

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Ecole Nationale Polytechnique

Département de Génie de l'Environnement

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
BIBLIOTHEQUE — المكتبة  
Ecole Nationale Polytechnique

Mémoire de Magister  
En Génie de l'Environnement  
Option : Génie de l'Environnement

Présenté par :  
*Mme N.SELLAH-BRAHIMI*

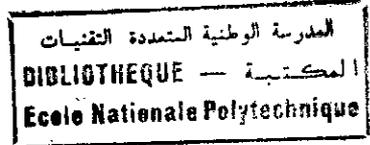
Thème

Contribution au traitement des effluents aqueux.  
Etude de la separation des émulsions hydrocarbure- eau  
par coalescence

Soutenu publiquement le 12/12 /00 devant le jury :

Mr N. DJEGHRI	:Président	Directeur de Recherche
Mme S. TILIOUINE	:Rapporteur	Maître de Conférence Associé E.N.P./Chercheur CRD/SF
Melle J. ARRAR	:Examinatrice	Chargée de cours E.N.P
Mr R. KERBACHI	:Examineur	Professeur E.N.P

## DEDICACES



A mes très chers parents

A mon cher mari

A mes adorés frères Sid'ahmed et Yacine

A mes très chères petites sœurs Bathoul et Ibtissem

A mes sœurs et leurs enfants

A ma fille Yousra

A ma belle sœur El Alia et sa fille Ikram

A tous ceux qui me sont chers

Je dédie ce modeste travail

N. SELLAH, BRAHIMI

## REMERCIEMENTS

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
المكتبة — BIBLIOTHEQUE  
Ecole Nationale Polytechnique

Le présent travail a été effectué sous la direction de Mme S. CHERID-TILIOUINE, au Laboratoire de Traitement et Epuration des Eaux de l'ex-Centre de Recherche pour la Valorisation des Hydrocarbures de Dar El Beida (CERHYD) actuellement Centre de Recherche et Développement (CRD – DEB/ SH).

Je lui exprime ma profonde reconnaissance pour ses précieux conseils, ses encouragements et sa contribution à ma formation scientifique.

Je remercie également Mlle J. ARRAR, Chargé de Cours à l'E.N.P et M. R. KERBACHI, Professeur à l'E.N.P qui ont accepté de juger ce travail.

Mes remerciements vont tout particulièrement à M. DJEGHRI, Directeur de l'ex-CERHYD qui a accepté de m'accueillir au Centre de Recherche et qui a bien voulu présider le jury.

Qu'il me soit permis d'exprimer mes remerciements à tout le personnel de l'ex-CERHYD et particulièrement Mme MELOUANI pour leur aide.

Que M. NASEF, Ingénieur de l'IAP et M. HADJOUT de l'U.S.T.H.B soient remerciés pour l'aide qu'ils m'ont apportée pour les analyses par spectrophotométrie infra-rouge

Je tiens à remercier également M. SERAI de l'I.S.M.A.L pour la réalisation de la partie visualisation des phénomènes d'interaction.

Que tous ceux qui m'ont aidé pour la réalisation de ce travail trouvent ici le témoignage de ma sincère gratitude.

## RESUME

L'étude porte sur la séparation des émulsions hydrocarbure-eau par le procédé de la coalescence .

Cette technique consiste à assurer la coalescence des microgouttelettes de la phase dispersée à travers un garnissage ,présentant des affinités préférentielles vis à vis de la phase hydrocarbure en présence d'eau .

Il s'est avéré au cours de l' étude expérimentale ,que les phénomènes d'interfaces et la nature physico-chimique du matériau coalesceur jouent un rôle important dans la séparation des deux phases en présence .

L'observation et la visualisation de ces phénomènes, nous ont permis de mettre en évidence les différentes interactions entre les trois phases en présence ( phase continue - phase dispersée- solide coalesceur ) et d'étudier le comportement de la phase dispersée vis à vis du solide coalesceur en présence des agents tensio-actifs.

Cette étude nous a permis de porter un choix sur un type de matériau coalesceur , permettant d'optimiser le processus de la séparation.

## SUMMARY :

The study relates to the separation of the secondary type of hydrocarbon -water emulsions by the process of coalescence.

This technic consists in ensuring the coalescence of the droplets of the dispersed phase through a packing presenting preferential affinity towards the hydrocarbon phase in the presence of water.

The experimental study shows that the interface phenomena and the physical-chemical aspect of the coalescing material play a major role in the separation of both phases.

The observation and the visualization of this phenomena,enabled us to highlight the various interactions between the three involved phases (cotinuous phase - dispersed phase - coalescing solid ),and to study the behavior of the dispersed phase in regards to the coalescing solid in presence of surfactant.

This study enabled us to select the type of coalescing material that best optimizes the separaion process.

ملخص :

إن هذه الدراسة تتحور حول عزل مستحلب هيدروكربون - ماء

من النوع الثانوي عن طريق الإلتصاق .

تهدف هذه التقنية إلى فقن الإلتصاق قطرات المرحلة الموزعة عبر فضاء

يمثل أنماط مضميلية اتجاه مرحلة الهيدروكربون بوجود الماء. لقد تبين خلال الدراسة التجريبية بأن الظواهر ما بين السطحية وهذا الصيغة الفيزيوكيميائية للمعدن الفاضل تلعب دورا هاما في عزل المرحلتين. إن ملاحظة وإظهار هذه الظواهر على الصورة سمحت لنا بإبراز مختلف التفاعلات بين المراحل الثلاث (المرحلة المستمرة - المرحلة الموزعة - الفاصل الصلب) ودراسة سلوك المرحلة الموزعة إتجاه الفاصل الصلب بوجود عناصر الفعالة النشطة. وهذه الدراسة سمحت لنا بإختيار نوع من المواد الفاضلة والتي تسمح بتنشيط أقوى لعملية العزل.

#### LES MOTS CLES:

Coalescence , Emulsion , Hydrocarbure - Eau . Tensio - actifs . Mouillabilité .

## SOMMAIRE

AVANT PROPOS	1
<b>CHAPITRE I: INTRODUCTION</b>	
I. POSITION DU PROBLÈME DE LA FORMATION ET DE LA SÉPARATION DES DISPERSIONS HYDROCARBURE-EAU.	2
II. BUT ET OBJECTIF DE L'ÉTUDE	4
<b>CHAPITRE II: ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	
I. LES EMULSIONS	6
I.1-Généralités	6
I.2-Définition	6
I.3-Classification	6
I.3.1-La nature de la phase continue	6
I.3.2-Le degré de dispersion	6
I.3.3-La constitution de l'émulsion	7
I.3.4-Résumé	7
II. LES AGENTS EMULSIFIANTS	8
II.1-Généralités	8
II.2-Structure des agents émulsifiants	8
II.3-Résumé	10
III. STABILITÉ DES ÉMULSIONS.	10
III.1-Nature physique du film interfacial	10
III.2-Existence d'une barrière électrique autour des gouttelettes de la phase dispersée	11
IV. TECHNIQUES DE SÉPARATION DES ÉMULSIONS	13
IV.1-Les séparateurs type décanteurs	13
IV.2-Les séparateurs dits accélérés	15

IV.3-Les techniques de déstabilisation ou cassage des émulsions.	16
IV.4-Conclusion	16

### CHAPITRE III: LA COALESCENCE

I. DEFINITION ET PRINCIPE DE LA COALESCENCE	18
II. ANALYSE THEORIQUE DES MECANISMES DE LA COALESCENCE	18
II.1-Etape 1: Interception des microgouttes de la phase dispersée par le solide coalesceur	18
II.1.1-Transport des microgouttelettes par sédimentation ( $\eta_s$ )	19
II.1.2-Transport des microgouttelettes par interception directe ( $\eta_i$ )	20
II.1.3-Transport des microgouttes par diffusion ( $\eta_d$ )	20
II.1.4- Autres mécanismes de transport	21
II.1.5- Conclusion	21
II.2-Etape 2 : Mécanismes d'adhésion et de fixation	21
II.3-Etape 3 : Relargage de la phase dispersée	22
III. SIMILITUDE ENTRE LA FILTRATION ET LA COALESCENCE	23

### CHAPITRE IV: LES PHENOMENES D'INTERFACES

I. INTRODUCTION	25
II: TENSION SUPERFICIELLE ET INTERFACIALE	25
II.1- Tension superficielle	25
II.2- Tension interfaciale entre deux liquides.	25
III. CARACTERISATION DES SURFACES SOLIDES-LIQUIDES	26
III.1- Angle de contact.	26
III.2- Travail de cohésion	29
III.3- Travail d'adhésion solide-liquide	29
III.4-Evaluation de la mouillabilité des matériaux	31
III.4.1- Tension critique de mouillage	31
III.4.1.1-La méthode de Zisman	31
III.4.2-Contributions polaires et dispersives à l'énergie de surface d'un matériau	32
IV. RESUME	33
V. EFFET DE LA MOUILLABILITÉ SUR LES FORCES CAPILLAIRES AU NIVEAU DE LA SURFACE DE RELARGAGE	34

## CHAPITRE V : PROCEDURE EXPERIMENTALE

I. INTRODUCTION	37
II. MONTAGE EXPÉRIMENTAL	37
II.1-Générateur d'émulsion .	37
II.2-Cellule de séparation	39
III. MATÉRIAUX COALESCEURS	41
III.1-Matériau hydrophile	41
III.2-Matériau hydrophobe siliconé	41
III.3-Matériau hydrophobe fluoré	41
III.4-Rugosité des matériaux	41
IV. LES ÉMULSIONS A TRAITÉR	41
V. TECHNIQUES ANALYTIQUES	42
V.1-Détermination des tensions superficielles et interfaciales	42
V.2-Evaluation de la mouillabilité des matériaux	42
V.2.1-Evaluation qualitative	43
V.2.2-Evaluation quantitative	43
V.3-Mesure de la turbidité	44
V.4-Mesure des temps de coalescence	44
V.5-Analyse granulométrique des émulsions	45
V.6-Mesure de la concentration globale en hydrocarbure	46
V.7-Mesure du potentiel Zêta	46

## CHAPITRE VI: COMPORTEMENT EXPERIMENTAL DES DIFFERENTS TYPES DE CELLULES DE COALESCENCE

I. INTRODUCTION	47
II. DÉROULEMENT D'UN ESSAI	47
III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS À PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES	47
III.1-Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe siliconé	47

