 g of dried fibers in 500 mL of RO water (Ninja blender, for 15s to 20s). the coagulant PIX 311 (ferric chloride solution) was used for grafting procedures, the choice of the ferric chloride for iron grafting was guided by its effective hydrolysis properties, resulting in the formation of stable iron oxyhydroxides that enhance contaminant adsorption and facilitate bridging interactions within flocculation processes. (Duan & Gregory, 2003) Cellulose fibers used for grafting were obtained from eucalyptus paper (2.5g in 500mL of RO water, Ninja blender, for 15s to 20s) to prepare suspensions. Iron grafting was performed by adding PIX 311 (2.35 g Fe/L) under agitation, followed by pH adjustment to 5.0 ± 0.2 using 2 M NaOH and, 20 mg/L of polyacrylamide (PAM) was introduced, and the mixture was stirred for an additional 30 to 50 seconds to facilitate iron grafting. And dried under controlled conditions (temperature and time optimization detailed in results and discussion).

Tableau 5.1 Properties of polyacrylamides
Adapté de Mebarki et al. (2025)

Tested polyacrylamides	Charge	Charge Density (%)	Molecular weight
c-PAM 1	cationic	~ 7 % 	high
c-PAM 2	cationic	~ 35 % 	high
c-PAM 3	cationic	~ 55 % 	high
a-PAM	anionic	< 10 % 	very high

5.5.2 Water characteristic

The primary water used for jar testing was a petrochemical wastewater sample, exhibiting a turbidity of 75 ± 1 NTU and a pH of 7.1 ± 0.2 . All samples were equilibrated to room temperature ~ 21 °C before testing. The tests were designed to simulate compact water treatment processes without granular filtration, focusing on turbidity, naphthenic acids (NAs), and total organic carbon (TOC) removal. (cf Tableau 2.1)

5.5.3 Jar tests

Jar tests were conducted to systematically evaluate the flocculation performance of various treatment combinations involving polymers and fibers. Experiments were performed using 250 mL glass beakers placed on a Corning magnetic stirring plate, with mixing speeds ranging from 150 to 300 rpm. The stirring apparatus employed cross-shaped magnetic bars (3.5 cm $\times$ 3.5 cm), and all tests were conducted at ambient temperature ~ 21 °C.

Four types of polyacrylamides (PAMs) were tested: three cationic polymers (c-PAM1, c-PAM2, c-PAM3) and one anionic polymer (a-PAM). Stock solutions (500 mg/L) were prepared by dissolving 50 mg of each PAM powder in 100 mL of RO water under magnetic

stirring for 15 minutes, polyacrylamide degradation over time can affect its performance leading to reduced molecular weight and weakened flocculation capacity, this highlights the importance of freshly prepared polymer solutions, as employed in this protocol, to ensure optimal contaminant removal efficiency. (Loukili et al., 2024) Polymer concentrations were varied across a wide range from 0.5 to 5.0 mg/L to assess overdosing effects and identify optimal flocculation thresholds. In parallel, fiber concentrations were varied from 50 to 300 mg/L. For each polymer concentration, tests were conducted in three configurations: (i) without any fibers, (ii) with non-grafted fibers (white), and (iii) with iron-grafted fibers.

In all fiber-containing configurations, the fiber suspension (5 g/L) was added simultaneously with the polymer introduction. The total PAM dose was divided into two equal parts to reduce the risk of polymer desorption and reconfiguration. The first half was added immediately with fiber dosing, followed by 2 minutes of mixing. The second half was introduced thereafter, followed by an additional 2 minutes of mixing to promote effective floc formation. After flocculation, samples were allowed to settle for either 30 seconds or 3 minutes. Turbidity was measured at both time intervals using a turbidimeter. In addition to conventional settling, a pressing step was introduced to simulate compact sludge dewatering and enhance performance evaluation. Mechanical pressing was performed using a filter press equipped with a 100 μ m mesh screen. The supernatant collected after pressing was also analyzed for turbidity and naphthenic acid (NA) removal. All conditions were tested in duplicate, and at least three measurements were taken per sample to minimize analytical variability.

5.5.4 Total organic carbon, fluorescence, turbidity and X-ray photoelectron spectroscopy

Turbidity was measured according to Standard Method 2130B using a Hach 2100N turbidimeter. Total organic carbon (TOC) concentrations were determined following Standard Method 5310C with a Sievers 5310c TOC analyzer (GE Water). Naphthenic acids (NAs) were quantified by fluorescence spectroscopy using a method adapted from Mohamed et al. for rapid screening of oil sands-derived acids. Analyses were conducted with a Cary Eclipse spectrofluorometer (Varian) at pH 7, using an excitation wavelength of 282 nm and an

emission wavelength of 332 nm. Calibration was performed using a standard curve prepared under the same conditions. Surface chemical composition of pristine and grafted fibers was assessed by X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) using an Escalab 250Xi system (Thermo Fisher Scientific).

5.6 Authorship contribution statement

Manel Mebarki: Conceptualization, Validation, Formal analysis, Investigation, Data Curation, Visualization, Writing - Original Draft.

Mathieu Lapointe: Conceptualization, Methodology, Validation, Formal analysis, Investigation, Resources, Data Curation, Writing, Review & Editing, Visualization, Supervision, Project administration, Funding acquisition.

5.7 Declaration of Competing Interest

M.L. has applied for a patent on the use of fibre-based materials for water treatment. The remaining authors declare no competing interests.

5.8 Acknowledgments

The authors acknowledge support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) Discovery Grants program.

CONCLUSION

La problématique du traitement des eaux usées pétrochimiques constitue un défi environnemental majeur en raison de la complexité et la toxicité intrinsèque et de la persistance des contaminants présents, tels que les matières colloïdales, les composés organiques dissous et, particulièrement, les acides naphthéniques (NA), et des impacts potentiels de ces rejets sur les écosystèmes aquatiques et la santé humaine. Ce mémoire avait pour objectif principal d'explorer une méthode innovante basée sur la combinaison de polymères synthétiques de type polyacrylamide (PAM) et des fibres cellulosiques fonctionnalisées par greffage de fer, afin d'améliorer significativement l'efficacité du traitement de ces effluents, en comparaison aux fibres non greffées et aux procédés conventionnels. À travers une série rigoureuse d'expériences de floculation (jar tests) et d'analyse, cette étude a mis en évidence le potentiel remarquable de cette méthode.

Les résultats obtenus dans ce travail mettent particulièrement en évidence l'efficacité accrue des systèmes floculants combinant polyacrylamide (PAM) et fibres cellulosiques fonctionnalisées par greffage de fer comparativement aux procédés basés uniquement sur des PAM seuls. En effet, l'étude comparative approfondie des performances de PAM cationiques et du PAM anionique a permis d'identifier clairement les avantages et les limites spécifiques à chaque type de polymère ainsi que l'apport significatif des fibres greffées à leur efficacité. Les PAM cationiques, généralement reconnus pour leur efficacité dans la neutralisation des charges négatives des contaminants colloïdaux et organiques, ont vu leurs performances encore renforcées en présence des fibres greffées. En effet, l'intégration des fibres fonctionnalisées a permis aux PAM cationiques d'atteindre des niveaux d'élimination de carbone organique total (COT) et des acides naphthéniques (NA) nettement supérieurs à ceux observés lorsque ces polymères étaient utilisés seuls.

À l'inverse, le PAM anionique a affiché une performance nettement moins satisfaisante en absence de fibres fonctionnalisées, principalement à cause de leur incapacité à interagir efficacement avec des contaminants chargés négativement présents dans les eaux usées

pétrochimiques. Cette limitation a été clairement mise en évidence par les résultats expérimentaux obtenus dans cette étude : en effet, l'utilisation exclusive de PAM anionique sans aucune fibre a conduit à une turbidité élevée de 99.9 NTU. Même en présence de fibres non greffées, la performance du a-PAM s'est révélée insuffisante, atteignant une turbidité intermédiaire réduite à seulement 30.5 NTU. C'est précisément sur ce point que le greffage des fibres cellulosiques a apporté une contribution particulièrement significative, permettant d'atteindre une turbidité plus faible de 11.45 NTU. En effet, la fonctionnalisation des fibres par greffage de fer a permis de pallier cette limitation majeure du PAM anionique, en lui offrant des sites d'adsorption actifs capable de piéger les colloïdes et les composés organiques dissous, et ainsi améliorer sensiblement sa performance globale. Ce phénomène d'amélioration notable des performances du a-PAM grâce au greffage constitue une belle avancée, illustrant l'intérêt d'associer des polymères traditionnellement moins efficaces à des supports fibreux modifiés pour élargir leur champ d'application et renforcer leur efficacité.

L'importance cruciale de la synergie entre les dosages des fibres greffées et des PAM constitue également un résultat majeur de cette étude. L'optimisation précise de ces concentrations est essentielle afin de maximiser les performances de traitement, tout en évitant les effets néfastes associés au surdosage, tels que la restabilisation des contaminants et la détérioration des floccs. Dans ce cadre, les conditions optimales identifiées, situées entre 200 et 250 mg/L de fibres greffées et de faibles concentrations en c-PAM 3 (1 à 2 mg/L), ont permis d'atteindre des performances remarquables, allant jusqu'à 66 % d'élimination des acides naphthéniques et entre 55 et 66 % pour le carbone organique total. Ces résultats confirment ainsi clairement que l'équilibre entre les doses de fibres et de polymères constitue un paramètre décisif dans l'efficacité du procédé global, un aspect souvent sous-estimé dans les approches classiques, mais mis en lumière de façon convaincante dans cette étude.

Par ailleurs, les fibres greffées et non greffées ne se contentent pas d'améliorer les performances quantitatives des traitements, mais renforcent également qualitativement la robustesse des floccs formés. Cette amélioration se traduit par une résistance mécanique accrue à la compression, facilitant ainsi considérablement les opérations subséquentes de séparation

et de déshydratation des boues (Mebarki et al., 2025). En comparaison aux procédés conventionnels, ces fibres offrent donc un double avantage fonctionnel : améliorer à la fois l'efficacité immédiate de traitement et la facilité de gestion à long terme des boues générées.

Enfin, au-delà des résultats techniques, cette étude met en exergue la valeur ajoutée du recours à des matériaux issus de ressources renouvelables, telles que le papier recyclé. Ce choix stratégique offre une alternative concrète aux procédés traditionnels fortement consommateurs de produits chimiques, souvent coûteux et écologiquement problématiques. Cette stratégie se révèle donc particulièrement pertinente et avantageuse dans un contexte industriel où l'efficacité, et l'adaptabilité technologique constituent des impératifs incontournables.

En conclusion, ce travail a permis d'apporter des contributions notables, notamment en démontrant clairement le potentiel supérieur des fibres en général et des fibres greffées en particulier, combinée à des polymères pour le traitement avancé des eaux usées pétrochimiques qui à ce jour représente une des eaux usées les plus difficiles à traiter. La valorisation optimale de ces synergies fibre-polymère offre une voie prometteuse vers une meilleure gestion des effluents industriels complexes, permettant de concilier efficacement performances élevées, réduction des impacts environnementaux et amélioration de la gestion opérationnelle des boues produites. Ces résultats constituent une base solide pour l'intégration future de cette technologie dans les procédés industriels existants.

RECOMMANDATIONS

Au regard des résultats obtenus dans le cadre de cette étude, plusieurs recommandations peuvent être formulées en vue d'approfondir et d'étendre les travaux de recherche lors d'un futur programme doctoral. Celles-ci concernent à la fois l'exploration de nouveaux types d'eaux usées, l'utilisation d'autres sources de fibres, la diversification des approches de fonctionnalisation, ainsi que l'adaptation fine des conditions opératoires aux caractéristiques spécifiques de chaque matrice.

Élargissement aux eaux usées complexes et non traitées

L'une des pistes les plus prometteuses réside dans l'application de la technologie développée à des effluents industriels fortement chargés, notamment ceux qui n'ont jamais fait l'objet d'un prétraitement. Les essais préliminaires menés sur des eaux contenant des hydrocarbures ou sur des lixiviats ont révélé un potentiel de clarification très élevé, atteignant jusqu'à 98 % de réduction de turbidité dans certains cas, avec une combinaison adaptée de fibres, de polymère et ajout de petite dose de coagulants pour certains. Ces résultats, bien qu'encore exploratoires, confirment la robustesse et la flexibilité du procédé, tout en soulignant la nécessité d'un travail approfondi de caractérisation et d'adaptation pour chaque nouvelle matrice. Il est donc recommandé de cibler les eaux usées provenant d'industries variées (raffineries, textiles, agroalimentaire, etc.) en conditions réelles, afin d'évaluer l'efficacité des fibres fonctionnalisées en présence de charges organiques, colloïdales ou toxiques diverses.

Exploration d'autres types de fibres

Parallèlement au papier issu d'eucalyptus utilisé dans cette étude, d'autres sous-produits cellulosiques représentent des ressources peu coûteuses et potentiellement efficaces pour le traitement des eaux. Le carton recyclé, par exemple, a déjà fait l'objet d'essais exploratoires dans le laboratoire et a montré des propriétés de floculation intéressantes. Il serait pertinent d'élargir cette approche à d'autres matériaux en évaluant leur aptitude à être greffés et à

fonctionner dans des contextes variés. Cette orientation permettrait de développer une stratégie d'économie circulaire encore plus aboutie, intégrant pleinement les enjeux de valorisation des déchets.

Diversification des techniques de fonctionnalisation

Si le greffage de fer a démontré une efficacité remarquable, il n'en demeure pas moins qu'il représente une approche parmi d'autres. Dans un contexte de doctorat, il serait souhaitable d'expérimenter d'autres agents de fonctionnalisation, notamment des métaux ou oxydes alternatifs (aluminium, manganèse), ou encore des groupements organiques spécifiques permettant de cibler des contaminants particuliers. Ces modifications pourraient élargir le champ d'application de la technologie à des composés aujourd'hui difficilement capturés, comme certains micropolluants organiques ou des métaux lourds.