III.1.1-Traitement de surface	48
III.1.2-Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur	48
III.1.3-Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur	49
III.1.4-Caractérisation granulométrique des émulsions kérosène-eau traitées	50
III.1.5-Résultats expérimentaux qualitatifs.	51
III.1.6-Résultats expérimentaux quantitatifs	54
III.1.6.1-Influence de la granulométrie du matériau coalesceur hydrophobe	54
III.1.6.2-Influence de la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence	55
III.1.6.3-Influence de l'état de surface du matériau coalesceur (rugosité).	56
III.1.6.4-Influence de la nature physico- chimique de la surface de relargage	59
III.1.6.5-Influence du nombre d'étages de coalescence	62
III.2-Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène (P.T.F.E)	63
III.2.1-Traitement de surface	63
III.2.2-Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur	63
III.2.3-Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur	64
III.2.4-Résultats expérimentaux qualitatifs	64
III.2.5-Résultats expérimentaux quantitatifs	65
III.2.6-Influence de la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence	66
<b>IV. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS À PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES</b>	<b>67</b>
IV.1-Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau hydrophile	67
IV.2-Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur	67
IV.3-Résultats expérimentaux qualitatifs	68
IV.4-Résultats expérimentaux quantitatifs	69
IV.4.1-Influence de la granulométrie du matériau coalesceur	69
IV.4.2-Influence de la vitesse de passage de l'émulsion	70
<b>V. CONCLUSION</b>	<b>71</b>
<b>CHAPITRE VII: INFLUENCE DE LA PRESENCE DES AGENTS TENSIO- ACTIFS SUR L'EFFICACITE DE SEPARATION DES CELLULES DE COALESCENCE</b>	
<b>I. INTRODUCTION</b>	<b>73</b>
<b>II. INFLUENCES DIVERSES ET RESPECTIVES DES AGENTS TENSIO-ACTIFS SUR LA STABILITE DES EMULSIONS</b>	<b>73</b>
II.1-Influence des agents tensio - actifs sur les tensions superficielles et interfaciales	73
II.2-Influence des agents tensio- actifs sur la turbidité des émulsions	75
II.3-Influence des agents tensio- actifs sur la granulométrie des émulsions	76

II.4-Influence des agents tensio-actifs sur le temps de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée	77
II.4.1-Résultats expérimentaux	78
II.5-Influence des agents tensio-actifs sur le potentiel Zêta	79
<b>III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS À PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES</b>	<b>80</b>
III.1-Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité à la silicone	80
III.1.1-Influence de la granulométrie du matériau coalesceur	80
III.1.2-Influence de la vitesse de passage de l'émulsion	81
III.2-Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe fluoré	83
<b>IV. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS À PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES</b>	<b>85</b>
IV.1-Influence de la granulométrie du matériau coalesceur	85
IV.2-Influence de la vitesse de passage de l'émulsion	86
<b>V. INFLUENCE DE LA PRÉSENCE DE L'AGENT TENSIO-ACTIF DANS LA PHASE DISPERSÉE SUR L'EFFICACITÉ DE SEPARATION DES CELLULES DE COALESCENCE</b>	<b>88</b>
<b>VI. CONCLUSION</b>	<b>89</b>
<b>CHAPITRE VIII: ETUDE DE LA MOUILLABILITE DES MATERIAUX COALESCEURS EN PRESENCE DES AGENTS TENSIO-ACTIFS</b>	
I. INTRODUCTION	90
II. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	90
III: INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS	95
<b>CHAPITRE IX: VISUALISATION DES PHENOMENES D'INTERACTION DANS LE DOMAINE DE LA COALESCENCE</b>	
I. INTRODUCTION	99
II. ETUDE DES INTERACTIONS ENTRE LES GOUTTES D'HYDROCARBURE ET LES SOLIDES COALESCEURS	99
II.1-Dispositif expérimental	99
II.2-Essais expérimentaux	100
II.2.1- Essais expérimentaux en statique	100

II.2.1.1-Influence de la mouillabilité de la surface de coalescence	101
II.2.1.1.1-Surface de coalescence hydrophobe préférentiellement mouillée par la phase hydrocarbure	101
II.2.1.1.2-Surface de coalescence hydrophile non mouillée par la phase hydrocarbure	107
II.2.1.2-Influence de la présence d'un agent tensio-actif dans la phase aqueuse	110
II.2.1.2.1-Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe	111
II.2.1.2.2-Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile	113
II.2.1.3-Influence de la présence d'un agent tensio actif dans la phase dispersée	117
II.2.1.3.1-Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe	117
II.2.1.3.2-Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile	119
II.2.2-Essais expérimentaux en dynamique	120
II.2.2.1-Garnissage hydrophobe	120
II.2.2.2-Garnissage hydrophile	121
II.3-Conclusion	122
<b>III. ETUDE DU PHÉNOMÈNE DE RELARGAGE</b>	122
III.1-Observation des phénomènes	122
III.1.1-Surface de relargage hydrophile	122
III.1.2-Surface de relargage hydrophobe	123
III.2-Conclusion	123
<b>IV. CONCLUSION</b>	123
<b>CHAPITRE X:CONCLUSION GENERALE</b>	
CONCLUSION GENERALE	125

## NOTATIONS

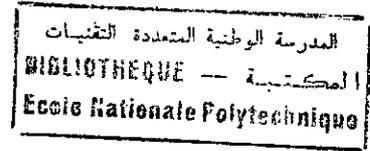
a	rayon du drip-point	L
Ao/w	aire interfaciale hydrocarbure-eau crée	L <sup>2</sup>
Co	concentration initiale de l'émulsion	ML <sup>-1</sup>
Cs	concentration résiduelle de l'émulsion	ML <sup>-1</sup>
Cx	coefficient de traînée	
dc	diamètre de la goutte coalescée à la surface de relargage	L
de	diamètre des microgouttes d'une émulsion	L
dp	granulométrie du matériau coalesceur	L
Fadh	force d'adhésion	LMT <sup>-2</sup>
Fasc	force ascensionnelle	LMT <sup>-2</sup>
Fhv	force hydrodynamique visqueuse	LMT <sup>-2</sup>
g	accélération de la pesanteur	LT <sup>-2</sup>
G	enthalpie libre du système	MT <sup>2</sup> L <sup>2</sup>
H	hauteur de la cellule de coalescence	L
Isl	travail d'adhésion dû aux forces de types polaires entre une phase solide et une phase liquide	MT <sup>-2</sup>
Is/w	travail d'adhésion dû aux forces de types polaires entre une phase solide et une phase aqueuse	MT <sup>-2</sup>
K	constante de vitesse de rupture du film interfacial	T <sup>-1</sup>
K'	constante de BOLTZMAN	
N	nombre de gouttes n'ayant pas coalescées au temps t	
P	plan correspondant à la zone de striction de la colonne	
P'	rayon de courbure maximum de la colonne	L
Pa	pression d'adsorption	L <sup>-1</sup> MT <sup>-2</sup>
Pe	nombre de Peclet	
Pc	pression capillaire	L <sup>-1</sup> MT <sup>-2</sup>
Δp	pression différentielle de part et d'autre de la membrane	L <sup>-1</sup> MT <sup>-2</sup>
ΔP	pression différentielle de part et d'autre de l'interface	L <sup>-1</sup> MT <sup>-2</sup>
r	diamètre des pores	L
R <sub>1</sub>	rayon de courbure principal de l'interface au point considéré	L
R <sub>2</sub>	rayon de courbure principal de l'interface au point considéré	L
r'	facteur de rugosité	
S	surface	L <sup>2</sup>
tc	temps de coalescence des gouttes de kérosène à l'interface kérosène-eau	T
t <sub>D</sub>	temps de drainage du film de la phase continue	T
t <sub>1/2</sub>	temps de demi-vie de coalescence; temps pour le quel la moitié des gouttes ont coalescé	T
tmc	temps moyen de coalescence d'une série de gouttes au niveau d'un film ou d'une nappe de kérosène	T
T	température.	
V	volume de la phase dispersée émulsionnée	L <sup>3</sup>
Vo	vitesse de l'écoulement de l'émulsion à travers le garnissage coalesceur	LT <sup>-1</sup>
Wa	travail d'agitation utile	L <sup>2</sup> MT <sup>-2</sup>
Wadh (1,2)	travail d'adhésion entre deux liquide 1 et 2	MT <sup>-2</sup>
Wadh sl	travail d'adhésion entre un solide et un liquide	MT <sup>-2</sup>

Wadh (so/w)	travail d'adhésion entre la phase dispersée huile (o) et le solide (s) en présence de la phase continue eau (w)	MT <sup>-2</sup>
Wasc	vitesse ascensionnelle d'une goutte de phase dispersée	LT <sup>-1</sup>
Wc(l)	travail de cohésion d'un liquide	MT <sup>-2</sup>
Wc(o/w)	travail de cohésion entre la phase dispersée-phase continue	MT <sup>-2</sup>

## LETTRES GRECQUES

$\alpha$	facteur d'efficacité de collision	
$\varepsilon$	coefficient du vide du lit coalesceur	
$\phi$	coefficient d'étalement	MT <sup>-2</sup>
$\gamma$	tension superficielle	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_c$	tension critique de mouillage	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_l$	tension superficielle du liquide	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_1$	tension superficielle du liquide 1	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_2$	tension superficielle du liquide 2	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{i(1,2)}$	tension interfaciale entre deux liquide 1 et 2	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{lv}$	tension superficielle du liquide en présence de la vapeur	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{l_1 l_2}$	tension interfaciale entre le liquide 1 et le liquide 2	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{o/w}$	tension interfaciale entre la phase dispersée (huile) et la phase continue (eau)	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_s$	énergie superficielle solide-air	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{se}$	énergie superficielle du solide ayant adsorbé la vapeur du liquide de mouillage	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{sl}$	tension interfaciale entre le solide et le liquide	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{sl_1}$	tension interfaciale entre le solide et le liquide 1	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{sl_2}$	tension interfaciale entre le solide et le liquide 2	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{s/o}$	tension interfaciale entre le solide coalesceur et la phase dispersée	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{sv}$	tension superficielle du solide ou interfaciale entre le solide et la phase vapeur	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_{s/w}$	tension interfaciale entre le solide coalesceur et la phase continue	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_s^d$	forces dispersives	MT <sup>-2</sup>
$\gamma_s^p$	forces polaires	MT <sup>-2</sup>
$\eta_d$	facteur d'efficacité de contact par diffusion	
$\eta_i$	facteur d'efficacité de contact par interception directe	
$\eta_s$	facteur d'efficacité de contact par sédimentation	
$\eta_t$	facteur d'efficacité d'interception globale	
$\eta^{\%}$	le rendement de séparation	
$\theta$	angle de contact caractéristique de l'équilibre correspondant à une surface lisse	
$\theta'$	angle de contact caractéristique de l'équilibre correspondant à une surface rugueuse	
$\theta_{o/w}$	angle de contact vis à vis d'une surface solide lisse de la phase dispersée huile (o) en présence de la phase continue eau (w)	
$\theta'_{o/w}$	angle de contact vis à vis d'une surface solide rugueuse de la phase dispersée huile (o) en présence de la phase continue eau (w)	
$\mu_c$	viscosité dynamique de la phase continue	L <sup>-1</sup> MT <sup>-1</sup>
$\rho_c$	densité de la phase continue	ML <sup>-3</sup>
$\Delta\rho (o/w)$	différence de densité entre les deux phases	ML <sup>-3</sup>

## AVANT PROPOS



La pollution des eaux par les hydrocarbures est un problème d'actualité qui constitue une préoccupation importante pour l'industrie pétrolière.