Optimisation des paramètres opératoires en fonction de la matrice

Les résultats obtenus ont clairement démontré que les performances de floculation sont fortement influencées par les conditions opératoires : type et dose de polymère, nature et concentration des fibres, temps de mélange rapide et lent, etc. Ces paramètres doivent impérativement être adaptés à chaque type d'eaux usées, en fonction de sa composition physico-chimique. Une même combinaison ne peut être généralisée à toutes les matrices. Par conséquent, un travail expérimental en laboratoire est recommandé afin d'identifier les conditions opératoires optimales spécifiques à chaque type d'effluent en fonction de ses caractéristiques.

Évaluation à l'échelle pilote et environnement réel

Enfin, pour confirmer la transférabilité des résultats, il est recommandé de poursuivre les essais à l'échelle pilote dans des conditions plus représentatives du terrain. Cette démarche inclut l'intégration des fibres fonctionnalisées dans des systèmes de traitement existants ou en unité

mobiles, leur résistance mécanique au cisaillement, la régénération ou le recyclage des fibres, et la gestion des boues produites.

ANNEXE I

COURBES D'ÉTALONNAGE POUR LA MESURE DU CARBONE ORGANIQUE TOTAL (COT)

La quantification du carbone organique total (COT) a été réalisée à l'aide d'un analyseur de type TOC (Total Organic Carbon Analyser), basé sur la méthode de différenciation entre le carbone total (CT) et le carbone inorganique (IC), selon la relation suivante :

$$COT = CT - IC \quad (A-I.1)$$

Pour cela, deux courbes d'étalonnage distinctes ont été générées à partir de solutions mères préparées comme suit

- **Solution mère pour le CT (carbone total) :** 2.128 g de phtalate acide de potassium ($C_8H_5KO_4$) ont été dissous dans une fiole jaugée de 1000 mL avec de l'eau ultrapure. Cette solution présente une concentration de 1000 mg/L.
- **Solution mère pour le IC (carbone inorganique) :** 4.418 g de carbonate de sodium anhydre (Na_2CO_3) et 3.5 g de bicarbonate de sodium ($NaHCO_3$) ont été dissous dans une fiole jaugée de 1000 mL avec de l'eau ultrapure. La solution obtenue a également une concentration de 1000 mg/L.

À partir de ces solutions mères, des solutions étalons ont été préparées aux concentrations suivantes pour chaque type de carbone : 10, 20, 40, 80, 100 mg/L

Les aires sous les courbes obtenues pour chaque standard ont été mesurées automatiquement par l'appareil, permettant de tracer les courbes de calibration suivantes

Calibration CT – Carbone Total

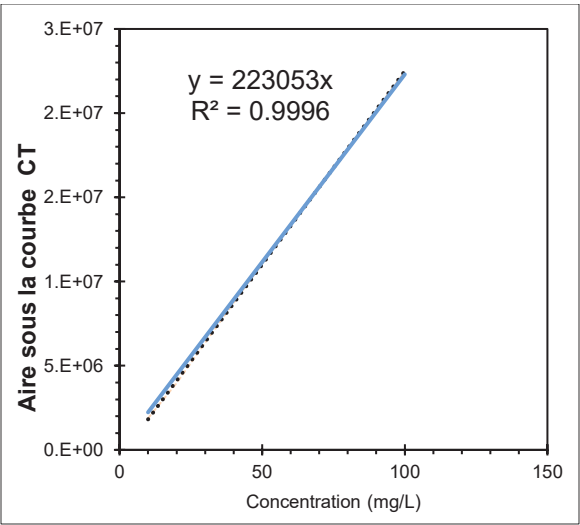
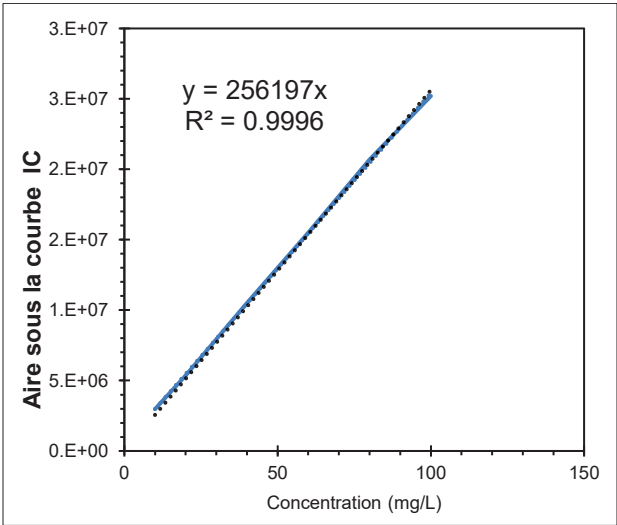


Figure A- I-1 Courbe de calibration pour le carbone total

L'équation de la droite d'étalonnage est : $y = 223053x$ avec $R^2 = 0.9996$ (A-I.2)

Où y est l'aire sous la courbe et x la concentration en mg/L

Courbe de calibration – Carbone Inorganique



FigureA-I-2 Courbe de calibration carbone inorganique

L'équation de la droite d'étalonnage est : $y = 256197x$ avec $R^2 = 0.9996$ (A-I.3)

Ces courbes ont été utilisées par l'analyseur pour interpoler les aires mesurées dans les échantillons réels et calculer les concentrations respectives CT et IC, permettant ainsi d'obtenir le COT par soustraction.

ANNEXE II

COURBE DE CALIBRATION POUR LA DETERMINATION DES ACIDES NAPHTÉNIQUES (NA) PAR FUORESCENCE

La concentration en acides naphténiques (NA) dans les échantillons a été déterminée par fluorescence moléculaire, en utilisant un fluoromètre paramétré à une longueur d'onde d'excitation de 282 nm et une longueur d'onde d'émission de 332 nm, conformément aux conditions expérimentales décrites dans la littérature pour les extractions issues des sables bitumineux.(Mohamed et al., 2008)

Préparation de la solution mère et des standards

Un échantillon commercial d'acide naphténiq ue dérivé des sables bitumineux, d'une concentration initiale de 920 g/L, a été préalablement dilué pour obtenir une solution mère de 46 g/L. à partir de cette solution, des dilutions ont été préparées afin d'obtenir des concentrations standards de : 10, 20, 40, 60, 80, 100 mg/L.

Le pH de chaque solution standard a été ajusté à 7.0 avant mesure, afin d'uniformiser les conditions de fluorescence et d'assurer la stabilité des espèces ionisées.

Conditions de mesure

Les mesures ont été réalisées en cuve quartz à température ambiante. Chaque standard a été analysé trois fois pour assurer la reproductibilité. L'intensité de fluorescence mesurée est proportionnelle à la concentration en NA, ce qui permet d'établir une courbe de calibration fiable dans l'intervalle de 10 à 100 mg/L.

Résultats – courbe d'étalonnage

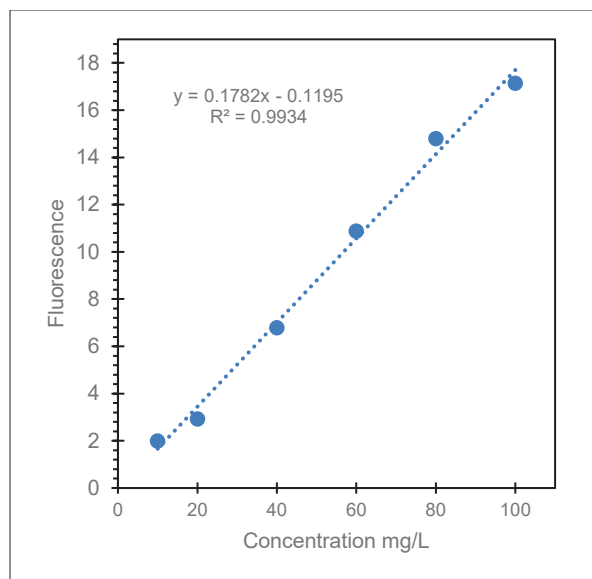


Figure A-II-1 Courbe de calibration représentant la fluorescence en fonction de la concentration en acide naphténiqes

L'équation de la droite d'étalonnage est $y = 0.1782x - 0.1195$ avec $R^2 = 0.9934$ (A-II.1)

Où y correspond à l'intensité de fluorescence mesurée, et x à la concentration en acide naphténiqes en mg/L. Cette excellente linéarité est conforme aux résultats présentés par Mohamed et al. (2008), qui ont démontré l'efficacité de la fluorescence pour la quantification semi-quantitative des NA dans les eaux de procédés pétroliers. (Mohamed et al., 2008)

La méthode de fluorescence offre une sensibilité adaptée à la gamme de concentrations rencontrées dans les effluents pétrochimiques. Elle constitue une alternative rapide et non destructive aux méthodes les plus lourdes comme la spectrométrie de masse, tout en permettant une détection fiable des acides naphténiqes sur une gamme de 10 à 100 mg/L, avec une limite de détection estimée à 1 mg/L. (Mohamed et al., 2008)

ANNEXE III

ARTICLE SCIENTIFIQUE PUBLIÉ DANS NPJ CLEAN WATER (FACTEUR D'IMPACT : 12,3)

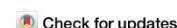
Fibrous super-bridging agents simultaneously improve contaminants removal and sludge dewatering via a very compact three-in-one process. Manel Mebarki, Gabriella Joge Ngale & Mathieu Lapointe, 2025, <https://doi.org/10.1038/s41545-025-00445-7>



**Fibrous
super-bridging agei**

<https://doi.org/10.1038/s41545-025-00445-7>

Fibrous super-bridging agents simultaneously improve contaminants removal and sludge dewatering via a very compact three-in-one process

Manel Mebarki^{1,2}, Gabriella Joge Ngale^{1,2} & Mathieu Lapointe¹ ✉

A compact three-in-one water treatment process, combining a flocculant, a fibrous super-bridging agent, and a screen-based floc retention system, simultaneously improves water treatment and sludge dewatering. The presence of fibrous materials allows for the formation of very large flocs, efficient floc separation via screening (without settling), and sludge dewatering through a compact press-filter system. The implementation of this three-in-one process is possible due to the formation of very large fiber-based flocs. The sludge containing fibers was subsequently dewatered using a screen-based press filter without further chemical addition. The use of fibers also significantly improved the removal of total organic carbon, nanoplastics, and microplastics. This three-in-one process could be used for decentralized water treatment in drinking water and wastewater applications in small cities, marginalized communities, and developing countries. The compact process, which also performs sludge dewatering, would reduce the risks associated with mismanaged sludge to the environment and human health.

Many populations around the globe still lack access to safe drinking water and proper infrastructure for wastewater treatment and management^{1,2}. In industrialized countries, urban systems for water transit and sanitation are sewer-based and supported by advanced technologies involving chemistry, microbiology, physical and bioprocess engineering, as well as significant investments from high-income governments. The United Nations Sustainable Development Goals report that more than half of the global population cannot afford proper sanitation and drinking water systems³. This global issue is exacerbated in low- and middle-income countries, where infrastructure dedicated to water management (treatment and transit) is often prohibitively expensive⁴. Consequently, several developing countries and regions, as well as remote and marginalized communities would greatly benefit from a non-sewered sanitation system combined with decentralized, simple, robust, and inexpensive water treatment processes. Drinking water, wastewater, and sludge management applications must all be prioritized to ensure public health in these regions and to reduce endemic disease⁵. For many small and remote communities in Africa and North America, the high cost of centralized treatment infrastructure limits access to drinking water^{6,7}. In Canada, drinking water primarily comes from treated surface water (>70%)⁸, which generally requires extensive and costly treatment to

sufficiently reduce the microbiological and toxicological risks. The issue of water access primarily affects remote and Indigenous communities. Conventional treatment for drinking water production via surface water involves coagulation-flocculation and chemicals such as metal salts, which require careful monitoring for proper operation. Studies on decentralized treatment emphasize the need for low-maintenance and low-cost technologies in remote communities⁹. However, many existing systems, including low-energy filtration and decentralized coagulation, often require multiple steps and sequential tanks, posing challenges for scalability¹⁰. In contrast, a three-in-one reactor integrating coagulation-flocculation, settling, and sludge dewatering in a single compact unit would minimize the operational complexity. This integrated system achieves high colloid removal and could provide a cost-effective, robust solution for safe water production in small and remote communities.

The performance of coagulation requires constant monitoring and qualified operators and is sensitive to pH, temperature, dose, and mixing time/intensity, among other factors. Consequently, metal-based coagulants cannot be easily implemented in decentralized systems for remote communities. Decentralized, simpler, smaller, more autonomous, and more robust processes could be cheaper than centralized water treatment plants in

¹University of Québec – École de technologie supérieure, Montréal, QC, H3C 1K3, Canada. ²These authors contributed equally: Manel Mebarki, Gabriella Joge Ngale.
✉ e-mail: mathieu.lapointe@etsmtl.ca

the long term and could be democratized for drinking water production¹¹ to be accepted and used by communities in need that are currently affected by water scarcity and untreated wastewater. However, practical considerations must be addressed for full-scale applications. In high-turbidity waters, the screen clogging and maintenance might increase the operation complexity. Periodic backwashing or cleaning would be necessary to maintain optimal performance.

This work proposes a new decentralized water treatment process that combines fibrous super-bridging agents, cationic flocculants, and screen-based press filters. The objective of this approach is to provide an efficient, compact, and affordable three-in-one solution for small, remote, or marginalized communities, as well as an alternative to conventional centralized plants that require three sequential tanks (coagulation-flocculation (1), settling (2), and sludge dewatering (3)) for the treatment of surface water. The same proposed three-in-one reactor was used for floc removal and sludge dewatering. The combination of super-bridging agents with cationic flocculants^{12–18} can contribute to improving the removal of contaminants present in water through a simple separation process using coarse screens. The optimal flocculant and super-bridging agent concentrations were first determined, as well as the optimal screen mesh size for floc separation and sludge dewatering. The turbidity was measured for each condition tested. The results showed that the addition of fibers drastically improved the floc removal¹⁵. No metal-based coagulants such as alum were employed¹⁵; the flocculant was synergistically combined with fiber-based super-bridging agents to ensure an efficient floc formation and separation via settling and screening (up to 99% turbidity removal). The impact of fibers was also evaluated on the removal of i) total organic carbon, ii) nanoplastics, and iii) microplastics (polyethylene microbeads and polyester microfibers) all of which showed considerable improvement compared to the conventional treatment without fibers^{17,18}. To evaluate the versatility and robustness of the fibrous treatment, two water samples from the Democratic Republic of the Congo (DRC) were also tested. It is crucial to note that these surface water samples exhibited significantly higher turbidity levels than those in Canada. Therefore, adapting the process to the African context is essential for effective treatment while maintaining a simplified and cost-effective approach.