Actuellement, le seuil limite des rejets d'hydrocarbures dans les effluents aqueux est fixé à environ 20 mg/l selon les normes de rejets algériennes [ 1 ] et à 5 mg/l selon les normes de rejets AFNOR [ 2,3,4 ].

Cette valeur relativement basse montre l'importance de l'impact et du danger que représentent les hydrocarbures rejetés dans le milieu naturel.

En effet, dans de nombreuses branches de l'industrie et particulièrement l'industrie du pétrole se pose le problème de la pollution des eaux par les hydrocarbures. Ces hydrocarbures peuvent se présenter dans l'eau sous différentes formes, qui peuvent se rencontrer indépendamment ou simultanément.

Nous distinguons [ 5,6 ] :

- Les hydrocarbures à l'état dissous.
- Les hydrocarbures à l'état émulsionné stabilisé ou non stabilisé.
- Les hydrocarbures en surface sous forme de film.

## CHAPITRE I :INTRODUCTION

I. POSITION DU PROBLEME DE LA FORMATION ET DE LA SEPARATION DES  
DISPERSIONS HYDROCARBURE-EAU.

II. BUT ET OBJECTIF DE L'ETUDE

## I. POSITION DU PROBLEME DE LA FORMATION ET DE LA SEPARATION DES DISPERSIONS HYDROCARBURES-EAUX

Dans de nombreuses unités de production industrielles, sont générées des émulsions hydrocarbures, particulièrement stables dont la séparation pose des problèmes difficiles à résoudre.

C'est le cas dans de l'industrie du pétrole, tant au niveau de la production qu'au niveau des unités de raffinage, où très souvent de l'eau interagit avec une phase hydrocarbure.

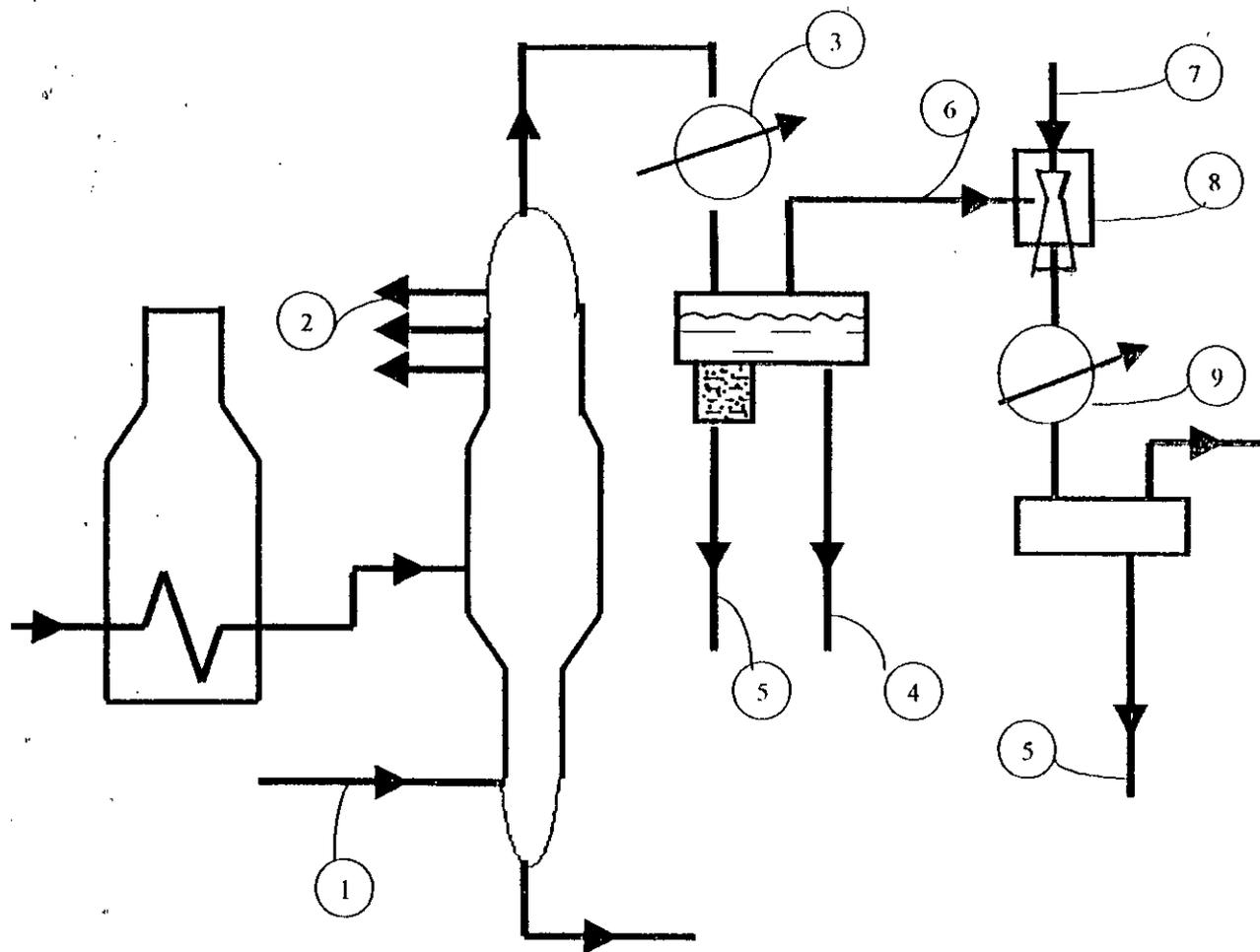
Lors de l'extraction du pétrole, du fait de la mise sous récupération assistée de certains champs de pétrole par de la vapeur d'eau haute pression, on assiste en fonction du temps à une augmentation de la quantité d'eau récupérée lors de l'extraction. Ce cas de figure est caractéristique des champs pétroliers vénézuélien [7], où la séparation hydrocarbure-eau est un problème particulièrement délicat à résoudre.

De même, de nombreux pétroles bruts contiennent des quantités importantes de sels minéraux (chlorure de sodium essentiellement) qui nécessitent au préalable un traitement de dessalage afin de limiter les problèmes ultérieurs de corrosion et d'encrassement des colonnes à distiller. Cette opération classique de dessalage est réalisée par lavage à grand eau de ces pétroles brut à haute température. Après extraction se pose le problème de séparation des dispersions hydrocarbure - eau.

Dans le domaine du raffinage, dans toutes les unités de distillation hétéroazéotropiques au niveau desquelles est injectée de la vapeur d'eau, se pose également le problème de séparation après condensation en tête de colonne [7].

De même lors des opérations de distillations sous pression réduite sur lesquelles sont utilisés des éjecteurs à vapeur, souvent des fractions de têtes légères non condensées sont entraînées au niveau des détecteurs et entraînent lors de la condensation de la vapeur d'eau, la formation de dispersions hydrocarbure- eau [7].

La figure I.1 caractérise ces deux types de formation de dispersions hydrocarbure-eau à partir d'un phénomène de condensation diphasique [7].



**figure I.1 : Schéma d'une unité de distillation hétéroazéotropique sous pression réduite**

**Localisation des différentes sources de pollution d'eau par des hydrocarbures émulsionnés [7].**

- 1- vapeur d'eau ; 2- soutirages latéraux ; 3 - condenseur diphasique ; 4- phase hydrocarbure  
 5- phase aqueuse polluée par les hydrocarbures ; 6- entraînement des hydrocarbures ;  
 7- vapeur d'eau ; 8- éjecteur à vapeur ; 9- condenseur.

Ce problème spécifique de condensation diphasique se pose également dans d'autres industries comme l'industrie pharmaceutique, les parfumeries, ... lors de l'extraction des huiles essentielles.

De même dans le secteur agro-alimentaire, durant le raffinage des huiles, chacune des opérations de neutralisation, de décoloration et de désodorisation nécessitent des interactions entre phase aqueuse et organique qui provoquent la formation de dispersions huile-eau dans certains cas très stables.

Dans le cas des processus d'extraction liquide-liquide, notamment dans le domaine de l'hydrométallurgie tant du cuivre que de l'uranium, des dispersions hydrocarbure-eau se forment. A ce niveau se pose le problème de séparation des deux phases émulsionnées [7].

Dans les industries sidérurgiques et mécaniques, les effluents sont souvent pollués par les hydrocarbures.

Il est important de noter que dans tous les cas où l'eau contient une phase non miscible huile ou hydrocarbure, le simple transfert de cette eau par l'intermédiaire d'une pompe centrifuge, vannes, tuyauterie équipée de coudes suffit à provoquer la dispersion de l'hydrocarbure dans l'eau, ce qui pose un problème délicat de séparation [8].

Nous relevons également que pour diverses raisons économiques ou techniques, les pétroliers ont souvent recours à différents additifs, tels que les inhibiteurs de corrosion, les désémulsifiants, les dispersants .... Ces produits du fait de leurs propriétés tensio-actives, confèrent aux émulsions une grande stabilité et seront ainsi difficiles à séparer par les procédés de déshuilage.

## II. BUT ET OBJECTIF DE L'ETUDE

Le traitement des effluents chargés en hydrocarbures est réalisé en général par la mise en œuvre des procédés de déshuilage. Ces procédés permettent l'élimination d'une certaine fraction et d'une certaine forme d'hydrocarbures. Cependant la séparation des émulsions secondaires stables, posent parfois des problèmes de séparation. Ces type et forme de pollution ne peuvent être traités par un simple procédé de déshuilage. D'autres techniques plus performantes et plus économiques peuvent être alors utilisées.

Dans notre étude nous nous sommes intéressés aux techniques de la coalescence pour résoudre les problèmes de séparation des émulsions secondaires stables, mais aussi aux phénomènes d'interfaces régissant ces procédés, particulièrement lors de la séparation des émulsions stabilisées par des agents tensio-actifs.

Ces procédés présentent un intérêt particulier par leur efficacité et par la possibilité de récupération de produits recyclables, ce qui permet la valorisation des produits nobles.

Au cours de cette étude nous avons utilisé des matériaux coalesceurs présentant des propriétés spécifiques pouvant favoriser la coalescence de la phase dispersée et analysé les différentes étapes du processus de séparation.

Afin de pouvoir développer ces techniques nous avons testé un type de matériau, d'une part efficace et d'autre part résistant aux effets chimiques et mécaniques.