Results and discussion

Impact of super-bridging agents on conventional and emerging contaminants

Conventional treatment required large amounts of both metal-based coagulants (e.g., alum) and synthetic flocculants (e.g., PAM) (Fig. 1a; a1), whereas, fiber-based treatment only required PAM (Fig. 1b; b1). In the context of decentralized water treatment, it is preferable to avoid the use of metal-based coagulants, which require monitoring, pH control, and precise dosage adjustment to maintain process performance. Herein, the separation process was designed to be more robust and simpler by using PAM without metal-based coagulant. Compared to conventional treatment (PAM, no fibers; Fig. 1a), the flocs formed by combining fibers and PAM (Fig. 1b) were approximately 7–10 times larger, depending on the concentration of PAM and fibers^{19,20}. Fig. 1c, d show the impact of fiber-based superbridging agents on the removal of total organic carbon, turbidity, nanoplastics, and microplastics (after floc separation with a 500 µm screen mesh). When fibers were synergistically combined with a cationic flocculant (200 mg fibers/L and 1.2 mg c-PAM3/L), the removal of all contaminants was drastically improved. For turbidity, removal increased from 39% without fibers to 94% with fibers, while nanoplastic removal increased from 20% to 72%. As described elsewhere^{21,22}, microplastic and nanoplastics could be used to model and predict virus removal during filtration. Consequently, based on the nanoplastic and microplastic removals shown in Fig. 1d, the screen-based separation method could be used in combination with fibers for drinking water application to offer some protection against viruses and other pathogens^{23–25}. For microplastics, the impact of fiber-based superbridging agents was also noticeable and statistically significant: removal increased from 49% to 91% for polyethylene and from 64% to 95% for polyester. Such improvements using fibers have also been observed

elsewhere²⁶. Cellulose fibers act as super-bridging agents due to their effective length, large surface area, high aspect ratio, and functional groups capable of interacting with both particles in suspension and flocculants (e.g., cationic PAM). When fibers are added, they serve as a structural framework within the solution, providing additional sites for particle attachment, which facilitates the formation of larger and more stable flocs. The cationic PAM is attached to the negatively charged sites on both the cellulose fibers and suspended particles, acting as a bridging structure. Such fiber-based bridging agent was also reported before for increasing the overall size and stability of the flocs²⁷. Similar improvements in turbidity and microplastic removal were previously observed for settling treatment when fibers were used in the aggregation process^{27,28}.

Robustness of super-bridging agents for different water types

The impact of PAM concentration was tested during floc separation via settling (3 min) versus pressing (500 µm screen mesh) (Fig. 1b; b2). The screen-based pressing system replaced the settling unit and was also used as an alternative to membrane filters or granular filters for drinking water applications (objective <0.3 NTU, as required by regulations in North America; Fig. 1b; b5). The replacement of membrane or granular filters with a coarse screen mesh was possible due to the formation of very large fiber-based flocs. The drinking water minimal standard (<0.5 NTU) was not achieved when screens were used in combination with flocculant alone (conventional treatment; no fibers). When the PAM concentration was insufficient to initiate aggregation (<0.2 mg PAM/L), the impact of fibers was not noticeable, and both treatments provided low turbidity removal (<8%). However, at a concentration of 0.4 mg PAM/L, the presence of fibers significantly improved floc formation and turbidity removal up to 85%, compared to only 40% without fibers. This improvement with fibers was observed for both floc separation methods: settling (Fig. 2a) and pressing (Fig. 2b). When the concentration of PAM was increased to 0.8 mg/L, both treatments resulted in slightly lower turbidity removal of 78% and 33%, with and without fibers, respectively. This decrease was attributable to temporary charge reversal caused by the cationic PAM^{29–31}. At concentrations of 1.2, 2.0, and 3.0 mg PAM/L used with fibers, the residual turbidity after settling was 0.39, 0.46, and 0.39 NTU, respectively (93–94% removal). For the same respective PAM concentrations without fibers, turbidity removal drastically dropped to 41–45%. Based on a paired *t*-test, there was no statistically significant difference between the settled and pressed turbidity values. For suboptimal PAM concentrations (<0.4 mg/L), contrary to settling, the pressing system captured more (smaller) flocs and partially compensated for the poor aggregation due to insufficient PAM concentration in the system. The concentration of 1.2 mg PAM/L was chosen as the optimal value under which all contaminant removal curves reached a plateau.

The same steps were conducted on Democratic Republic of the Congo B (DRC B) water (Africa) to investigate the impact of PAM concentration during floc separation after settling (3 min) and pressing (200 µm screen mesh). At a lower PAM concentration (0.2 mg/L), the presence of fibers showed no significant impact, reducing turbidity by only 30% after 3 min of settling, indicating poor floc formation. Pressing only achieved a 24% reduction, suggesting that small flocs passed through the mesh. A noticeable impact of fibers was observed at 0.8 mg PAM/L or higher (Fig. 2c, d). At 2 and 3 mg PAM/L, turbidity with fibers was 34 and 23 NTU after 3 min of settling, respectively, and 38 and 23 NTU after pressing. Differences between settling and screening were not statistically significant when fibers were used, as large flocs were effectively removed via both separation methods. Considerably higher turbidities were measured without fibers: 62 and 33 NTU after 3 min of settling, and 55 and 37 NTU after pressing, with 2 and 3 mg PAM/L, respectively. To reach the lowest residual turbidity, 3 mg PAM/L was selected for further investigations on DRC B water.

The difference in treatment effectiveness between DRC-B and synthetic water could be explained by the respective raw water turbidity (6 NTU vs. 589 NTU). With higher turbidity, aggregation systems usually required more coagulant and flocculant – hence forming large floc without the need of fibers or other promoting agents such as ballast media^{27,28}.

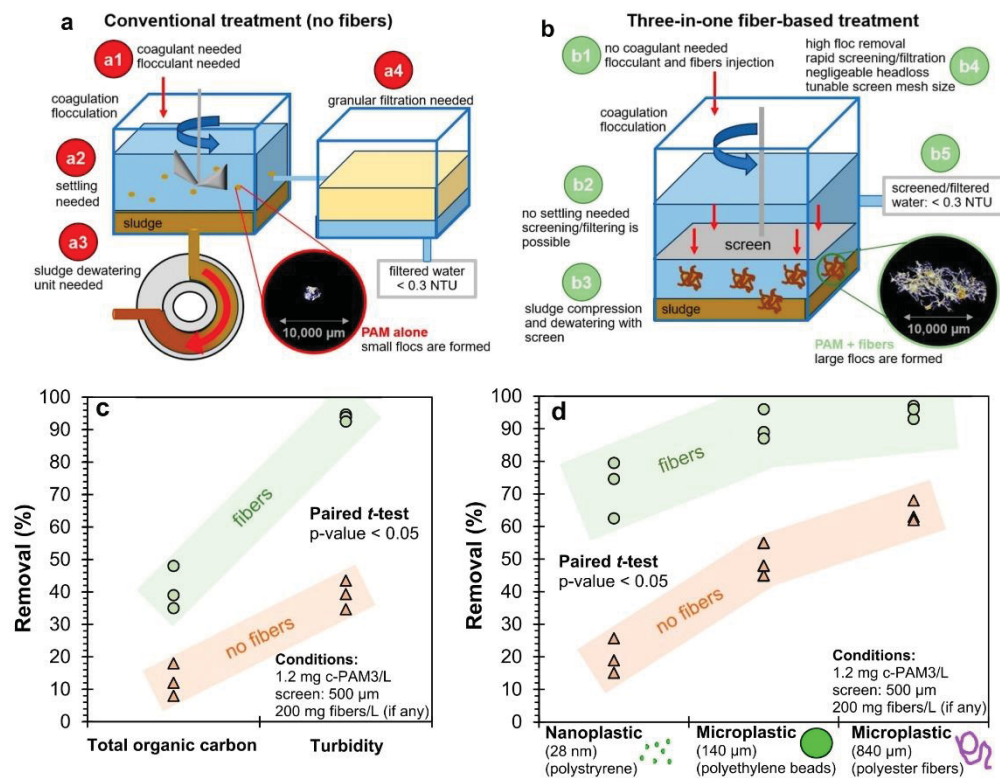


Fig. 1 | Contaminant removal improvement using fibers. **a** Conventional treatment combining polyacrylamide and screening; the flocs formed are too small to be screened and filter press can't be used to dewater the sludge. **b** Fiber-based treatment combining polyacrylamide, fibers, and screening (filter press); the flocs formed are very large and are screenable (filter presses; tested mesh sizes of 20–5000 μ m), while filter press can be used to dewater the sludge. **c** Impact of fibers on the removal of total organic carbon and turbidity after screening. **d** Impact of fibers on the removal of nanoplastics, polyester fibers, and polyethylene beads after screening. Treatment

conditions (c and d): 0.4–3.0 mg c-PAM 3/L, 200 mg fibers/L, 4 min of flocculation at pH 7.0 ± 0.3 , temperature of 21°C ; flocs were removed during pressing with a 500 μ m screen mesh (lab-scale press filter). Raw water turbidity: 6.0 ± 0.5 NTU. Colored areas (orange and green) are included as eye guides showing the minimal and maximal values (triplicate experiments). The difference between fibrous and conventional treatment (no fibers) was statistically significant (p -value < 0.05; c and d). Tested waters: St Lawrence River (c) and synthetic water (d).

Reducing the microbiological risk for decentralized applications

The optimal PAM concentration of 1.2 mg/L (synthetic water) was used to determine the optimal fiber concentration. The lowest turbidity (0.39 NTU) after settling and pressing was observed at 200 mg of fibers/L (Fig. 3a, b). This value complies with North American standards for drinking water and the design guide for drinking water production facilities, which requires post-filtration turbidity to be less than 0.5 NTU. This suggests that further improvements to the system or the use of smaller screen mesh sizes (e.g., 50 or 100 μ m) could potentially achieve higher drinking water quality (e.g., <0.3 NTU for granular filtration, *Surface Water Treatment Rules* (SWTRs), USEPA) to reduce the microbiological risk for decentralized applications in marginalized communities and developing countries.

The mesh sizes were modified using the optimal concentrations of PAM and fibers (1.2 mg/L of PAM; 200 mg/L of fibers). The mesh size had minimal influence on turbidity (p -value: 0.37) (Fig. 3c). This could be explained by the large size of the flocs formed, allowing separation even with larger screen mesh sizes (0.45 NTU with a 2000 μ m screen). For these tested conditions, screen mesh sizes of 50 and 20 μ m reduced the turbidity to 0.32 NTU and 0.20 NTU respectively (Fig. 3d). It is hypothesized that smaller

meshes were required to remove colloids that were not aggregated into the large fiber-based flocs. The 50 μ m mesh in this study acts as a polishing filter to achieve turbidity levels below 0.3 NTU by capturing residual colloids. For such application with finer mesh size, as the turbidity is already low (0.39 NTU), minimal clogging is expected. For scalability, fine-mesh filtration in larger systems may face challenges related to maintenance and operational costs. However, in low-turbidity contexts, a low particle flux suggests less maintenance. Incorporating automated backwashing or using durable mesh materials could further support scalability, durability and performance. Future studies are needed to assess the mesh durability under continuous flow conditions. Optimization of mixing conditions (time and intensity) could also be performed to minimize shear stress on flocs and prevent floc breakage. According to the USEPA, the RQEP (Regulation on the Quality of Drinking Water in Canada), and the drinking water design guide (Ministry of the Environment, Quebec, Canada), after filtration, each filter should have a turbidity of less than 0.5 NTU, and water entering the distribution network should have a value below 1 NTU³². Although the results are compliant, they do not qualify for all the removal credits for *Giardia*, *Cryptosporidium*, and viruses³³. For granular filtration, it is advised

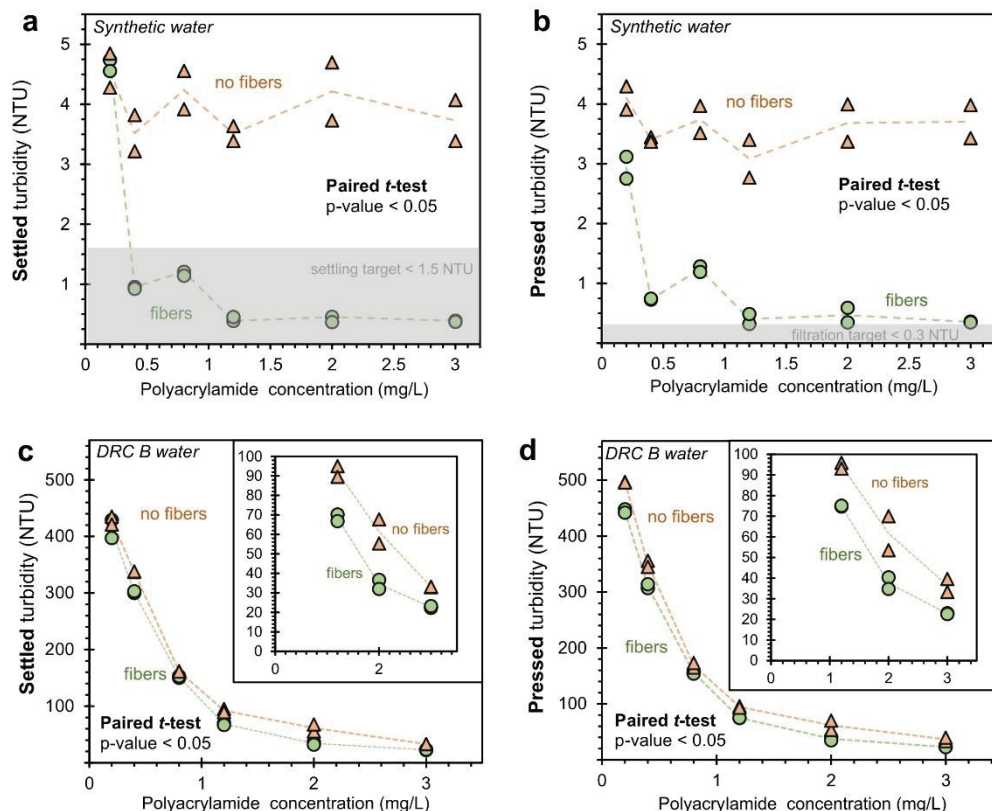


Fig. 2 | Performance of fibers on different water types. Impact of fibers on turbidity removal after 3 min of settling (synthetic water (a); DRC B water (c); cf Table 1). Impact of fibers on turbidity removal after pressing (synthetic water (b); DRC B water (d)). A 500 μm and a 200 μm screen mesh size were used for synthetic water and DRC B water, respectively. Aggregation conditions: 0.4–3.0 mg c-PAM 3/L, 200 mg fibers/L, 4 min of flocculation at pH 7.0 ± 0.3 , temperature of 21°C (a–d). Synthetic water

turbidity: 6 NTU (a, b). DRC B water turbidity: 589 NTU (c, d). Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments. Grey areas show the industry standard after treatment: <1.5 NTU after settling and <0.3 NTU after pressing (screened-based press filter used as an alternative to membrane or granular filtration). The difference between fibrous and conventional treatment (no fibers) was statistically significant (p -value < 0.05 ; a–d).

to achieve a turbidity lower than 0.3 NTU for better removal credits from a safety standpoint, and ideally to achieve a turbidity below 0.15 NTU to obtain all removal credits³⁴. For drinking water applications, the fiber and screen-based separation process presented in this study could be combined with disinfection to gain additional removal credits. Improving the PAM and fiber synergy and selecting the proper screen mesh size to achieve turbidity below 0.3 NTU would also be necessary to reduce the amount of chlorine needed for providing safer drinking water and reducing disinfection by-product formation^{35,36} in marginalized communities and developing countries.