Dans le premier et le second chapitre nous présentons une étude bibliographique et un rappel des bases théoriques sur les émulsions et les techniques de séparation.

Le troisième et quatrième chapitre sont consacrés à un développement théorique sur la coalescence et les différents phénomènes de surface appliqués au traitement des eaux.

Le cinquième, sixième, septième et huitième chapitre se rapportent à l'aspect expérimental, c'est à dire les méthodes d'analyses, les essais et les résultats expérimentaux.

Le neuvième chapitre met en évidence les différents types d'interactions et les différents types d'interfaces qui régissent la séparation par des systèmes de visualisation stéréoscopique, photographiques et par caméra vidéo.

## **CHAPITRE II : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE**

### **I. LES EMULSIONS**

- I.1 - Généralités
- I.2 - Définition
- I.3 - Classification
  - I.3.1 - La nature de la phase continue
  - I.3.2 - Le degré de dispersion
  - I.3.3 - La constitution de l'émulsion
  - I.3.4 - Résumé

### **II. LES AGENTS EMULSIFIANTS**

- II.1 - Généralités
- II.2 - Structure des agents émulsifiants
- II.3 - Résumé

### **III. STABILITE DES EMULSIONS**

- III.1 - Nature physique du film interfacial.
- III.2 - Existence d'une barrière électrique autour des gouttelettes de la phase dispersée.

### **IV. TECHNIQUES DE SEPARATION DES EMULSIONS**

- IV.1 - Les séparateurs type décanteurs
- IV.2 - Les séparateurs dits accélérés
- IV.3 - Les techniques de déstabilisation ou cassage des émulsions
- IV.4 - Conclusion.

# I. LES EMULSIONS

## I.1 - Généralités

Les dispersions Liquide/Liquide sont fréquemment rencontrées autant dans la nature que dans l'industrie. Elles sont dénommées émulsions, du terme grec « EMULSIN » qui a trait au lait. En effet, on désigne sous le nom d'émulsion l'ensemble des systèmes liquide/liquide dont le prototype le plus répandu est le lait [9,10,11].

## I.2- Définition

Une émulsion est définie comme un système hétérogène, constitué par au moins un liquide non miscible (phase dispersée ou interne) dispersé sous forme de fines gouttelettes dans un autre liquide (milieu dispersant ou phase continue ou phase externe). Les deux liquides étant nécessairement insolubles ou très peu solubles l'un dans l'autre [9,10,11,12].

## I.3- Classification

Divers types d'émulsions peuvent être rencontrés. Ces émulsions sont généralement classées selon trois critères : [5,13,14,15]

- la nature de la phase continue,
- le degré de dispersion de la phase hydrocarbure,
- la constitution de l'émulsion.

### I.3.1-La nature de la phase continue

- *Les émulsions directes :*

Ce sont des émulsions huile dans l'eau ou aqueuses appelées aussi émulsions directes, désignées par O/W pour lesquelles le milieu dispersant est l'eau .

- *Les émulsions inverses :*

Ce sont des émulsions eau dans l'huile ou huileuses appelées aussi émulsions inverses, désignées par W/O dans lesquelles l'eau est dispersée sous forme de fines gouttelettes dans la phase huile .

### I.3.2- Le degré de dispersion

- *Les émulsions primaires :*

Ces émulsions sont constituées de gouttelettes de diamètres supérieurs à 100 $\mu$ . Elles sont relativement instables , les gouttelettes ont tendance à coalescer entre-elles pour être séparées par simple décantation .

*- Les émulsions secondaires :*

Ce sont des émulsions stables constituées par des gouttelettes de diamètre compris entre 1 et 20 microns . Ces émulsions peuvent avoir des durées de vie de plusieurs semaines et ont un aspect laiteux. [12,16,17] .

*- Les micro émulsions :*

Ces émulsions sont constituées de gouttelettes de diamètre compris entre 100 et 600 Å°. Elles sont optiquement transparentes ,très stables [11,12,16] et très difficile à résoudre.

Elles sont obtenues par l'ajout d'une combinaison d'agents tensio-actifs.

**1.3.3- La constitution de l'émulsion**

*- Les émulsions non stabilisées :*

Ces émulsions sont constituées de deux phases ;une phase hydrocarbure et une phase aqueuse.La stabilité de ces émulsions dépend du degré de dispersion .

*- Les émulsions stabilisées :*

Ces émulsions sont constituées de plusieurs phases : une phase hydrocarbure, une phase aqueuse et un ou plusieurs agents émulsifiants qui sont en général des agents tensio-actifs.

Ces derniers confèrent aux émulsions une grande stabilité en se localisant à l'interface huile-eau , constituant une barrière électrique à l'agglomération des gouttelettes .

Par ailleurs, ces derniers en abaissant fortement la tension interfaciale huile -eau , ont tendance à favoriser la dispersion de la phase huile dans l'eau sous forme de fines gouttelettes de l'ordre de quelques microns.

**1.3.4 - Résumé**

En conclusion,cette classification est résumée par le tableau II.1, faisant ainsi apparaître 5 types d'émulsions susceptibles de constituer une pollution spécifique [13].

Degré de dispersion Constitution	Emulsions primaires	Emulsions secondaires	Microémulsions
	de > 100 microns	de < 20 microns	100Å° < de < 600Å°
Emulsions non stabilisées Hydrocarbure - eau	●	●	●
Emulsions stabilisées Hydrocarbure - eau, Tensio-actifs , cotensio-actifs	●	●	

**Tableau II.1 : Classification des différents types d'émulsions [13].**

« de » : diamètre des gouttelettes de la phase dispersée.

## II. LES AGENTS EMULSIFIANTS

### II.1- Généralités

La facilité de formation des émulsions est d'autant plus importante que la tension interfaciale et la différence de densité entre les deux phases sont faibles. Il est admis que plus la tension interfaciale est faible, plus l'énergie à développer sera faible et plus l'émulsion aura des chances d'être réalisable [11]. ainsi , deux liquides purs et non miscibles ne peuvent spontanément former une émulsion. Pour cette raison la stabilité d'une émulsion exige très souvent la présence d'un troisième composé appelé agent tensio - actif ou agent EMULSIFIANT, dont le rôle est de diminuer la tension interfaciale entre les deux liquides à émulsionner afin de permettre la dispersion .

### II.2- Structure des agents émulsifiants

Le caractère essentiel de la structure de ces agents est la combinaison des radicaux lipophiliques avec des groupements polaires dans une même molécule. En effet, un agent tensio - actif est une molécule formée de deux parties de polarités différentes :

- une partie apolaire, hydrophobe, lipophile ( chaîne aliphatique) présentant une affinité pour les huiles ;
- une partie polaire hydrophile présentant une certaine affinité pour l'eau (soluble dans l'eau).

On utilise des symboles simples pour représenter schématiquement des substances à activité interfaciale [18]. Comme le montre la figure II.1, la chaîne hydrocarbure du groupe hydrophobe est représentée par un trait et l'emplacement du groupe hydrophile par un cercle.

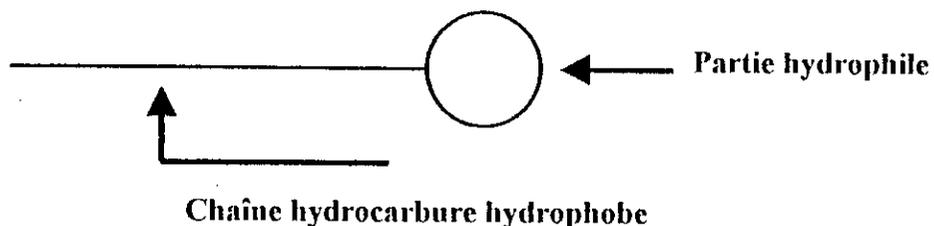


Figure II.1 : Représentation schématique d'une molécule de tensio-actif

La partie lipophile est constituée par une ou plusieurs chaînes hydrocarbonée (s), aliphatique (s), linéaire (s) ramifiée (s) ou aromatique(s) ou encore alkylaromatique (s). En règle générale le caractère hydrophobe augmente avec le nombre de carbones et diminue avec le nombre de liaisons insaturées [19] .

La partie hydrophile, ou tête polaire est constituée par un ou plusieurs groupements polaire (s), ionique (s) ou non ionique (s).

Les agents tensio- actifs sont classés en fonction de la nature de la partie hydrophile [19]. On distingue:



### II.3- Résumé

En règle générale, le type d'émulsion formée dépendra essentiellement de la nature de l'agent tensio-actif, mais également dans une moindre mesure, des proportions relatives entre les deux phases en présence ( l'huile et l'eau ).

Une émulsion de type huile dans l'eau (O/W ) se forme en présence d'un agent tensio-actif à caractère plutôt hydrophile, plus soluble dans l'eau que dans l'huile. Inversement, une émulsion de type eau dans l'huile (W/O) se formera en présence d'un tensio-actif à caractère lipophile, soluble plus dans l'huile que dans l'eau [9,21].

Le paramètre H L B ( Balance - Hydrophile - Lipophile ) défini par GRIFFIN dès les années 50 [19] caractérise le rapport entre les parties hydrophile et hydrophobe d'un agent tensio-actif. La valeur du H L B d'un agent tensio-actif ( tableau II.2 ) permet de prévoir le type d'émulsion susceptible de se former [21].

H L B	Dispersions dans l'eau	Application
1-4	Rien	-
3-6	Très faible	W/O tensio-actif
6-8	Dispersion laiteuse en agitant	Agent mouillant
8-10	Dispersion stable laiteuse	O/W tensio-actif
10-13	Dispersion claire	O/W tensio-actif
13	Solution claire	O/W tensio-actif

Tableau II.2 : Influence du H L B d'un agent tensio-actif sur la formation des émulsions [21]

### III. STABILITE DES EMULSIONS.

La stabilité d'une émulsion est déterminée par le comportement de la phase dispersée au sein de la phase continue qui dépend des facteurs qui conditionnent les interactions entre les gouttelettes de la phase dispersée.

Les facteurs les plus importants qui conditionnent la stabilité des émulsions sont principalement [9,22]:

- la nature physique du film interfacial,
- l'existence d'une barrière stérique ou électrique autour des gouttelettes constituant la phase dispersée.

#### III.1- Nature physique du film interfacial.

Le film interfacial est le résultat de l'adsorption des molécules des agents tensio-actifs à l'interface liquide/liquide [11,12].

En effet, ces agents de surface de par leur structure moléculaire, et leur orientation à l'interface O/W forment un film interfacial plus ou moins dense. Cette couche interfaciale compacte du surfactant constitue une barrière à la coalescence des gouttelettes entre elles.

En effet, les gouttelettes de la phase dispersée sont en mouvement constant. Ces gouttelettes se heurtent fréquemment, mais ne fusionnent et ne coalescent entre elles que si le film interfacial entourant les deux gouttelettes se rompt pour former une plus grosse goutte. La fusion permet ainsi de diminuer l'énergie libre du système.