Performances of fibers with different physicochemical treatments

Different PAMs with varying charge densities and molecular weights were tested to determine the optimal flocculant properties for forming very large fiber-based flocs. After settling, the turbidity was 0.7, 0.4, 0.7, and 9.9 NTU for c-PAM 4, c-PAM 3, c-PAM 2, and c-PAM 1, respectively (Fig. 4a). No significant difference (p -value > 0.05 , paired t -test) was observed between the settled (3 min) and pressed turbidities (mesh size of 200 μm), except for

c-PAM 1, which showed lower final turbidity of 9.8 NTU and 7.3 NTU after settling and filter-pressing, respectively (Fig. 4b). In contrast to c-PAM 2, c-PAM 3, and c-PAM 4, which have higher charge densities (35% or 55%), the charge density of c-PAM 1 (only 7%) was not sufficient to destabilize and aggregate colloids via electrostatic affinities. Compared to c-PAM 3 without fibers, c-PAM 4 typically provides better floc formation and removal due to its higher molecular weight (cf. Fig. 7). However, when fibers are used as super-bridging agents—drastically promoting floc formation and size—the higher molecular weight provided by c-PAM 4 did not result in better turbidity removal compared to c-PAM 3. Based on the settled and pressed turbidities in Fig. 4b, a minimum charge density of 35% (c-PAM 2) was required to complete colloid destabilization and attachment onto the fiber structure.

Although fibers can be used in a very simple system combining only one flocculant with screen pressing (without settling and filtration), they can also be used in more advanced physicochemical treatments combining metal salts and PAM (both anionic and cationic) (Fig. 4c, d). The impact of alum concentration (0–100 mg dry alum/L) is shown in Fig. 4c, while the impact of more advanced physicochemical treatments on low, moderate,

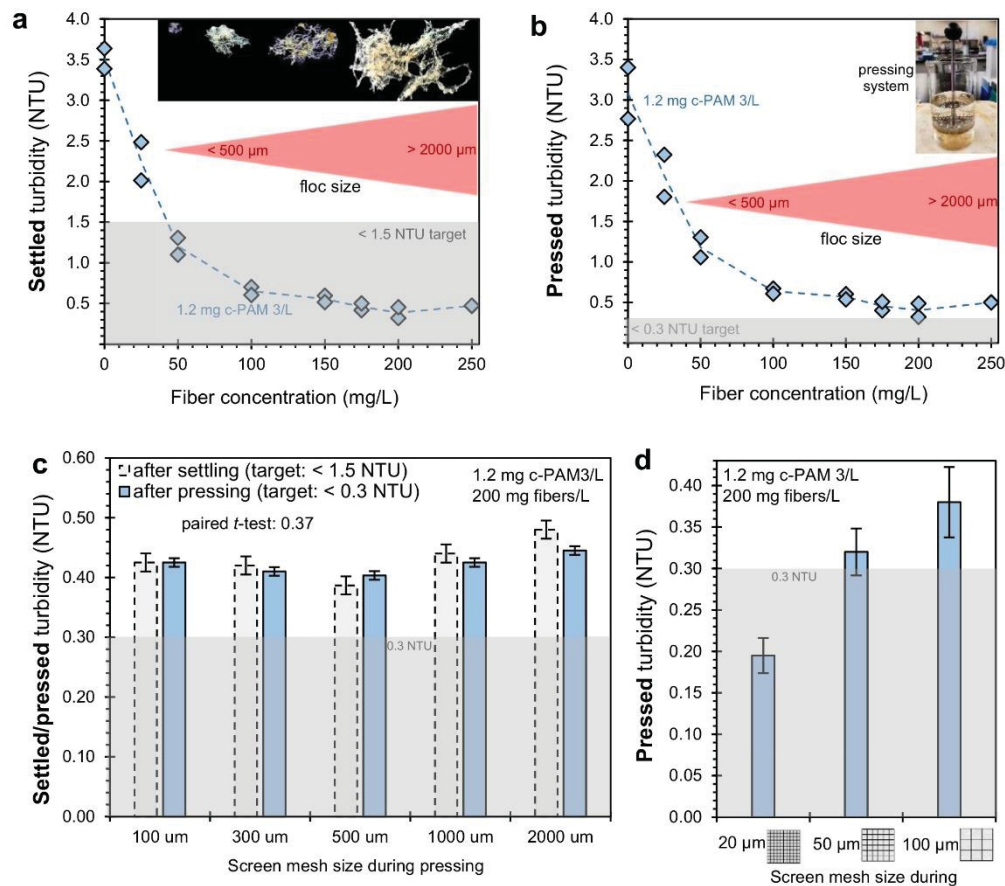


Fig. 3 | Process optimization to reduce the residual turbidity. Impact of fibers concentration on settled turbidity (a, 3 min of settling) and pressed turbidity (b, 500 μm screen mesh). c Impact of the screen mesh size (100, 300, 500, 1000, and 2000 μm) on pressed turbidity. Settled turbidities (no screen was used, grey bars) are shown as a reference. d Impact of smaller screen mesh size (20, 50, and 100 μm) on pressed turbidity. Aggregation conditions (a–d): 1.2 mg c-PAM3/L, 4 min of mixing,

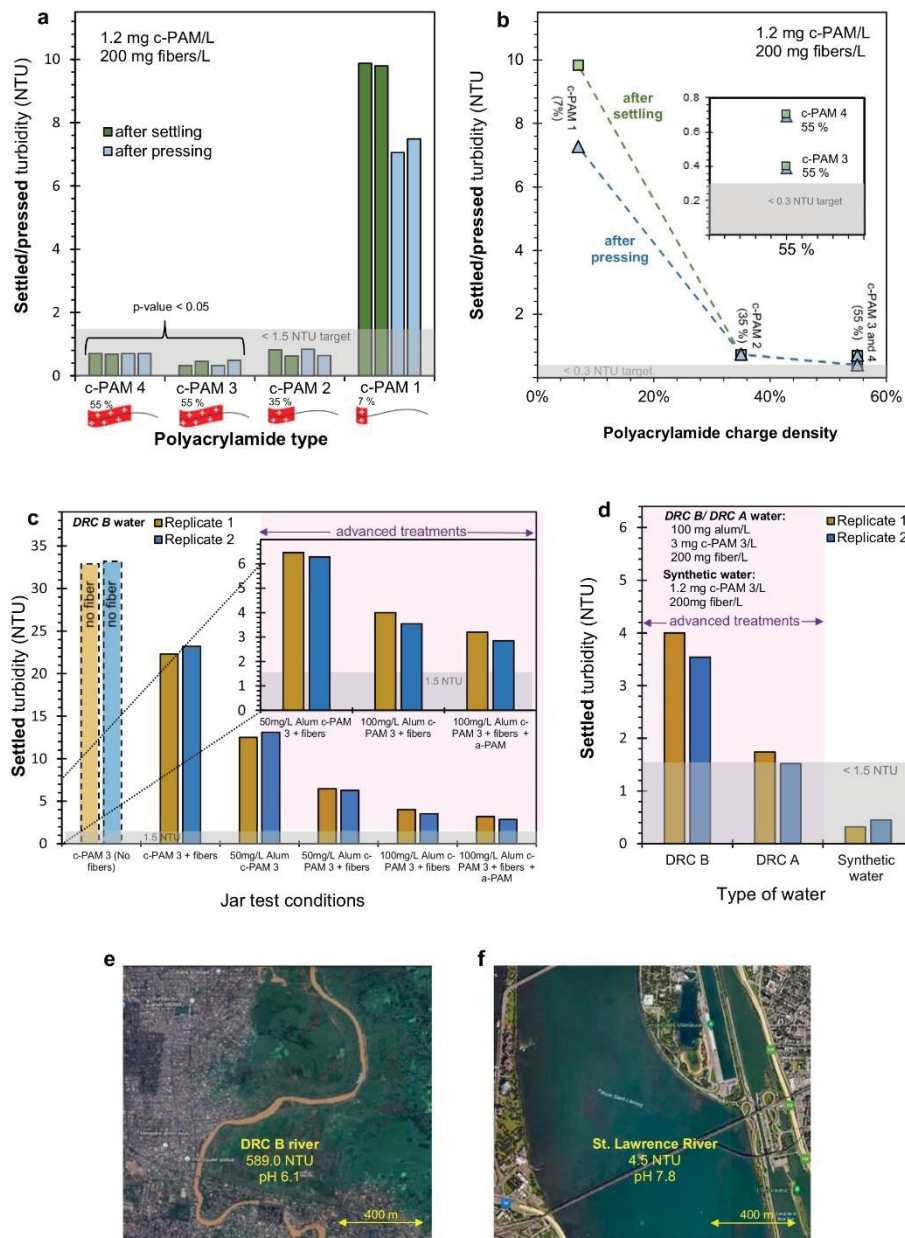
pH 7 ± 0.5 , temperature of 21 °C. Turbidity of synthetic water (a–d): 6.0 ± 0.5 NTU. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments (a, b). Grey areas show the industry standard after treatment: <1.5 NTU after settling and <0.3 NTU after press-filtering. Error bars represent the standard deviation (c, d).

and high turbidity water is shown in Fig. 4d. Such advanced physico-chemical treatment was required to improve aggregation and meet turbidity objectives after settling (<1.5 NTU) for African waters with very high turbidity (589 NTU). Settled turbidities of 3.75 NTU (99.4% removal, raw water: 589 NTU) and 1.63 NTU (98.0% removal, raw water: 78 NTU) were measured for DRC B and DRC A waters, respectively. The enhanced turbidity reduction observed with alum, c-PAM3, and fibers is due to their complementary roles in coagulation-flocculation. Alum neutralizes the negative charges on colloidal particles, allows precipitation of soluble compounds, and initiating aggregation, while c-PAM3 bridges these aggregates into larger flocs. Fibers further stabilize the flocs by providing additional surface area and structural support, forming a dense, resilient network with improved settling properties. This synergistic effect is evident when comparing results: using alum and c-PAM3 alone (50 mg/L alum and 3 mg/L c-PAM3) resulted in an average turbidity of 12.8 NTU. With the

addition of fibers and an increased alum concentration (100 mg/L), turbidity further decreased to 3.75 NTU. These findings highlight the critical role of fibers as bridging agents, significantly enhancing floc formation, size and stability. As shown in Fig. 4d, further optimization efforts are needed to reach the target of 1.5 NTU for DRC B water; for example, pH adjustment, prehydrolyzed coagulants, optimal agitation intensity and/or aggregation time, optimal settling time, and smaller screen mesh sizes could be tested to achieve better water quality^{37–39}. Nonetheless, the fiber-based treatment considerably improved turbidity removal compared to conventional treatment, which resulted in a settled turbidity of 33 NTU.

Reducing polyacrylamide concentrations for drinking water application

Synthetic polymers, such as acrylamide-based polymers, are essential in clarification and remain necessary for the proposed fibrous treatment



herein. However, these synthetic polymers have faced criticism for their i) potential toxicity⁴⁰ (group 2A), ii) clogging effect in membrane/screen, and iii) cost^{41–43}. For implementation in marginalized communities and developing countries, the process needs to be operated at low cost (low operational expenditures), and systemic/heavy process maintenance must be

avoided. Consequently, the PAM concentration was reduced, and the inevitable formation of smaller flocs was compensated for by using a smaller screen mesh (Fig. 5).

The 500 μ m mesh size was effective for a PAM concentration of 0.2 mg/L. Additional tests were conducted for different mesh sizes at both

Fig. 4 | Fibers used with physicochemical treatments. **a** Impact of polyacrylamide type (cf Fig. 7) on settled and pressed turbidity. Paired *t*-test between c-PAM 3 and c-PAM 4; *p*-value < 0.05. **b** Impact of polyacrylamide charge density on settled and pressed turbidity. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments (b). **c, d** Different physicochemical treatments combining alum, c-PAM 3, and a high molecular weight anionic flocculant (a-PAM) for highly and moderately turbid water. Synthetic water: 6 NTU, at pH 7.0 (a, b).

DRC B water: 589, at pH 6.1 (c, d). DRC A water: 78 NTU, at pH 6.7 (d). Aggregation conditions: 4 min of mixing at 21 °C. Floc separation: 3 min of settling or press filtering with a 200 µm screen mesh (a–d). Grey areas show the industry standard after treatment: <1.5 NTU after settling and <0.3 NTU after press-filtering (a–d). **e** Image of DRC B river (high turbidity and low pH and alkalinity). **f** Image of the St. Lawrence River (low turbidity and high pH and alkalinity).