La résistance mécanique du film interfacial est un facteur important conditionnant la stabilité des émulsions. Une bonne stabilité mécanique est obtenue lorsque le film interfacial lié aux molécules d'agents tensio-actifs adsorbés est dense et présente des forces intermoléculaires d'attraction importantes vis à vis des deux phases mais aussi une « élasticité » élevée.

Il s'avère que les meilleurs émulsifiants sont en général des mélanges de deux ou plusieurs agents tensio-actifs. Le plus souvent, le mélange est constitué d'un agent tensio-actif soluble dans l'eau et d'un agent tensio-actif soluble dans l'huile.

En effet, il a été démontré par Cokbain [23] que l'addition du dédocyl sulfate de sodium à une émulsion de sérum albumine augmente la stabilité par l'augmentation de l'épaisseur du film monomoléculaire de l'albumine de 13,5 Å à 20 Å.

De même, l'addition d'une certaine quantité d'alcool laurique permet de former un film monomoléculaire plus condensé et très compact, ce qui augmente considérablement la stabilité des émulsions de lauryl sulfate de sodium. [24,25].

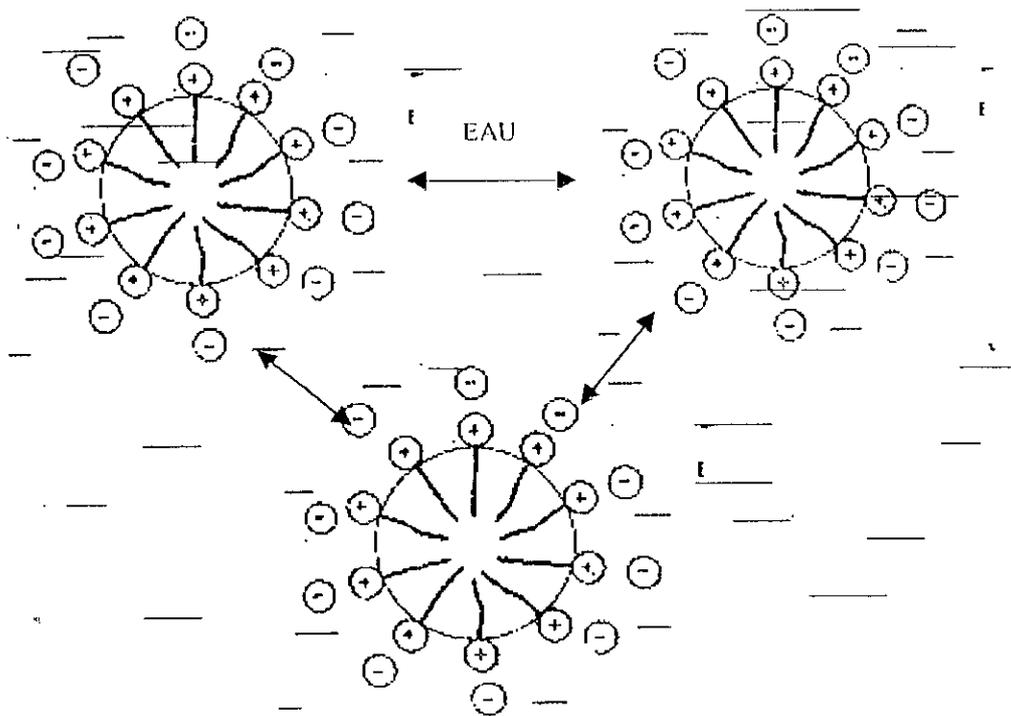
### **III.2- Existence d'une barrière électrique autour des gouttelettes de la phase dispersée.**

Les effets stériques et les effets électriques ont également un rôle important dans la stabilité des émulsions.

Plusieurs auteurs dont Davies et Rideal [26] ont mis en évidence le lien entre la stabilité des émulsions et l'existence de barrières électriques et stériques.

La barrière électrique est la force de répulsion due au potentiel de surface des gouttelettes de la phase dispersée. Par contre, la barrière de solvatation est due à l'hydratation de la surface des gouttelettes de la phase dispersée.

La barrière électrique est un facteur significatif dans le cas des émulsions directes huile dans l'eau. La source de charge sur les gouttelettes de la phase dispersée est la couche de tensio-actif adsorbé (voir figure II.3).



**Figure II.3:** Microgouttelette d'hydrocarbure émulsionnée dans l'eau en présence d'agent tensio-actif

L'intérieur de chaque gouttelette n'est composé que d'hydrocarbure, mais à l'interface eau-hydrocarbure, on trouve les molécules d'agents tensio-actifs. Le groupe polaire de chacune d'elle est dirigé vers l'eau tandis que le reste hydrophobe est fixé dans l'huile. La diminution de la tension interfaciale qui en résulte et la formation de la double couche électrique empêchent l'agglutination des gouttelettes entre elles.

Dans le cas des émulsions stabilisées par des agents tensio-actifs ioniques, le signe de charge est celui de l'ion de l'agent émulsifiant. Par contre, pour les émulsions stabilisées par des tensio-actifs non ioniques, la source de charge électrique ne peut provenir que de l'adsorption d'ions présents dans la phase ou aux frottements entre les gouttelettes et la phase aqueuse [9]. Ces agents tensio-actifs non ioniques fixent solidement l'eau par liaison d'hydrogène à la surface des gouttelettes d'huile dispersées dans la phase aqueuse [23].

Il a été démontré que la stabilité d'une émulsion est également liée à l'effet stérique du film de tensio-actif adsorbé à l'interface. En effet la stabilité de l'émulsion augmente avec la longueur de la chaîne du groupe hydrophile ou hydrophobe de l'émulsifiant, tandis que le potentiel zêta diminue [27].

Les groupes hydrophiles fortement hydratés des agents tensio-actifs et les longues chaînes alkyls solubilisées à l'interface dans la phase huileuse forment un film interfacial et constituent une barrière stérique.

## IV. TECHNIQUES DE SEPARATION DES EMULSIONS

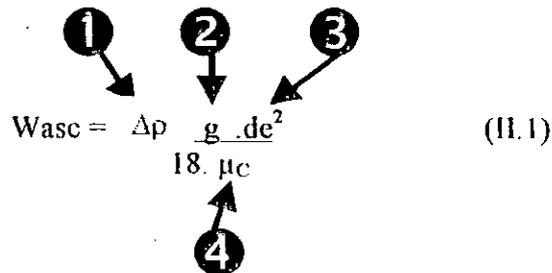
Selon la nature des émulsions, les moyens à mettre en œuvre seront différents et des techniques très diverses seront utilisées. La sélection de ces techniques de séparation dépend des caractéristiques des émulsions à traiter [28], à savoir :

- le diamètre des gouttelettes d'hydrocarbures à séparer de ;
- la différence de densité entre les deux phases  $\Delta\rho$  (o/w) ;
- la tension interfaciale hydrocarbure /eau  $\gamma_{o/w}$  ;
- la viscosité de la phase continue  $\mu_c$  ;
- la présence des agents tensio-actifs.

Il est important de noter, qu'il existe deux catégories de séparateurs [7] :

les séparateurs dont le principe de fonctionnement est basé sur la décantation simple, et ceux dont le principe de fonctionnement est basé sur la décantation accélérée.

Les premiers séparateurs sont conçus à partir de la loi de STOCKES, permettant le calcul de la vitesse ascensionnelle ( $W_{asc}$ ), d'une gouttelette sous l'effet de la pesanteur, dans un milieu aqueux, dans le cas général où le nombre de Reynolds est inférieur à 2 .

$$W_{asc} = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot d_e^2}{18 \cdot \mu_c} \quad (II.1)$$


Par contre les autres séparateurs utilisent une décantation de type accélérée, en jouant sur les 4 paramètres clés, conditionnant la vitesse ascensionnelle des gouttes entrant dans l'équation de STOCKES [7] à savoir :

- 1) la différence de densité entre les deux phases ( $\Delta\rho$  o/w) ;
- 2) l'accélération de la pesanteur ( $g$ ) ;
- 3) le diamètre des gouttelettes d'huile ( $d_e$ ) ;
- 4) la viscosité de la phase continue ( $\mu_c$ ).

### IV.1- Les séparateurs de type décanteurs

Pour ce type particulier de séparateurs, nous distinguons 3 grandes familles différentes [7]

- les séparateurs de type décanteurs classiques ( API),
- les séparateurs de type décanteurs lamellaires ( P.P.I., C.P.I. - TPS ), et de type décanteurs tubulaires ,
- des séparateurs de type lamellaires ou tubulaires intégrant une phase de coalescence.

Les premiers séparateurs consistaient en une séparation gravitaire, afin d'éliminer des particules en suspension. Ces travaux ont intéressé les compagnies pétrolières pour l'élimination des huiles résiduelles dans les effluents aqueux.

Ces nouvelles techniques furent lancées par les sociétés Américaines pour le développement des séparateurs d'hydrocarbures du type A.P.I (American Petroleum Institut) calculés pour retenir des sphérules d'huile supérieures à 150 microns [7,29,30,31].

La recherche de nouvelles performances a permis le développement des séparateurs de type lamellaire. Des séparateurs lamellaires du type P.P.I (Parallell Plate Interceptor) et C.P.I-T.P.S (Corrugated Plate Interceptor-Tilted Plate Separator) ont connu un essor important du fait de leur simplicité, de leur encombrement réduit et des meilleures performances de séparation [7,31,32,33].

Les séparateurs P.P.I développés par la Compagnie Shell interceptent des gouttelettes d'huile de diamètre supérieur à 90 microns. [7]

Les séparateurs C.P.I-T.P.S, version améliorée du P.P.I, permettent la rétention des gouttelettes d'huile de diamètre supérieur à 60 microns [7].

D'autres types de séparateurs ont été mis au point, ce sont les décanteurs tubulaires qui présentent de grands avantages. En effet, ils permettent d'atteindre de hautes performances mais ils offrent également des conditions hydrauliques optimales pour la séparation [7,34].

R. Johnson [35] a étudié ce système pour la séparation liquide-liquide et il a obtenu une efficacité de séparation importante, Toutes les gouttelettes supérieures à 30 $\mu$  sont séparées par ce type de séparateur. Cet auteur a combiné à la décantation tubulaire la coalescence ce qui explique ce rendement de séparation. D'où le développement d'un troisième type de séparateur : " les décanteurs - coalesceurs" [28,36,37,38].

Ces dispositifs permettent une séparation gravitaire et une coalescence de la phase dispersée. Ils sont tous protégés par des brevets qui font état de hautes performances de séparation [33,34,35].