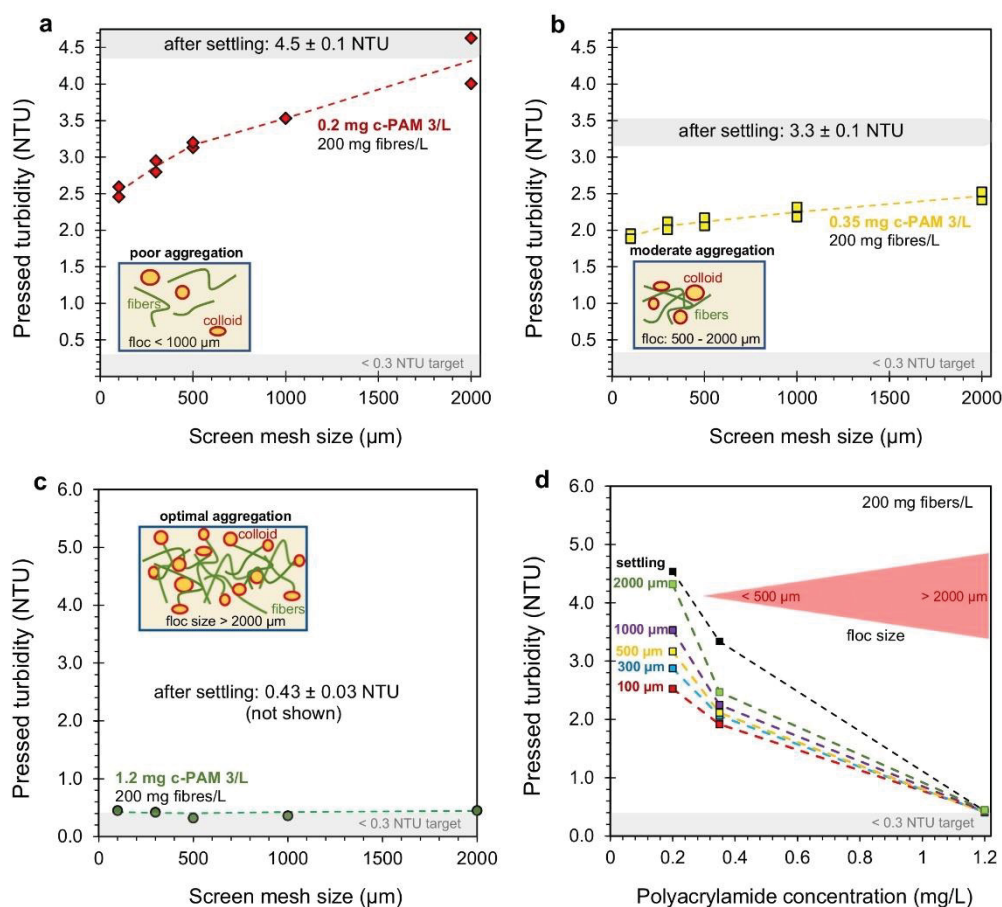


Fig. 5 | Limiting the use of synthetic flocculant for flocs separation via screening. Pressed turbidity with different screen mesh sizes with 0.2 mg c-PAM/L (a), 0.35 mg c-PAM/L (b), and 1.2 mg c-PAM/L (c). **d** Pressed turbidities obtained with different c-PAM concentrations and screen mesh sizes. Settled turbidities in d are shown as a reference (no pressing was performed). Conditions for a–d: 4 min of mixing, pH

7 ± 0.5 , temperature of 21 °C, 3 min of settling (if any), tested screen mesh size: 100, 300, 500, 1000, and 2000 µm. Type of PAM: c-PAM 3. Fiber concentration: 200 mg/L. Turbidity of raw water: 6 ± 0.5 NTU. Dashed lines are included as eye guides connecting average values obtained from duplicate experiments.

0.2 mg/L and 0.35 mg/L PAM concentrations. At this concentration, the floc's size was visibly affected. Turbidity values measured after pressing decreased as the mesh size became finer (Fig. 6a, b). When the PAM concentration was low, the bridging effect between fibers was diminished, leading to smaller and more fragile flocs, a phenomenon also reported in a previous study^{27,44}. However, at 1.2 mg PAM/L, turbidity removal was not

noticeably impacted by the screen mesh size, as the flocs formed were very large and were intercepted by all the tested screen mesh sizes (100–2000 µm; Fig. 6c). The impact of the mesh size and PAM concentration on the turbidity is displayed in Fig. 6d. As the measured turbidities after pressing were still very low, the process could also be used for sludge dewatering. As shown in Fig. 6d, the pressed turbidities were <0.5 NTU, even though the sludge

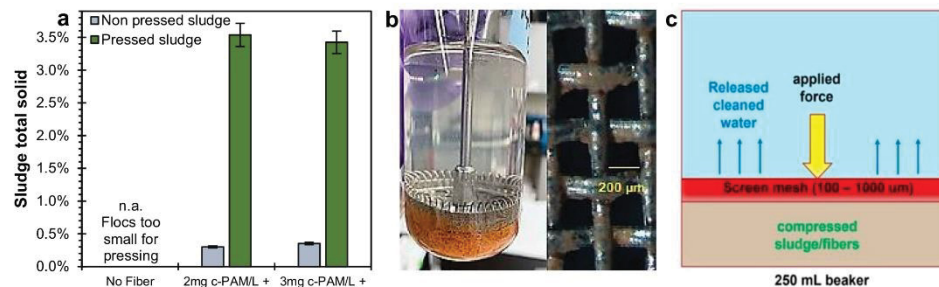


Fig. 6 | Improving sludge dewatering with fibrous agents. **a** Impact of fibers and treatment conditions on the sludge solid content (%) without pressing (grey) vs with pressing (green). **b** Pressed sludge after the fibrous aggregation treatment (left) and microscope image of the 200 µm screen mesh (right). **c** Schematic diagram showing

the compression of the fibers-based. DRC B raw water conditions: 589 NTU, pH 7.0, temperature of 21 °C. Error bars correspond to the standard deviation calculated from triplicate experiments (a).

Fig. 7 | Properties of polyacrylamides.

Tested polyacrylamides	Charge	Charge Density (%)	Molecular weight
c-PAM 1	cationic	~ 7 %	High (> 10 ⁶ g/mol)
c-PAM 2	cationic	~ 35 %	High (> 10 ⁶ g/mol)
c-PAM 3	cationic	~ 55 %	High (> 10 ⁶ g/mol)
c-PAM 4	cationic	~ 55 %	Very high (> 10 ⁷ g/mol)
a-PAM	anionic	< 10 %	Very high (> 10 ⁷ g/mol)

was manually pressed at the bottom of the 250 mL reactor (200 mg fibers/L, 500 µm screen mesh, cf Fig. 3b). The volume of sludge collected after pressing was <5 mL for all the jar tests performed. Consequently, this three-in-one reactor is a promising compact technology for contaminant aggregation, floc separation, and sludge dewatering (as shown in Fig. 1; b3).

Sludge dewatering and management, in situ

To evaluate the solid content in African (DRC B) water samples, two concentrations of c-PAM 3 (2 mg/L and 3 mg/L) were assessed under two conditions (with and without fiber addition) and using two dewatering methods (with and without pressing). The solid content was measured by drying the recovered solids at 103 °C for 1 h to determine the dryness. As illustrated in Fig. 6, the flocs obtained without fibers could not be effectively recovered due to their small size. In contrast, the addition of fibers resulted in more visible floc formation, although the percentage of solids remained relatively low. This can be attributed to the inherent characteristics of the sludge, which may contain extracellular polymeric substances with hydrophilic functional groups. These groups play a crucial role in making i) solid-liquid separation more challenging, ii) the thermal drying process less efficient, iii) the entire process more energy-consuming⁴⁵. Comparing the two methods (with and without pressing), the differences are noticeable, with pressing yielding an 11-fold higher solid content in sludge: from 0.3% for the conventional treatment to 3.5% for the fibrous treatment (Fig. 7a). Increasing the solid content in sludge could considerably reduce the overall costs associated with sludge treatment, such as reducing the amount of sludge transported and the energy input during thermal drying, among others⁴⁶. Such applications could benefit both centralized and decentralized

wastewater systems by offering significant advantages in terms of public health, environmental sustainability, and operational efficiency⁴⁷.

Scaling up this approach would require several adaptations to accommodate operational demands in larger wastewater treatment plants. First, consistent fiber distribution throughout the sludge is crucial to maintaining uniform floc formation and maximizing dewatering efficiency. Transitioning from lab-scale systems to larger pressing systems, such as rotary press or belt press filters, would allow automated cycles that usually improve efficiency and maintain consistency in solid content across batches⁴⁵. The increased solid content indicates a reduction in sludge volume, translating to lower transportation and thermal drying costs. In practical settings, this could result in significant energy savings and reduced operational costs⁴⁶. In full-scale systems, regular maintenance and adjustments to fiber dosage and pressing parameters may be necessary to account for varying sludge characteristics. Monitoring systems could enhance scalability by optimizing fiber dispersion and sludge consistency in real time. These adaptations would be essential to replicate lab-scale efficiency at larger scales – and to reduce cost associated to sludge management.

Applications and future work

This compact unit using flocculants and fibrous super-bridging agents could serve as an alternative to complex and expensive conventional physico-chemical treatments, which involve a coagulant, a flocculant, a settling tank, and granular or membrane filtration. This compact unit is suitable for producing safer drinking water, wastewater applications, and sludge dewatering. When combined with super-bridging agents, coarse screen-based filters offer a cost-effective separation solution compared to granular

or membrane filters, which require qualified operators and more maintenance. Various lab-scale experiments were conducted to determine the optimal PAM concentrations, fiber concentrations, and screen mesh sizes for floc separation and sludge dewatering. The addition of fibers significantly improved the removal of regulated and emerging contaminants, such as nanoplastics and microplastics. The optimized treatment achieved treated water with turbidity levels below 0.2 NTU, thereby complying with drinking water regulations in North America. The treated African waters also demonstrated significant reductions in turbidity, achieving 3.77 NTU with a 99.4% reduction for DRC B raw water, and 1.6 NTU with a 98.0% reduction for DRC A raw water. Further experiments are needed to optimize floc removal, reduce residual turbidity, and minimize microbiological risks for remote, marginalized, and indigenous communities, as well as for developing countries. This three-in-one process could also reduce i) the environmental and health risks associated with mismanaged sludge—potentially at low cost—and ii) the energy required for sludge transport and subsequent processing.

Methods
Chemicals and materials

The jar tests were conducted to simulate a low-cost compact treatment process (e.g., without granular filtration) to assist isolated populations or those in developing countries that lack access to clean water. According to Health Canada, the USEPA, and the Ministry of the Environment (Environmental Quality Act; EQA)³², the turbidity after filtration in conventional treatment systems must be below 0.3 NTU. The tested cationic polyacrylamides were supplied by Kemira Water Solution Canada Inc. and are listed in Fig. 7. The tested anionic polyacrylamide (a-PAM) was supplied by Hydrex. All solutions and suspensions were prepared using RO water. As described elsewhere^{27,44}, the fiber suspensions were prepared by blending 2.5 g of dried fibers in 500 mL of RO water (Ninja blender, for 7 s).

Waters characteristics

In this study, several waters were used during jar tests, including two surface waters from Kinshasa, Africa (water characteristics are listed in Table 1). Another surface water sample was taken from the St. Lawrence River in Montréal, Canada (3.2 ± 0.3 mg C/L; 4.5 ± 0.4 NTU; pH 7.8 ± 0.2). The water samples from the DRC and St. Lawrence River were selected to represent high-turbidity, particle-rich conditions and lower-turbidity surface water, respectively, showcasing the reactor's adaptability to diverse contexts. The synthetic water^{28,48} was composed of 250 mL of tap water stabilized at stabilized at room temperature, 250 μ L of a kaolin suspension (10 g/L), and 100 μ L of a starch solution (500 mg/L). Starch was included to simulate organic matter commonly found in natural surface waters, creating a more representative model with both organic and inorganic particles for more realistic flocculation experiments. The kaolin suspension was made from fine white clay powder (Cattier), and the starch solution was made from cornstarch powder (Selection). To prepare the starch solution, 250 mg of corn starch was dissolved in 500 mL of water. For the kaolin suspension, 5 g of white clay powder was mixed with 500 mL of water. The turbidity and pH of the synthetic water were approximately 6 ± 0.5 NTU and 7 ± 0.5 , respectively. The jar tests were performed using a 250 mL volume of samples

in a glass beaker agitated at 200 rpm with a cross-shaped magnetic stir bar (3.5 cm $\times$ 3.5 cm). The raw waters were all equilibrated at -21°C before each experiment.

Jar tests

Various concentrations of fibers, flocculant (PAM, 500 mg/L solution), and mesh sizes were tested during the jar tests. Four types of cationic PAM were used: c-PAM 1, c-PAM 2, c-PAM 3, and c-PAM 4 (see Fig. 7). The PAM solutions were prepared by dissolving 50 mg of dried PAM in 100 mL of water and mixing with a magnetic stirrer for 15 min. The turbidity objectives after settling and pressing were set to be below 1.5 NTU and 0.3 NTU, respectively (measurement range: 0.1–2000 NTU; turbidimeter Hach TL2350 model). Jar tests were performed using a Corning brand magnetic stirring plate. These objectives were used to determine the optimal doses of PAM and fiber, as well as other operational conditions under investigation (mixing time, mesh size, etc.).

The experiment began with the introduction of fibers into the synthetic water (fiber suspension dosed at 5 g/L). The cellulose fibers (eucalyptus hardwood, Sigma, NISTRM8496) were prepared by dispersing 2.5 g of cellulose in 500 mL of ultrapure water, which was blended for 10 s to achieve a homogeneous suspension. This blending process ensures the fibers dispersion, hence maximizing surface area for an effective interaction with colloids and PAM. Fibers (initial fibers suspension 5 g/L) were added at a concentration of 200 mg fibers/L to the beaker 10 s before the first half of the PAM dose was added into the system. The second half of the PAM was added after two minutes of mixing to reduce the PAM chain desorption and reconfiguration leading to floc fragmentation^{43,49}. Subsequently, two minutes of mixing were followed by three minutes of settling. At this stage, an initial turbidity measurement was taken. A second turbidity measurement was performed after separating the flocs using a filter press, which kept the flocs at the bottom of the beaker (mesh size: approximately 200 μ m). Different concentrations of PAM were tested: 0.2, 0.4, 0.8, 1.2, 2.0, and 3.0 mg/L. These concentrations were tested in the presence of 200 mg of fibers/L as well as in the absence of fibers (i.e., conventional treatment). Once the optimal PAM concentration was determined, additional fiber concentrations were tested to optimize the aggregation system and ultimately reduce the operational costs for full-scale applications: 0, 25, 50, 100, 150, 175, 200, and 250 mg of fibers/L.

The impact of mesh size was also tested once the optimal fiber dose was found. Pore sizes of 100, 300, 500, 1000, and 2000 μ m were used. These different mesh sizes were also tested under suboptimal mixing conditions, with PAM doses of 0.2 mg PAM/L and 0.35 mg PAM/L. The quality of the treated water remained the same, except for meshes modified to compensate for aggregation affected by lower PAM doses. The measurements were conducted using a turbidimeter. An analysis vial was measured three times to minimize variability and device imprecision. For each tested treatment condition, replicates were performed in all jar tests. For the highly turbid DRC A (78.1 ± 0.5 NTU) and DRC B surface water (589.0 ± 0.5 NTU), to achieve adequate residual turbidity after treatment, 50–100 mg alum/L had to be added, along with the optimal dose of c-PAM 3 (3 mg/L) and 200 mg/L of fibers. Alum was added at the onset of the jar test, with agitation maintained for 2 min, followed by the addition of c-PAM 3 and fibers according to the previously mentioned protocol.

Total organic carbon, nanoplastics, and microplastics measurement

Fluorescent latex polystyrene nanoplastics were used in this study (28 nm, carboxylate modified, FluoSpheres, ex/em: 365/415 nm). Jar test experiments were spiked with 0.8 mg/L of nanoplastics. Polyester microfibers (PEST) were produced by blending a textile (SanMar Canada, ATC, ATC3600Y)^{26,27}. The textile was blended for 5 min at room temperature using a Ninja blender ($\sim$ 1200 rpm)⁵⁰. Polyethylene microspheres were obtained from Cospheric (140 μ m, ex/em: 515/414 nm). Polyethylene microspheres and polyester microfibers were spiked at a concentration of 1000 microplastics/L. The properties of the tested plastics are listed

Table 1 | Location and characteristics of the 4 tested waters

Type and source	Location	Turbidity (NTU)	pH
Surface water, St. Lawrence River	Montréal, Canada	4.5 ± 0.4	7.8 ± 0.2
Synthetic water	n.a.	6.0 ± 0.5	7.0 ± 0.5
Surface water, DRC A	Democratic Republic of the Congo	78.1 ± 0.5	6.7 ± 0.2
Surface water, DRC B	Democratic Republic of the Congo	589.0 ± 0.5	6.1 ± 0.2

Table 2 | Properties of nanoplastics and microplastics

Type	Polymer	Shape	Mean size	Size range
Microplastic	Polyester	Fiber	840 µm (length)	460–1650 µm ²⁷
Microplastic	Polyethylene	Bead	140 µm (diameter)	125–150 µm
Nanoplastic	Polystyrene	Bead	28 nm (diameter)	20–35 nm

in Table 2. Turbidity measurements were performed using Standard Method 2130B (Hach 2100N turbidimeter), and total organic carbon (TOC) measurements were performed using Standard Method 5310 C (Sievers 5310C total organic carbon analyzer, GE Water).

Data availability

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request.

Received: 18 September 2024; Accepted: 6 February 2025;

Published online: 17 February 2025

References

- Farenhorst, A. et al. Bacteria in drinking water sources of a First Nation reserve in Canada. *Sci. Total Environ.* **575**, 813–819 (2017).
- Bradford, L. E. A., Bharadwaj, L. A., Okpalauwaekwe, U. & Waldner, C. L. Drinking water quality in Indigenous communities in Canada and health outcomes: a scoping review. *Int. J. Circumpolar Health* **75**, 32336 (2016).
- Velkushanova, K. et al. *Methods for Faecal Sludge Analysis* (IWA Publishing; 2021).
- Michalak, A. M. et al. The frontiers of water and sanitation. *Nat. Water* **1**, 10–18 (2023).
- Adelodun, B. et al. Assessment of socioeconomic inequality based on virus-contaminated water usage in developing countries: A review. *Environ. Res.* **192**, 110309 (2021).
- White, J. P., Murphy, L. & Spence, N. Water and Indigenous Peoples: Canada's Paradox. *Int. Indig Policy J.* **3**, <https://ojs.lib.uwo.ca/index.php/ijip/article/view/7377> (2012).
- Morrison, A., Bradford, L. & Bharadwaj, L. Quantifiable progress of the First Nations Water Management Strategy, 2001–2013: Ready for regulation? *Can. Water Resour. J. Rev. Can. Ressour. Hydr.* **40**, 352–372 (2015).
- Government of Canada SC. Le Quotidien — Enquête sur les usines de traitement de l'eau potable, 2019. <https://www150.statcan.gc.ca/n1/daily-quotidien/210817/dq210817c-fra.htm> (2021).
- WHO, UNICEF. *Progress on drinking water, sanitation and hygiene: 2017 update and SDG baselines* (WHO, 2017).
- Tchobanoglous, G., Burton, F. L., Stensel, H. D., Metcalf & Eddy Inc. *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse [Internet]. McGraw-Hill Education* (McGraw-Hill higher education, 2003).
- Lapointe, M., Rochman, C. M. & Tufenkji, N. Sustainable strategies to treat urban runoff needed. *Nat. Sustain.* **5**, 366–369 (2022).
- Lapointe, M., Kurusu, R. S., Hernandez, L. M. & Tufenkji, N. Removal of Classical and Emerging Contaminants in Water Treatment Using Super-Bridging Fiber-Based Materials. *ACS EST Water* **3**, 377–386 (2023).
- Aguilar, M. I. et al. Improvement of coagulation–flocculation process using anionic polyacrylamide as coagulant aid. *Chemosphere* **58**, 47–56 (2005).
- Bolto, B. & Gregory, J. Organic polyelectrolytes in water treatment. *Water Res.* **41**, 2301–2324 (2007).
- Sielechi, J., Lartiges, B., Skali-Lami, S., Kayem, J. & Kamga, R. Flocculation during ballasted aggregation. *Water Res.* **105**, 361–369 (2016).
- Duan, J. & Gregory, J. Coagulation by hydrolysing metal salts. *Adv. Colloid Interface Sci.* **100–102**, 475–502 (2003).
- Stackelberg, P. E. et al. Efficiency of conventional drinking-water-treatment processes in removal of pharmaceuticals and other organic compounds. *Sci. Total Environ.* **377**, 255–272 (2007).
- Matilainen, A., Vepsäläinen, M. & Sillanpää, M. Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: A review. *Adv. Colloid Interface Sci.* **159**, 189–197 (2010).
- Jarvis, P., Jefferson, B., Gregory, J. & Parsons, S. A. A review of floc strength and breakage. *Water Res.* **39**, 3121–3137 (2005).
- Liu, H., Yang, X., Zhang, Y., Zhu, H. & Yao, J. Flocculation characteristics of polyacrylamide grafted cellulose from *Phyllostachys heterocycla*: An efficient and eco-friendly flocculant. *Water Res.* **59**, 165–171 (2014).
- Stimson, J. et al. Basic oxygen furnace slag as a treatment material for pathogens: Contribution of inactivation and attachment in virus attenuation. *Water Res.* **44**, 1150–1157 (2010).
- Chae, G. T. et al. Statistical assessment of the accuracy and precision of bacteria- and virus-sized microsphere enumerations by epifluorescence microscopy. *Water Res.* **42**, 1431–1440 (2008).
- Zhang, H. et al. Filtration of Glycoprotein-Modified Carboxylated Polystyrene Microspheres as *Cryptosporidium* Oocysts Surrogates: Effects of Flow Rate, Alum, and Humic Acid. *J. Environ. Eng.* **143**, 04017032 (2017).
- Penrod, S. L., Olson, T. M. & Grant, S. B. Deposition Kinetics of Two Viruses in Packed Beds of Quartz Granular Media. *Langmuir* **12**, 5576–5587 (1996).
- Lau, B. L. T., Harrington, G. W., Anderson, M. A. & Tejedor, I. Removal of nano and microparticles by granular filter media coated with nanoporous aluminium oxide. *Water Sci. Technol.* **50**, 223–228 (2004).
- Abi Farraj, S. et al. Targeting nanoplastic and microplastic removal in treated wastewater with a simple indicator. *Nat. Water* **2**, 72–83 (2024).
- Lapointe, M., Jahandideh, H., Farnier, J. M. & Tufenkji, N. Super-bridging fibrous materials for water treatment. *Npj Clean. Water* **5**, 1–10 (2022).
- Alioua, W. & Lapointe, M. Fiber-based super-bridging agents enable efficient contaminant removal via settling and screening: Impact on microplastics, textile fibers, and turbidity. *J. Environ. Chem. Eng.* **11**, 110195 (2023).
- Palomino, D., Hunkeler, D. & Stoll, S. Comparison of two cationic polymeric flocculant architectures on the destabilization of negatively charged latex suspensions. *Polymer* **52**, 1019–1026 (2011).
- The investigation of the specific behavior of a cationic block structure and its excellent flocculation performance in high-turbidity water treatment ... - RSC Advances* (RSC Publishing, 2023) <https://doi.org/10.1039/C8RA02006J>.
- Gregory, J. & Barany, S. Adsorption and flocculation by polymers and polymer mixtures. *Adv. Colloid Interface Sci.* **169**, 1–12 (2011).
- Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada. https://publications.gc.ca/collections/collection_2019/sc-hc/H129-24-2019-fra.pdf (2023).
- Betancourt, W. Q. & Rose, J. B. Drinking water treatment processes for removal of *Cryptosporidium* and *Giardia*. *Vet. Parasitol.* **126**, 219–234 (2004).
- Guide de conception des installations de production d'eau potable. www.environnement.gouv.qc.ca/eau/potable/guide/index.htm. Volume 1, Modifiés le 4 Décembre, 2008.
- Kim, J. et al. Chlorination by-products in surface water treatment process. *Desalination* **151**, 1–9 (2003).
- Grünwald, A., Štašný, B., Slavičková, K. & Slaviček, M. Formation of Haloforms during Chlorination of Natural Waters. *Acta Polytech.* **42**, <https://ojs.cvut.cz/ojs/index.php/ap/article/view/334> (2002).
- Thomas, D. N., Judd, S. J. & Fawcett, N. Flocculation modelling: a review. *Water Res.* **33**, 1579–1592 (1999).
- Lapointe, M., Papineau, I., Peldszus, S., Peleato, N. & Barbeau, B. Identifying the best coagulant for simultaneous water treatment

- objectives: Interactions of mononuclear and polynuclear aluminum species with different natural organic matter fractions. *J. Water Process Eng.* **40**, 101829 (2021).
39. Tang, H., Xiao, F. & Wang, D. Speciation, stability, and coagulation mechanisms of hydroxyl aluminum clusters formed by PACl and alum: A critical review. *Adv. Colloid Interface Sci.* **226**, 78–85 (2015).
 40. Xiong, B. et al. Polyacrylamide degradation and its implications in environmental systems. *Npj Clean. Water* **1**, 1–9 (2018).
 41. Rice, J. M. The carcinogenicity of acrylamide. *Mutat. Res. Toxicol. Environ. Mutagen.* **580**, 3–20 (2005).
 42. Lapointe, M. & Barbeau, B. Substituting polyacrylamide with an activated starch polymer during ballasted flocculation. *J. Water Process Eng.* **28**, 129–134 (2019).
 43. Lapointe, M. & Barbeau, B. Dual starch–polyacrylamide polymer system for improved flocculation. *Water Res.* **124**, 202–209 (2017).
 44. Kurusu, R. S., Lapointe, M. & Tufenkji, N. Sustainable iron-grafted cellulose fibers enable coagulant recycling and improve contaminant removal in water treatment. *Chem. Eng. J.* **430**, 132927 (2022).
 45. Hou, J. et al. Research progress in improving sludge dewaterability: sludge characteristics, chemical conditioning and influencing factors. *J. Environ. Manag.* **351**, 119863 (2024).
 46. Rao, B. et al. The cooperative effect of mechanical dewatering and thermal drying for activated sludge deep reduction. *Process Saf. Environ. Prot.* **185**, 9–20 (2024).
 47. Mwamlima, P., Njau, K. N., Rwiza, M. & Chacha, N. Evaluating the performance of faecal sludge dewatering technologies in urban settings of developing African countries: a review. *Int. J. Environ. Health Res.* **2**, 1–13 (2024).
 48. Raissouni, B., Benkara, L. M. & Lapointe, M. Fiber-based super-bridging agents improve flotation and settling during water treatment. *J. Water Process Eng.* **63**, 105499 (2024).
 49. Lapointe, M. & Barbeau, B. Selection of media for the design of ballasted flocculation processes. *Water Res.* **147**, 25–32 (2018).
 50. Lapointe, M., Farner, J. M., Hernandez, L. M. & Tufenkji, N. Understanding and Improving Microplastic Removal during Water Treatment: Impact of Coagulation and Flocculation. *Environ. Sci. Technol.* **54**, 8719–8727 (2020).

Acknowledgements

The authors acknowledge support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) Discovery Grants program.

Author contributions

Manel Mebarki: Conceptualization, Validation, Formal analysis, Investigation, Data Curation, Visualization, Writing - Original Draft. Gabriella Joge Ngale: Validation, Formal analysis, Investigation, Data Curation, Writing - Original Draft. Mathieu Lapointe: Conceptualization, Methodology, Validation, Formal analysis, Investigation, Resources, Data Curation, Writing, Review & Editing, Visualization, Supervision, Project administration, Funding acquisition.

Competing interests

M.L. has applied for a patent on the use of fibre-based materials for water treatment. The remaining authors declare no competing interests.