Parmi ces dispositifs, le décanteur coalesceur « spiraloil » développé et breveté en 1983 par l'INSA de Toulouse [7,39,40,41] permet une haute performance de séparation des émulsions des secondaires stabilisées par des agents tensio-actifs.

L'évolution de l'efficacité de séparation des différents types de séparateurs décanteurs est indiquée dans le tableau II. 3 [13]

<u>Séparateurs décanteurs</u>	<u>Diamètre de coupure</u>
API <u>Américain Petroleum Institut</u>	150 $\mu$
PPI <u>Parallel Plate Interceptor</u>	90 $\mu$
CPI <u>Corrugated Plate Interceptor</u>	60 $\mu$
Séparateurs tubulaires	30 $\mu$
Décanteur Coalesceur Spiraloil	$\leq 20 \mu$

Tableau II.3 : Evolution des diamètres de coupure des différents séparateurs décanteurs [13].

#### IV.2- Les séparateurs dits accélérés

Ces séparateurs peuvent être classés en quatre familles :

- 1) Ceux utilisant l'effet de microflottation qui agit sur la différence de densité des phases ( $\Delta\rho$ )  
On génère au sein de la dispersion hydrocarbure - eau des microbulles d'air, qui au cours de leur ascension à travers la phase aqueuse interagissent avec les microgouttelettes d'huile en adhérant à leur surface et accélèrent ainsi leurs vitesses ascensionnelles.
- 2) Ceux basés sur l'effet thermique dans lesquels l'élévation de la température de l'émulsion à traiter permet de diminuer la viscosité de la phase aqueuse ( $\mu_c$ ). Il est à noter que l'élévation de la température accélère aussi le mouvement brownien des microgouttelettes, ce qui favorise leurs coalescence.
- 3) Ceux basés sur l'effet de centrifugation directe de type centrifugeuses ou sur l'effet de centrifugation induit de type hydrocyclones. Ces séparateurs remplacent l'accélération gravitaire ( $g$ ) par une accélération centrifuge très élevée qui augmente considérablement la séparation.
- 4) Ceux basés sur l'effet de coalescence, qui agit sur le diamètre ( $d_e$ ) des gouttes d'hydrocarbures de l'émulsion, en transformant les gouttes d'huile en de grosses gouttes, ayant une vitesse ascensionnelle très élevée. Il est important de noter que ces séparateurs agissent sur le paramètre le plus sensible de l'équation de Stokes ( $d_e$ ) qui intervient à la puissance 2.

Ces différents procédés sont présents dans le tableau II.4 [13].

<u>Procédés</u>	<u>Paramètres d'action</u>
Flottation	$\Delta\rho$
Thermique	$\mu c$
Centrifugation	g
Coalescence	de

**Tableau II.4 :** Différentes techniques de séparation accélérées et paramètres d'action correspondants [13].

### IV. 3 - Les techniques de déstabilisation ou cassage des émulsions.

Concernant la stabilité des émulsions, des techniques sont spécifiquement utilisées en prétraitement pour diminuer les effets électriques, c'est à dire diminuer le potentiel zêta qui est responsable de la stabilité de ces émulsions. Ce sont pour la plupart des techniques de déstabilisation ou de cassage de l'émulsion. Elles permettent d'accélérer la floculation ou la coalescence des microgouttelettes [42].

- réduisant les effets électriques par ajout d'électrolytes dans la phase aqueuse ,
- modifiant les propriétés interfaciales de l'émulsion par adsorption ,
- répartissant l'agent émulsifiant sur une surface interfaciale plus importante en augmentant la quantité de la phase dispersée,
- en élevant la température ou en augmentant la phase continue pour extraire le tensio-actif de l'interface à la phase continue ,
- en provoquant de nombreuses collisions entre les gouttelettes pour provoquer la coalescence .

Ces techniques sont classées en quatre catégories [43]:

- 1) les procédés physico-chimiques , qui consistent à rajouter des réactifs chimiques ( sels ou polyélectrolytes , acides ) afin de déstabiliser l'émulsion ,
- 2) les procédés d'ultra filtration dont le principe est basé sur la diffusion de l'émulsion à travers une membrane semi - perméable provoquant la déstabilisation de l'émulsion par concentration de la phase dispersée,
- 3) les procédés thermiques , dans lesquels la phase aqueuse est distillée sous vide ou évaporée en plusieurs étages ,
- 4) les procédés par coalescence .

### IV.4 - Conclusion

La présentation de ces différentes techniques de traitement des émulsions hydrocarbure - eau montre que chaque technique ou procédé est adapté à un problème donné de séparation en fonction des caractéristiques de l'émulsion à résoudre .

Dans ce qui suit nous allons présenter les principes de la coalescence sur un lit granulaire (qui fait l'objet de cette étude) pour traiter des émulsions secondaires d'aspect laiteux et difficile à recoudre. Ce type de séparateur a été développé particulièrement par les pétroliers : du fait des nombreux avantages qu'il présente dans le domaine de la séparation des émulsions.

## **CHAPITRE III : LA COALESCENCE**

### **I . DEFINITION ET PRINCIPE DE LA COALESCENCE**

### **II . ANALYSE THEORIQUE DES MECANISMES DE LA COALESCENCE**

II.1-Etape 1: Interception des microgouttes de la phase dispersée par le solide coalesceur

II.1.1 - Transport des microgouttelettes par sédimentation (  $\eta_s$  )

II.1.2 - Transport des microgouttelettes par interception directe (  $\eta_i$  )

II.1.3 - Transport des microgouttes par diffusion (  $\eta_d$  )

II.1.4 - Autres mécanismes de transport

II.1.5 - Conclusion

II.2-Etape 2 : Mécanismes d'adhésion et de fixation

II.3-Etape 3 : Relargage de la phase dispersée

### **III . SIMILITUDE ENTRE LA FILTRATION ET LA COALESCENCE**

## I. DEFINITION ET PRINCIPE DE LA COALESCENCE

La coalescence est un procédé qui favorise, comme son nom l'indique, la coagulation et l'agglomération des microgouttelettes d'une émulsion afin d'obtenir des grosses gouttes de l'ordre de plusieurs millimètre de diamètre qui se séparent de la phase aqueuse par simple décantation.

Ce type de séparateur agit sur le paramètre clé qui est le diamètre des gouttelettes ( $d_c$ ) de l'équation de Stokes, paramètre le plus influent sur la vitesse ascensionnelle.

Cette technique consiste simplement à faire passer l'émulsion à traiter à travers un milieu granulaire afin de provoquer la coagulation des gouttelettes de la phase dispersée dont la séparation par décantation est immédiate.

Le principe de la séparation est basé sur différentes interactions entre le garnissage ou le solide coalesceur constituant le milieu granulaire et les deux phases en présence de l'émulsion. Le garnissage joue le rôle d'intercepteur de la phase dispersée. Dans un tel milieu la probabilité de rencontre d'une goutte de la phase dispersée et du solide est manifestement plus importante que la probabilité de rencontre de deux gouttelettes [16].

En effet, la coalescence est le résultat d'un ensemble de forces de pression permettant la rupture des films de la phase continue séparant les gouttelettes et le garnissage coalesceur et des forces d'adhésion des gouttelettes sur le solide coalesceur; ces gouttelettes coalescent et grossissent jusqu'à être entraînées par l'écoulement pour être facilement décantées [30].

## II. ANALYSE THEORIQUE DES MECANISMES DE LA COALESCENCE

L'analyse du phénomène de coalescence réalisé par HAZLETT [44] et AURELLE [45] a montré que la coalescence des microgouttelettes au travers un garnissage est la résultante de trois étapes clés consécutives :

**ETAPE 1** : interception des microgouttes de la phase dispersée par le solide coalesceur.

**ETAPE 2** : adhésion et fixation des microgouttes de la phase dispersée au solide coalesceur, formation de film et de nappe de la phase dispersée et écoulement de la phase dispersée coalescée au travers le garnissage.

**ETAPE 3** : relargage et séparation de la phase dispersée coalescée.

### II.1- Etape 1: Interception des microgouttes de la phase dispersée par le solide coalesceur : Les mécanismes de transport

Les modèles de transport correspondants à cette première étape sont similaires à la première phase de la filtration à pénétration [44,46,47].

Au cours de cette étape, les microgouttelettes sont transportées par le flux liquide de la phase continue à la surface des intercepteurs constituant le garnissage coalesceur.

Plusieurs mécanismes de transport de la particule vers le solide coalesceur existent en coalescence. Cependant trois modèles de transport sont prédominants au cours de la première étape de la coalescence [13,15,47,48]:

- 1- Le modèle par sédimentation
- 2- Le modèle par interception directe
- 3- Le modèle par diffusion

Considérons un intercepteur de diamètre ( $d_p$ ) traversé par des lignes de courant dans le cas d'un écoulement laminaire et transportant des microgouttes de la phase dispersée de diamètre ( $d_e$ ) à proximité de ce collecteur. Ces microgouttes d'huile portées par les lignes de courant de la phase continue sont soumises à plusieurs forces dont plusieurs mécanismes de transport schématisés dans la figure III.1

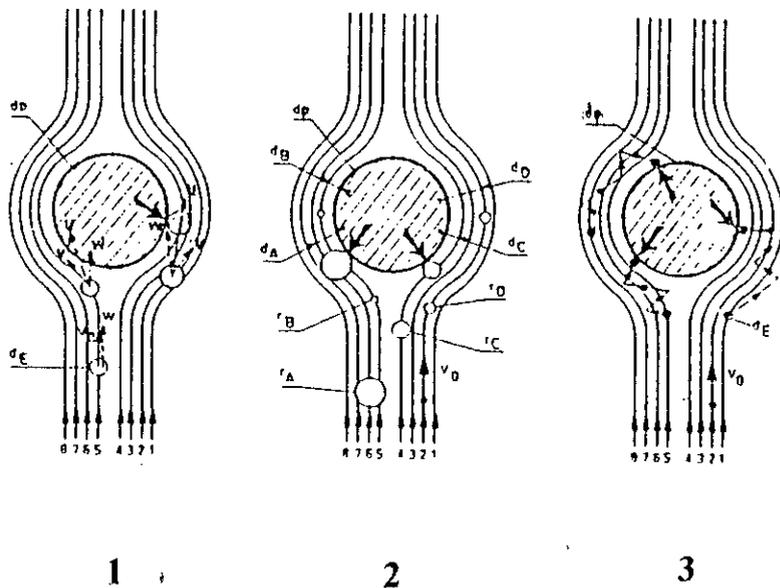


Figure III.1 : Les différents modes d'action des mécanismes de transport [13,15]  
 1 : sédimentation ; 2 : interception ; 3 : diffusion

### II.1.1 -Transport des microgouttelettes par sédimentation ( $\eta_s$ )

Ce modèle de transport est représenté par le schéma 1 de la figure III.1, il est prédominant dans le cas où les microgouttelettes de la phase dispersée ont une densité inférieure à la densité de la phase aqueuse. Celle-ci seront déviées de la ligne de courant due à l'effet de la sédimentation.

L'efficacité de chocs par sédimentation ( $\eta_s$ ) développée par Agrawal (1966) et Yao (1968) dans le cas d'un collecteur sphérique est donnée par l'équation (III.1)[48,49].

$$\eta_s = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot d_e^2}{18 \mu_c \cdot V_o} = \frac{W_{asc}}{V_o} \quad (III.1)$$

Ce modèle de transport dépend de :

- $\Delta\rho$  : différence de densité entre les 2 phases en présence,
- $g$  : accélération de la pesanteur,
- $d_e$  : diamètre des microgouttelettes de l'émulsion à traiter,
- $\mu_c$  : viscosité de la phase continue de l'émulsion,
- $V_o$  : vitesse d'écoulement de l'émulsion au travers le garnissage coalesceur,
- $W_{asc}$  : vitesse ascensionnelle des microgouttelettes.

### II.1.2- Transport des microgouttelettes par interception directe ( $\eta_i$ )

Ce modèle de transport est représenté par le schéma 2 de la figure III.1, il est prédominant dans le cas où la différence de densité ( $\Delta\rho$ ) entre les deux phases en présence est nulle. Le transport par sédimentation ne peut avoir lieu (voir équation III.1). Les microgouttelettes d'huile seront interceptées directement par le collecteur.

L'efficacité de chocs par interception directe ( $\eta_i$ ) est donnée pour les collecteurs sphériques par l'équation (III.2) développée par Yao et al. (1971) [48,49] :

$$\eta_i = 3/2 (d_e/d_p)^2 \quad (III.2)$$

L'interception directe dépend du paramètre adimensionnel  $d_e/d_p$  qui représente le rapport du diamètre ( $d_e$ ) des microgouttes à intercepter au diamètre ( $d_p$ ) du collecteur coalesceur.

### II.1.3 - Transport des microgouttes par diffusion ( $\eta_d$ )

Ce modèle de transport est représenté par le schéma 3 de la figure III.1. Ce modèle de transport ne peut avoir lieu en coalescence que dans le cas de l'interception des gouttelettes de diamètre inférieur à 5 microns. Celles-ci sont soumises à un mouvement Brownien (trajectoires aléatoires) qui provoque l'interception des microgouttes par le collecteur que représente le solide coalesceur.

L'efficacité de chocs par diffusion ( $\eta_d$ ) développée par Levich (1962) est donnée pour les collecteurs sphériques par l'équation (III.3) [48,49] :

$$\eta_d = 0.9 (K' \cdot T / \mu_c \cdot d_e \cdot d_p \cdot V_o)^{2/3} = 4.04 Pe^{-2/3} \quad (III.3)$$

$K'$  : constante de Boltzman,

$T$  : température absolue (°K)

$\mu_c$  : viscosité de la phase continue de l'émulsion,

$d_e$  : diamètre des microgouttelettes de l'émulsion à traiter,

$d_p$  : diamètre du collecteur coalesceur.

$V_o$  : vitesse d'écoulement de l'émulsion au travers le garnissage coalesceur,

$Pe$  : nombre de Peclet

L'efficacité de diffusion peut être exprimée par le nombre de Peclet ( $Pe$ )

## II.1.4 - Autres mécanismes de transport

Il a été démontré que des forces physico-chimiques, telles que les forces d'attraction de London-van der Waals et les forces électrostatiques, existent entre les gouttelettes et le solide coalesceur et ne sont sensibles que lorsque les microgouttes sont à proximité immédiat du collecteur. Cependant pour certains auteurs [47,49], ces forces sont suffisamment importantes pour les considérer comme mode de transport. D'autres comme Spielman et Goren 1970 [48] ne les considèrent pas importantes que dans certaines conditions. Les travaux de Ives et Gregory [50] ont démontré, par contre, que ces forces sont négligeables et jouent un rôle plus important au niveau de l'adhésion de la phase dispersée au solide coalesceur. Dès lors, elles ne peuvent être considérées comme mécanisme de transport.

## II.1.5- Conclusion

Yao [46] considère que l'efficacité d'interception globale pour un simple collecteur ( $\eta_t$ ) est égale à la somme des trois efficacités élémentaires ( $\eta_s, \eta_i, \eta_d$ ).

$$\eta_t = \eta_s + \eta_i + \eta_d \quad (III.4)$$

$$\eta_t = \Delta\rho \cdot g \cdot d_e^2 / 18\mu c V_o + 3/2(d_e/d_p)^2 + 0.9 (K \cdot T / \mu c \cdot d_e \cdot d_p \cdot V_o)^{2/3} \quad (III.5)$$

## II.2- Etape 2 : mécanismes d'adhésion et de fixation

Après interception et contact des gouttelettes avec le solide coalesceur, celles-ci vont s'agglomérer et s'accumuler pour former un film continu s'écoulant à la surface du solide.

Cette étape est constituée de plusieurs phases [7,47]:

- drainage du film de la phase continue entre le solide coalesceur et la gouttelette de la phase dispersée,
- rupture du film de la phase continue séparant la gouttelette et le solide coalesceur,
- adhésion de la gouttelette au solide coalesceur,
- accumulation et agglomération des gouttelettes sur le solide coalesceur pour former un film ou une nappe de phase dispersée à la surface du solide coalesceur,
- entraînement et écoulement des films et nappes de la phase dispersée coalescée par les forces hydrodynamiques visqueuses à travers le lit coalesceur.

De nombreux modèles mathématiques ont été développés et proposés pour le calcul du temps de coalescence [44,51,52,53,54,55]. L'étude de ces modèles montre que le temps de coalescence est conditionné par la phase de drainage et de rupture du film continu séparant les gouttelettes et le solide coalesceur. Certains auteurs [52,53] considèrent que le temps de coalescence est dépendant de la tension interfaciale et du diamètre des microgouttelettes de la phase dispersée. En effet celui-ci augmente avec la taille des microgouttes et diminue quand la tension interfaciale augmente.

Il a été également démontré que l'adhésion de la phase dispersée au solide coalesceur est un paramètre important. Si l'adhésion de la phase dispersée au solide coalesceur est mauvaise,

les gouttelettes de la phase dispersée seront entraînées facilement par l'écoulement de l'émulsion à travers le lit coalesceur

### II.3- Etape 3 : Relargage de la phase dispersée

L'étape de relargage est la dernière étape du processus de la coalescence dont dépend le diamètre des gouttes de la phase dispersée coalescée relarguée, qui influe sur la qualité de la séparation des deux phases.

La phase dispersée coalescée arrive au niveau de la surface de relargage selon des cheminements préférentiels liés à l'existence d'une pression capillaire de la phase dispersée positive ou négative selon la mouillabilité du garnissage coalesceur.

1) Si la surface de relargage est préférentiellement mouillée par la phase dispersée, la pression capillaire positive de celle-ci favorise l'émergence de la phase coalescée par les pores les plus petits. Ces cheminements préférentiels correspondent aux « drip points ».

Deux paramètres conditionnent le diamètre des gouttes relarguées :

- la tension interfaciale phase dispersée - phase continue,
- l'aire de la surface mouillée par la phase dispersée ;

2) Si la surface de relargage est non mouillée par la phase dispersée, la pression capillaire négative de cette dernière favorise l'émergence de la phase coalescée à la surface du lit par les pores les plus gros qui présenteront une pression capillaire en valeur absolue la plus faible.

Dans ce cas, il y a formation des ballonnets, qui selon Hazlett [56] est liée à la non mouillabilité du matériau par la phase dispersée, et le relargage va dépendre de deux paramètres :

- le rapport des forces hydrodynamiques visqueuses sur les forces d'adhésion au solide coalesceur ( $F_{hv}/F_{adh}$ ),
- la tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue.

La goutte en cours de formation est soumise à trois forces [15]:

- la force d'adhésion  $F_{adh}$  assurant la rétention de la goutte à la surface du solide coalesceur

$$F_{adh} = 2 \cdot \pi \cdot a \cdot \gamma_0 / w \quad (III.6)$$

$a$  : rayon du drip-point de la surface de relargage de la phase dispersée

$\gamma_0/w$ : tension interfaciale entre les deux phases.

- aux forces d'entraînement qui tendent à faire détacher la goutte de la surface de relargage qui sont :

\* la force ascensionnelle  $F_{asc}$ , exprimée par la relation :

$$F_{asc} = \pi \cdot d_c^3 / 6 \cdot \Delta\rho \cdot g \quad (III.7)$$

$d_c$  : diamètre de la goutte coalescée à la surface de relargage,

$g$  : accélération de la pesanteur,

$\Delta\rho$  : différence de densité entre les 2 phases en présence.

\* la force d'entraînement hydrodynamique visqueuse  $F_{hv}$  liée à l'écoulement de la phase continue exprimée par la relation suivante :

$$F_{hv} = \frac{1}{2} C_x \rho_c V_o^2 \pi ( \frac{1}{4} d_e^2 - a^2 ) \quad (III.8)$$

$C_x$  : coefficient de traînée , fonction du nombre de Reynolds .

$\rho_c$  : densité de la phase continue,

$V_o$  : vitesse d'écoulement de l'émulsion au travers le garnissage coalesceur.

$d_e$  : diamètre des microgouttelettes de l'émulsion à traiter,

$a$  : rayon du drip-point.

Ces deux forces augmenteront au cours du grossissement de la goutte à la surface de relargage puisque :

$$F_{asc} = f(d_e^3) \text{ et } F_{hv} = f(d_e^2).$$

Par contre  $F_{adh}$  sera constante .

Il y-a relargage lorsqu'on a la relation suivante :

$$F_{adh} \leq F_{asc} + F_{hv} \quad (III.9)$$

En résumé, les paramètres conditionnant le diamètre des gouttes coalescées, donc la qualité de séparation sont :

- la tension interfaciale ( $\gamma_{o/w}$ ),
- le rayon des pores ou drip-points ( $a$ ),
- la différence de densité entre les phases ( $\Delta\rho$ ),
- la vitesse d'écoulement ( $V_o$ )
- la densité de la phase continue ( $\rho_c$ )

### III. Similitude entre la filtration et la coalescence

Plusieurs modèles ont été développés concernant la coalescence , faisant apparaître des relations très diverses très complexes et comportant de nombreux coefficients empiriques.

Cependant des travaux se sont inspirés des études faites par Yao , Habibian et O'Melia [46,57, 58,59] et ont appliqué leur modèle théorique de la filtration à la coalescence .

Ces deux opérations unitaires sont basées sur le même principe de séparation . Entre ces deux procédés, la filtration et la coalescence, existent de nombreuses similitudes .