Additional information

Correspondence and requests for materials should be addressed to Mathieu Lapointe.

Reprints and permissions information is available at <http://www.nature.com/reprints>

Publisher's note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Open Access This article is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International License, which permits any non-commercial use, sharing, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons licence, and indicate if you modified the licensed material. You do not have permission under this licence to share adapted material derived from this article or parts of it. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons licence, unless indicated otherwise in a credit line to the material. If material is not included in the article's Creative Commons licence and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To view a copy of this licence, visit <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>.

© The Author(s) 2025

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abi Farraj, S., Lapointe, M., Kurusu, R. S., Liu, Z., Barbeau, B., & Tufenkji, N. (2024). Targeting nanoplastic and microplastic removal in treated wastewater with a simple indicator. *Nature Water*, 2(1), Article 1. <https://doi.org/10.1038/s44221-023-00177-3>
- Adelodun, B., Ajibade, F. O., Ighalo, J. O., Odey, G., Ibrahim, R. G., Kareem, K. Y., Bakare, H. O., Tiamiyu, A. O., Ajibade, T. F., Abdulkadir, T. S., Adeniran, K. A., & Choi, K. S. (2021). Assessment of socioeconomic inequality based on virus-contaminated water usage in developing countries: A review. *Environmental Research*, 192, 110309. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.110309>
- AER. (2023). *State of Fluid Tailings Management for Mineable Oil Sands, 2023*.
- Aguilar, M. I., Sáez, J., Lloréns, M., Soler, A., Ortuño, J. F., Meseguer, V., & Fuentes, A. (2005). Improvement of coagulation–flocculation process using anionic polyacrylamide as coagulant aid. *Chemosphere*, 58(1), 47–56. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2004.09.008>
- Aher, A., Papp, J., Colburn, A., Wan, H., Hatakeyama, E., Prakash, P., Weaver, B., & Bhattacharyya, D. (2017). Naphthenic acids removal from high TDS produced water by persulfate mediated iron oxide functionalized catalytic membrane, and by nanofiltration. *Chemical Engineering Journal*, 327, 573–583. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2017.06.128>
- Alioua, W., & Lapointe, M. (2023). Fiber-based super-bridging agents enable efficient contaminant removal via settling and screening: Impact on microplastics, textile fibers, and turbidity. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 11(3), 110195. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2023.110195>
- Assaad, E. (2006). *Étude du processus de coagulation-floculation du système montmorillonite-chitosane dans l'élimination de métaux de transition*. Université du Québec à Montréal.
- Benaza, L. (2019). L'exploitation des sables bitumineux de l'Alberta: Entre sécurité énergétique et impératifs environnementaux et sociaux. *Recherches-Ressources*. <https://ressnat.hypotheses.org/567>

- Betancourt, W. Q., & Rose, J. B. (2004). Drinking water treatment processes for removal of *Cryptosporidium* and *Giardia*. *Veterinary Parasitology*, 126(1–2), 219–234. <https://doi.org/10.1016/j.vetpar.2004.09.002>
- Biesinger, M. C., Payne, B. P., Grosvenor, A. P., Lau, L. W. M., Gerson, A. R., & Smart, R. St. C. (2011). Resolving surface chemical states in XPS analysis of first row transition metals, oxides and hydroxides: Cr, Mn, Fe, Co and Ni. *Applied Surface Science*, 257(7), 2717–2730. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2010.10.051>
- Bolto, B., & Gregory, J. (2007). Organic polyelectrolytes in water treatment. *Water Research*, 41(11), 2301–2324. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2007.03.012>
- Borggaard, O. K., Raben-Lange, B., Gimsing, A. L., & Strobel, B. W. (2005). Influence of humic substances on phosphate adsorption by aluminium and iron oxides. *Geoderma*, 127(3–4), 270–279. <https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2004.12.011>
- Bradford, L. E. A., Bharadwaj, L. A., Okpalauwaekwe, U., & Waldner, C. L. (2016). Drinking water quality in Indigenous communities in Canada and health outcomes: A scoping review. *International Journal of Circumpolar Health*, 75(1), 32336. <https://doi.org/10.3402/ijch.v75.32336>
- Cancelli, A. M., & Gobas, F. A. P. C. (2020). Treatment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Oil Sands Process-Affected Water with a Surface Flow Treatment Wetland. *Environments*, 7(9), 64. <https://doi.org/10.3390/environments7090064>
- Cancelli, A. M., & Gobas, F. A. P. C. (2024). Development and testing of a mechanistic model for wetland treatment of neutral and polar organic contaminants in oil sands process-affected water. *Ecological Engineering*, 198, 107145. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2023.107145>
- Chae, G.-T., Stimson, J., Emelko, M. B., Blowes, D. W., Ptacek, C. J., & Mesquita, M. M. (2008). Statistical assessment of the accuracy and precision of bacteria- and virus-sized microsphere enumerations by epifluorescence microscopy. *Water Research*, 42(6), 1431–1440. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2007.10.015>
- Dixon, D. V., & Soares, J. B. P. (2024). Flocculating oil sands tailings with dual anionic/cationic polymers: Dose and charge density effects. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 102(1), 88–101. <https://doi.org/10.1002/cjce.25063>

- Duan, J., & Gregory, J. (2003). Coagulation by hydrolysing metal salts. *Advances in Colloid and Interface Science*, 100–102, 475–502. [https://doi.org/10.1016/S0001-8686\(02\)00067-2](https://doi.org/10.1016/S0001-8686(02)00067-2)
- Farenhorst, A., Li, R., Jahan, M., Tun, H. M., Mi, R., Amarakoon, I., Kumar, A., & Khafipour, E. (2017). Bacteria in drinking water sources of a First Nation reserve in Canada. *Science of The Total Environment*, 575, 813–819. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.138>
- Feng, L., Zheng, H., Tang, X., Zheng, X., Liu, S., Sun, Q., & Wang, M. (2018). The investigation of the specific behavior of a cationic block structure and its excellent flocculation performance in high-turbidity water treatment. *RSC Advances*, 8(27), 15119–15133. <https://doi.org/10.1039/C8RA02006J>
- Flatley, M. W. (2016). *Treatment Process for Removal of Naphthenic Acid from Oil Refinery Wastewater* [University of Western Ontario]. <https://ir.lib.uwo.ca/etd/3882>
- Fu, C., Zhang, Z., Li, Y., Li, L., Wang, H., Liu, S., Hua, X., & Li, B. (2023). Optimizing the Flocculation Effect of Cationic Polyacrylamide Prepared with UV-Initiated Polymerization by Response Surface Methodology. *Water*, 15(6), 1200. <https://doi.org/10.3390/w15061200>
- Gialanella, S., Girardi, F., Ischia, G., Lonardelli, I., Mattarelli, M., & Montagna, M. (2010). On the goethite to hematite phase transformation. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 102(3), 867–873. <https://doi.org/10.1007/s10973-010-0756-2>
- Gidas, M.-B. (1998). *Etude de la performance du chitosane comme coagulant pour l'enlèvement du cuivre et de la turbidité des eaux usées* [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. <https://publications.polymtl.ca/6898/>
- Gouvernement du Canada. (2020). In *Que sont les sables bitumineux?* <https://ressources-naturelles.canada.ca/nos-ressources-naturelles/sources-denergie-reseau-distribution/combustibles-fossils/petrole-brut/que-sont-sables-bitumineux/18152>
- Government of Canada, S. C. (2021, August 17). *Le Quotidien—Enquête sur les usines de traitement de l'eau potable, 2019*. <https://www150.statcan.gc.ca/n1/daily-quotidien/210817/dq210817c-fra.htm>
- Gregory, J. (1985). Turbidity fluctuations in flowing suspensions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 105(2), 357–371. [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(85\)90309-1](https://doi.org/10.1016/0021-9797(85)90309-1)

- Gregory, J., & Barany, S. (2011). Adsorption and flocculation by polymers and polymer mixtures. *Advances in Colloid and Interface Science*, 169(1), 1–12. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2011.06.004>
- Gregory, J., & O'Melia, C. R. (1989). Fundamentals of flocculation. *Critical Reviews in Environmental Control*, 19(3), 185–230. <https://doi.org/10.1080/10643388909388365>
- Grosvenor, A. P., Kobe, B. A., Biesinger, M. C., & McIntyre, N. S. (2004). Investigation of multiplet splitting of Fe 2p XPS spectra and bonding in iron compounds. *Surface and Interface Analysis*, 36(12), 1564–1574. <https://doi.org/10.1002/sia.1984>
- Grünwald, A., Šťastný, B., Slavíčková, K., & Slavíček, M. (2002). Formation of Haloforms during Chlorination of Natural Waters. *Acta Polytechnica*, 42(2), Article 2. <https://doi.org/10.14311/334>
- Guide de conception des installations de production d'eau potable.* (n.d.).
- Haroon, M. H. (2014). *Flocculation and dewatering of kaolinite suspensions and oil sands mature fine tailings using dual polymers*. Department of Chemical and Materials Engineering University of Alberta.
- Hou, J., Hong, C., Ling, W., Hu, J., Feng, W., Xing, Y., Wang, Y., Zhao, C., & Feng, L. (2024). Research progress in improving sludge dewaterability: Sludge characteristics, chemical conditioning and influencing factors. *Journal of Environmental Management*, 351, 119863. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2023.119863>
- Howland, J. R., Alexander, A. C., Milani, D., Culp, J. M., & Peru, K. M. (2019). Effects of oil sands process water mixtures on the mayfly *Hexagenia* and field-collected aquatic macroinvertebrate communities. *Ecotoxicology*, 28(6), 658–668. <https://doi.org/10.1007/s10646-019-02061-x>
- Hripko, R., Vajihinejad, V., LopesMotta, F., & Soares, J. B. P. (2018). Enhanced Flocculation of Oil Sands Mature Fine Tailings Using Hydrophobically Modified Polyacrylamide Copolymers. *Global Challenges*, 2(3), 1700135. <https://doi.org/10.1002/gch2.201700135>
- Islam, S., & Shang, J. Q. (2019). Coagulation enhanced electrokinetic settling of mature fine oil sands tailings. *International Journal of Mining Science and Technology*, 29(2), 199–208. <https://doi.org/10.1016/j.ijmst.2018.04.012>

- Jamshaid, A., Hamid, A., Muhammad, N., Naseer, A., Ghauri, M., Iqbal, J., Rafiq, S., & Shah, N. S. (2017). Cellulose-based Materials for the Removal of Heavy Metals from Wastewater – An Overview. *ChemBioEng Reviews*, 4(4), 240–256. <https://doi.org/10.1002/cben.201700002>
- Jarvis, P., Jefferson, B., Gregory, J., & Parsons, S. A. (2005). A review of floc strength and breakage. *Water Research*, 39(14), 3121–3137. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2005.05.022>
- Kannel, P. R., & Gan, T. Y. (2012). Naphthenic acids degradation and toxicity mitigation in tailings wastewater systems and aquatic environments: A review. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 47(1), 1–21. <https://doi.org/10.1080/10934529.2012.629574>
- Kawaguchi, H., Li, Z., Masuda, Y., Sato, K., & Nakagawa, H. (2012). Dissolved organic compounds in reused process water for steam-assisted gravity drainage oil sands extraction. *Water Research*, 46(17), 5566–5574. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.07.036>
- Kim, J., Chung, Y., Shin, D., Kim, M., Lee, Y., Lim, Y., & Lee, D. (2003). Chlorination by-products in surface water treatment process. *Desalination*, 151(1), 1–9. [https://doi.org/10.1016/S0011-9164\(02\)00967-0](https://doi.org/10.1016/S0011-9164(02)00967-0)
- Kurusu, R. S., Lapointe, M., & Tufenkji, N. (2022). Sustainable iron-grafted cellulose fibers enable coagulant recycling and improve contaminant removal in water treatment. *Chemical Engineering Journal*, 430, 132927. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.132927>
- Lapointe, M., & Barbeau, B. (2017). Dual starch–polyacrylamide polymer system for improved flocculation. *Water Research*, 124, 202–209. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.07.044>
- Lapointe, M., & Barbeau, B. (2018). Selection of media for the design of ballasted flocculation processes. *Water Research*, 147, 25–32. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.09.041>
- Lapointe, M., & Barbeau, B. (2019). Substituting polyacrylamide with an activated starch polymer during ballasted flocculation. *Journal of Water Process Engineering*, 28, 129–134. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2019.01.011>

- Lapointe, M., Farner, J. M., Hernandez, L. M., & Tufenkji, N. (2020). Understanding and Improving Microplastic Removal during Water Treatment: Impact of Coagulation and Flocculation. *Environmental Science & Technology*, 54(14), 8719–8727. <https://doi.org/10.1021/acs.est.0c00712>
- Lapointe, M., Jahandideh, H., Farner, J. M., & Tufenkji, N. (2022). Super-bridging fibrous materials for water treatment. *Npj Clean Water*, 5(1), 11. <https://doi.org/10.1038/s41545-022-00155-4>
- Lapointe, M., Kurusu, R. S., Hernandez, L. M., & Tufenkji, N. (2023). Removal of Classical and Emerging Contaminants in Water Treatment Using Super-Bridging Fiber-Based Materials. *ACS ES&T Water*, 3(2), 377–386. <https://doi.org/10.1021/acsestwater.2c00443>
- Lapointe, M., Papineau, I., Peldszus, S., Peleato, N., & Barbeau, B. (2021). Identifying the best coagulant for simultaneous water treatment objectives: Interactions of mononuclear and polynuclear aluminum species with different natural organic matter fractions. *Journal of Water Process Engineering*, 40, 101829. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2020.101829>
- Lapointe, M., Rochman, C. M., & Tufenkji, N. (2022). Sustainable strategies to treat urban runoff needed. *Nature Sustainability*, 5(5), Article 5. <https://doi.org/10.1038/s41893-022-00853-4>
- Lau, B. L. T., Harrington, G. W., Anderson, M. A., & Tejedor, I. (2004). Removal of nano and microparticles by granular filter media coated with nanoporous aluminium oxide. *Water Science and Technology*, 50(12), 223–228. <https://doi.org/10.2166/wst.2004.0717>
- Lauzon, M. (2013). Industrie pétrochimique. In *L'encyclopédie CANNADIENNE*. <https://www.thecanadianencyclopedia.ca/fr/article/industrie-petrochimique>
- Lee, C. S., Robinson, J., & Chong, M. F. (2014). A review on application of flocculants in wastewater treatment. *Process Safety and Environmental Protection*, 92(6), 489–508. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2014.04.010>
- Li, J., How, Z. T., & Gamal El-Din, M. (2023). Aerobic degradation of anionic polyacrylamide in oil sands tailings: Impact factor, degradation effect, and mechanism. *Science of The Total Environment*, 856, 159079. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.159079>

- Liu, H., Yang, X., Zhang, Y., Zhu, H., & Yao, J. (2014). Flocculation characteristics of polyacrylamide grafted cellulose from *Phyllostachys heterocycla*: An efficient and eco-friendly flocculant. *Water Research*, 59, 165–171. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.04.022>
- Llop, A., Pocurull, E., & Borrull, F. (2009). Evaluation of the Removal of Pollutants from Petrochemical Wastewater Using A Membrane Bioreactor Treatment Plant. *Water, Air, and Soil Pollution*, 197(1–4), 349–359. <https://doi.org/10.1007/s11270-008-9816-7>
- Loukili, N., Jossic, L., Blésès, D., Oliveira, M., Fayolle, Y., Ginisty, P., Elkissi, N., Magnin, A., & Rharbi, Y. (2024). Impact of cationic polyacrylamide degradation on flocculation in wastewater treatment. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 702, 134975. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2024.134975>
- Mahaffey, A., & Dubé, M. (2017). Review of the composition and toxicity of oil sands process-affected water. *Environmental Reviews*, 25(1), 97–114. <https://doi.org/10.1139/er-2015-0060>
- Matilainen, A., Vepsäläinen, M., & Sillanpää, M. (2010). Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: A review. *Advances in Colloid and Interface Science*, 159(2), 189–197. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2010.06.007>
- McCurdy, K., Carlson, K., & Gregory, D. (2004). Floc morphology and cyclic shearing recovery: Comparison of alum and polyaluminum chloride coagulants. *Water Research*, 38(2), 486–494. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2003.10.005>
- Mebarki, M., Joge Ngale, G., & Lapointe, M. (2025). Fibrous super-bridging agents simultaneously improve contaminants removal and sludge dewatering via a very compact three-in-one process. *Npj Clean Water*, 8(1), 11. <https://doi.org/10.1038/s41545-025-00445-7>
- Michalak, A. M., Xia, J., Brdjanovic, D., Mbiyozo, A.-N., Sedlak, D., Pradeep, T., Lall, U., Rao, N., & Gupta, J. (2023). The frontiers of water and sanitation. *Nature Water*, 1(1), Article 1. <https://doi.org/10.1038/s44221-022-00020-1>
- Mohamed, M. H., Wilson, L. D., Headley, J. V., & Peru, K. M. (2008). Novel materials for environmental remediation of tailing pond waters containing naphthenic acids. *Process Safety and Environmental Protection*, 86(4), 237–243. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2008.04.001>

- Morrison, A., Bradford, L., & Bharadwaj, L. (2015). Quantifiable progress of the First Nations Water Management Strategy, 2001–2013: Ready for regulation? *Canadian Water Resources Journal / Revue Canadienne Des Ressources Hydriques*, 40(4), 352–372. <https://doi.org/10.1080/07011784.2015.1080124>
- Mwamlima, P., Njau, K. N., Rwiza, M., & Chacha, N. (2024). Evaluating the performance of faecal sludge dewatering technologies in urban settings of developing African countries: A review. *International Journal of Environmental Health Research*, 1–13. <https://doi.org/10.1080/09603123.2024.2349707>
- Oil Sands Environmental Management Division. (2008). *La gestion environnementale des sables bitumineux de l'Alberta*.
- Palomino, D., Hunkeler, D., & Stoll, S. (2011). Comparison of two cationic polymeric flocculant architectures on the destabilization of negatively charged latex suspensions. *Polymer*, 52(4), 1019–1026. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2010.12.033>
- Park, J. W., Kim, S. Y., Noh, J. H., Bae, Y. H., Lee, J. W., & Maeng, S. K. (2022). A shift from chemical oxygen demand to total organic carbon for stringent industrial wastewater regulations: Utilization of organic matter characteristics. *Journal of Environmental Management*, 305, 114412. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2021.114412>
- Parsa, M. M., Pourfakhar, H., & Baghdadi, M. (2020). Application of graphene oxide nanosheets in the coagulation-flocculation process for removal of Total Organic Carbon (TOC) from surface water. *Journal of Water Process Engineering*, 37, 101367. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2020.101367>
- Peng, B., Yao, Z., Wang, X., Crombeen, M., Sweeney, D. G., & Tam, K. C. (2020). Cellulose-based materials in wastewater treatment of petroleum industry. *Green Energy & Environment*, 5(1), 37–49. <https://doi.org/10.1016/j.gee.2019.09.003>
- Penrod, S. L., Olson, T. M., & Grant, S. B. (1996). Deposition Kinetics of Two Viruses in Packed Beds of Quartz Granular Media. *Langmuir*, 12(23), 5576–5587. <https://doi.org/10.1021/la950884d>
- Quinlan, P. J., & Tam, K. C. (2015). Water treatment technologies for the remediation of naphthenic acids in oil sands process-affected water. *Chemical Engineering Journal*, 279, 696–714. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2015.05.062>

- Raissouni, B., Benkara, L. M., & Lapointe, M. (2024). Fiber-based super-bridging agents improve flotation and settling during water treatment. *Journal of Water Process Engineering*, 63, 105499. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2024.105499>
- Rao, B., Tu, H., Jia, H., Ding, Z., Xu, P., Zhang, Y., Lu, X., Hu, L., Yao, R., Ren, W., & Qin, X. (2024). The cooperative effect of mechanical dewatering and thermal drying for activated sludge deep reduction. *Process Safety and Environmental Protection*, 185, 9–20. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2024.02.053>
- Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada*. (n.d.). Retrieved July 13, 2023, from https://publications.gc.ca/collections/collection_2019/sc-hc/H129-24-2019-fra.pdf
- Rice, J. M. (2005). The carcinogenicity of acrylamide. *Mutation Research/Genetic Toxicology and Environmental Mutagenesis*, 580(1), 3–20. <https://doi.org/10.1016/j.mrgentox.2004.09.008>
- Salvé, J. (2020). *Développement de matériaux hybrides chitosan-montmorillonite pour la coagulation-floculation des eaux naturelles: De l'étude de la relation structure-réactivité en eaux modèles à l'application au traitement d'eaux de rivière* [Génie chimique, Université de Poitiers]. <https://theses.hal.science/tel-03512792>
- Sandhu, R., Rougeot, A., Josephy, P. D., Dolan, D. G., Emenike, C., Takaro, T. K., Leon, L., & Fraser, G. S. (2024). Evidence-based approaches to managing Canadian oil sands tailing pond waste: Tighter regulations and greater transparency are needed. *Evidence-Based Toxicology*, 2(1), 2399944. <https://doi.org/10.1080/2833373X.2024.2399944>
- Santo, C. E., Vilar, V. J. P., Botelho, C. M. S., Bhatnagar, A., Kumar, E., & Boaventura, R. A. R. (2012). Optimization of coagulation–flocculation and flotation parameters for the treatment of a petroleum refinery effluent from a Portuguese plant. *Chemical Engineering Journal*, 183, 117–123. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2011.12.041>
- Shatat, R. S., Niazi, S. K., & Batati, F. S. A. (2019). Synthetic Polyelectrolytes Based on Polyacrylamide: Non-ionic, Anionic and Cationic Polyacrylamides and Their Applications in Water and Wastewater Treatment: Literature Review. *Chemical Science International Journal*, 25(4), 1–8. <https://doi.org/10.9734/CSJI/2018/46483>
- Sieliechi, J., Lartiges, B., Skali-Lami, S., Kayem, J., & Kamga, R. (2016). Floc compaction during ballasted aggregation. *Water Research*, 105, 361–369. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.09.015>

- Stackelberg, P. E., Gibbs, J., Furlong, E. T., Meyer, M. T., Zaugg, S. D., & Lippincott, R. L. (2007). Efficiency of conventional drinking-water-treatment processes in removal of pharmaceuticals and other organic compounds. *Science of The Total Environment*, 377(2–3), 255–272. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.01.095>
- Stimson, J., Chae, G.-T., Ptacek, C. J., Emelko, M. B., Mesquita, M. M., Hirata, R. A., & Blowes, D. W. (2010). Basic oxygen furnace slag as a treatment material for pathogens: Contribution of inactivation and attachment in virus attenuation. *Water Research*, 44(4), 1150–1157. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.11.054>
- Tang, H., Xiao, F., & Wang, D. (2015). Speciation, stability, and coagulation mechanisms of hydroxyl aluminum clusters formed by PACl and alum: A critical review. *Advances in Colloid and Interface Science*, 226, 78–85. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2015.09.002>
- Tchobanoglous, G., Burton, F. L., Stensel, H. D., & Metcalf & Eddy, Inc. (2003). *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse*. McGraw-Hill Education. <https://books.google.ca/books?id=L1MAXTAkL-QC>
- Thomas, D. N., Judd, S. J., & Fawcett, N. (1999). Flocculation modelling: A review. *Water Research*, 33(7), 1579–1592. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(98\)00392-3](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(98)00392-3)
- Tian, X., Song, Y., Shen, Z., Zhou, Y., Wang, K., Jin, X., Han, Z., & Liu, T. (2020). A comprehensive review on toxic petrochemical wastewater pretreatment and advanced treatment. *Journal of Cleaner Production*, 245, 118692. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.118692>
- Udoetok, I. A., Dimmick, R. M., Wilson, L. D., & Headley, J. V. (2016). Adsorption properties of cross-linked cellulose-epichlorohydrin polymers in aqueous solution. *Carbohydrate Polymers*, 136, 329–340. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2015.09.032>
- Velkushanova, K., Brdjanovic, D., Koottatep, T., Strande, L., Buckley, C., & Ronteltap, M. (Eds.). (2021). *Methods for Faecal Sludge Analysis*. IWA Publishing. <https://doi.org/10.2166/9781780409122>
- Wan, J., Chakraborty, T., Xu, C. (Charles), & Ray, M. B. (2019). Treatment train for tailings pond water using *Opuntia ficus-indica* as coagulant. *Separation and Purification Technology*, 211, 448–455. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2018.09.083>

- Wang, B., Wan, Y., Gao, Y., Zheng, G., Yang, M., Wu, S., & Hu, J. (2015). Occurrences and Behaviors of Naphthenic Acids in a Petroleum Refinery Wastewater Treatment Plant. *Environmental Science & Technology*, 49(9), 5796–5804. <https://doi.org/10.1021/es505809g>
- Wang, D., Wang, D., Zhang, H., Bollneni, L., Bayarsaikhan, B., & Liu, Q. (2025). Examining the effect of conditioning sequence of polymer flocculants and coagulants on sedimentation and filtration of oil sands tailings. *Minerals Engineering*, 228, 109324. <https://doi.org/10.1016/j.mineng.2025.109324>
- White, J. P., Murphy, L., & Spence, N. (2012). Water and Indigenous Peoples: Canada's Paradox. *The International Indigenous Policy Journal*, 3(3), Article 3. <https://doi.org/10.18584/iipj.2012.3.3.3>
- WHO & UNICEF. (2017). *Progress on drinking water, sanitation and hygiene: 2017 update and SDG baselines*.
- Wu, C., De Visscher, A., & Gates, I. D. (2019). On naphthenic acids removal from crude oil and oil sands process-affected water. *Fuel*, 253, 1229–1246. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.05.091>
- Xiong, B., Loss, R. D., Shields, D., Pawlik, T., Hochreiter, R., Zydney, A. L., & Kumar, M. (2018a). Polyacrylamide degradation and its implications in environmental systems. *Npj Clean Water*, 1(1), 17. <https://doi.org/10.1038/s41545-018-0016-8>
- Xiong, B., Loss, R. D., Shields, D., Pawlik, T., Hochreiter, R., Zydney, A. L., & Kumar, M. (2018b). Polyacrylamide degradation and its implications in environmental systems. *Npj Clean Water*, 1(1), Article 1. <https://doi.org/10.1038/s41545-018-0016-8>
- XPS Database. (n.d.). XPS Database. <https://xpsdatabase.net/iron-fe-z26?utm>
- Yu, L., Han, M., & He, F. (2017). A review of treating oily wastewater. *Arabian Journal of Chemistry*, 10, S1913–S1922. <https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2013.07.020>
- Yukselen, M. A., & Gregory, J. (2004). The reversibility of floc breakage. *International Journal of Mineral Processing*, 73(2–4), 251–259. [https://doi.org/10.1016/S0301-7516\(03\)00077-2](https://doi.org/10.1016/S0301-7516(03)00077-2)

- Zhang, H., Seaman, J., Wang, Y., Zeng, H., Narain, R., Ulrich, A., & Liu, Y. (2017). Filtration of Glycoprotein-Modified Carboxylated Polystyrene Microspheres as *Cryptosporidium* Oocysts Surrogates: Effects of Flow Rate, Alum, and Humic Acid. *Journal of Environmental Engineering*, 143(8), 04017032. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0001201](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001201)
- Zhang, L., Cho, S., Hashisho, Z., & Brown, C. (2019). Quantification of fugitive emissions from an oil sands tailings pond by eddy covariance. *Fuel*, 237, 457–464. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2018.09.104>
- Zhao, C., Zhou, J., Yan, Y., Yang, L., Xing, G., Li, H., Wu, P., Wang, M., & Zheng, H. (2021). Application of coagulation/flocculation in oily wastewater treatment: A review. *Science of The Total Environment*, 765, 142795. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.142795>
- Zhao, Y. Q. (2003). Correlations between floc physical properties and optimum polymer dosage in alum sludge conditioning and dewatering. *Chemical Engineering Journal*, 92(1–3), 227–235. [https://doi.org/10.1016/S1385-8947\(02\)00253-X](https://doi.org/10.1016/S1385-8947(02)00253-X)