Aussi , les modèles théoriques de Yao, Habibian et O'mella sur la filtration seront utilisés et appliqués comme outil de base à la coalescence [15].

En considérant un certain nombre d'hypothèses pour l'établissement du modèle, les auteurs ont défini l'efficacité globale de séparation d'un lit coalesceur constitué de collecteurs sphériques exprimée par la relation (III.10).

$$\ln C_s/C_0 = -3/2 (1 - \epsilon) \cdot \alpha \cdot \eta_t \cdot H/dp \quad (III.10)$$

$$\text{ou } \eta_t = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot d_e^2}{18 \cdot \mu_c \cdot V_0} + 3/2(dc/dp)^2 + 0.9 (K' \cdot T / \mu_c \cdot d_e \cdot dp \cdot V_0)^{2/3} \quad (III.11)$$

Avec :

Cs : concentration résiduelle de l'émulsion en phase dispersée à la sortie du lit ;

Co : concentration initiale de l'émulsion à l'entrée du lit ;

$\epsilon$  : coefficient du vide du lit coalesceur ;

$\alpha'$  : facteur d'efficacité de collision ;

$\eta_t$  : facteur d'efficacité total d'un collecteur ;

H : hauteur du lit ;

dp : diamètre du collecteur coalesceur ;

$\Delta\rho$  : différence de densité entre les 2 phases en présence ;

g : accélération de la pesanteur ;

d<sub>e</sub> : diamètre des microgouttelettes de l'émulsion à traiter ;

$\mu_c$  : viscosité de la phase continue de l'émulsion ;

V<sub>0</sub> : vitesse d'écoulement de l'émulsion au travers le garnissage coalesceur ;

K' : constante de Boltzman ;

T : Température.

# CHAPITRE IV : LES PHENOMENES D'INTERFACES

## I. INTRODUCTION

## II. TENSIONS SUPERFICIELLE ET INTERFACIALE

- II.1- Tension superficielle
- II.2- Tension interfaciale entre deux liquides.

## III. CARACTERISATION DES SURFACES SOLIDES-LIQUIDES

- III.1- Angle de contact
- III.2- Travail d'adhésion
- III.3- Travail d'adhésion solide-liquide
- III.4- Evaluation de la mouillabilité des matériaux
  - III.4.1- Tension critique de mouillage
    - III.4.1.1- La méthode de Zisman
  - III.4.2- Contributions polaires et dispersives à l'énergie de surface d'un matériau .

## IV. RESUME

## V. EFFET DE LA MOUILLABILITE SUR LES FORCES CAPILLAIRES AU NIVEAU DE LA SURFACE DE RELARGAGE

## I. INTRODUCTION

Nous avons remarqué que les phénomènes d'interfaces régissent les différentes étapes de la coalescence, il est donc important de tenir compte de la théorie des différents paramètres qui régissent les phénomènes d'interfaces appliqués au traitement des eaux.

## II. TENSIONS SUPERFICIELLE ET INTERFACIALE

### II.1- Tension superficielle

C'est la force par unité de surface avec laquelle les molécules de la surface sont attirées vers l'intérieur du liquide.

Une molécule à l'intérieur d'un liquide se trouve sollicitée par toutes les molécules environnantes, tandis qu'une molécule à la surface du liquide n'est sollicitée que vers l'intérieur du liquide, elle sera donc soumise à une force perpendiculaire à la surface.

Accroître la surface libre d'un liquide pur, c'est obligatoirement appeler à la surface du liquide des molécules qui se trouvaient auparavant au sein de ce liquide; il faut donc fournir un travail. Chaque surface présente donc une énergie libre correspondante à la somme des forces sollicitant les molécules de la surface vers l'intérieur du liquide.

Pour un liquide donné, à une température donnée, le travail correspondant à l'accroissement d'aire de  $1 \text{ cm}^2$  est remplacé par un équivalent mathématique appelé tension superficielle ( $\gamma$ ) [60,61,62].

$$\gamma = dG / dS \quad (\text{IV.1})$$

Avec

G: enthalpie libre du système ;

S : surface.

$\gamma$  : tension superficielle

### II.2- Tension interfaciale entre deux liquides.

HARKINS a établi que l'étalement d'un liquide sur un autre a lieu si l'adhésion entre les deux liquides est plus grande que la cohésion du liquide qui doit s'étaler [60].

La tension interfaciale est liée à la tension superficielle des deux liquides d'après la formulation de DUPRE (1869) [15,60,62].

$$\gamma_{i(1,2)} = \gamma_1 + \gamma_2 - Wadh_{(1,2)} \quad (\text{IV.2})$$

où :

$Wadh_{(1,2)}$  : travail d'adhésion entre les deux liquides ;

$\gamma_1$  : tension superficielle du liquide 1.

$\gamma_2$  : tension superficielle du liquide 2.

Le travail d'adhésion est lié aux énergies d'interaction entre les molécules de la zone superficielle des liquides 1 et 2. Il est responsable de l'état d'ordre accru ou diminué de ces molécules superficielles lorsque les deux surfaces viennent en contact.

Le travail d'adhésion est la déperdition d'énergie sous forme de chaleur résultant de la formation de l'interface du couple de liquides 1 et 2.

Plus les deux liquides ont de l'affinité l'un pour l'autre, plus l'adhésion est grande et plus l'énergie interfaciale  $\gamma_i(1,2)$  est petite.

### III. CARACTERISATION DES SURFACES SOLIDES-LIQUIDES

#### III.1- Angle de contact.

Lorsque l'on dépose une goutte sur une surface solide, deux phénomènes peuvent se produire :

- soit il y a étalement total ou partiel de la goutte, figure (IV.1.a)
- soit il n'y a pas d'étalement, figure (IV.1.b).

On dit respectivement que le liquide mouille le solide ou ne le mouille pas

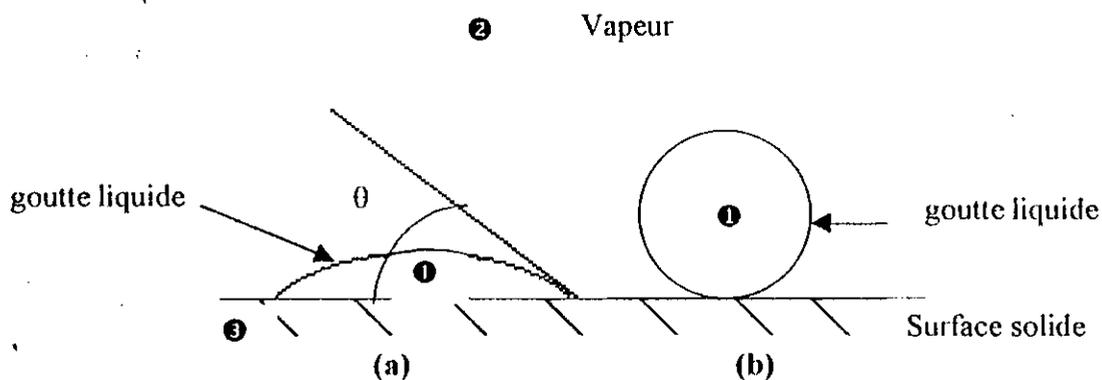


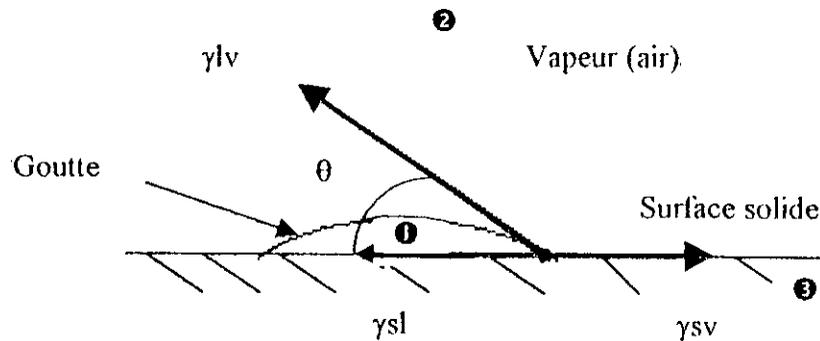
Figure IV.1: Configuration schématique d'une goutte (1) en présence de la vapeur (2) sur une surface solide (3)

Dans le premier cas, le plan tangent à la goutte, le long de la ligne de séparation des trois phases solide - liquide - vapeur définit avec le plan de la surface un angle  $\theta$  non nul appelé angle de contact. Cet angle peut varier entre 0 et 180° [15,63,64,65],

0° : pour un liquide qui mouille parfaitement le solide : il y a étalement.

180° : pour un liquide qui ne mouille pas le solide: la goutte reste sous forme sphérique sur le solide. c'est le cas (b) de la figure IV.1.

La relation de Young [46,56,66] a trait à la configuration d'équilibre que prend la goutte sur un solide selon la figure IV.2. Celle-ci permet de relier l'angle de contact aux tensions interfaciales et superficielles des différentes interfaces considérées.



**Figure IV.2 :** Configuration d'équilibre d'une goutte d'un liquide (1) en présence de l'air (2) sur une surface solide (3)

où :

$\gamma_{lv}$  : tension superficielle du liquide en présence de la vapeur ;

$\gamma_{sl}$  : tension interfaciale entre le solide et le liquide

$\gamma_{sv}$  : tension superficielle du solide ou interfaciale entre le solide et la phase vapeur (l'air)

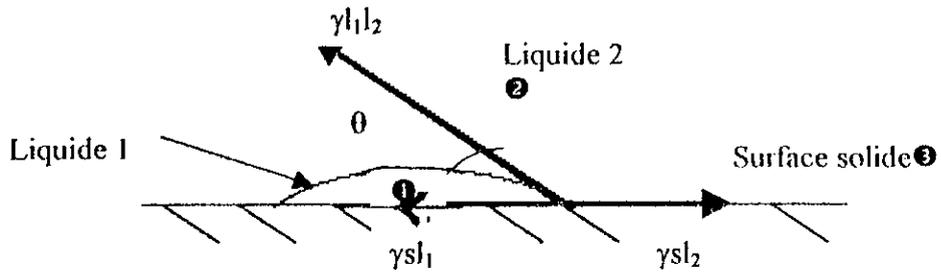
$\theta$  : angle de contact.

L'équation de Young est donnée par la relation suivante : [15,46,66]

$$\gamma_{sv} = \gamma_{sl} + \gamma_{lv} \cdot \cos\theta \quad (IV.3)$$

$$\text{soit :} \quad \theta = \arccos \left( \frac{\gamma_{sv} - \gamma_{sl}}{\gamma_{lv}} \right) \quad (IV.4)$$

Pour une goutte de liquide  $l_1$  déposée sur un solide (s) en présence d'un autre liquide  $l_2$  on aura selon la figure IV.3, les relations suivantes

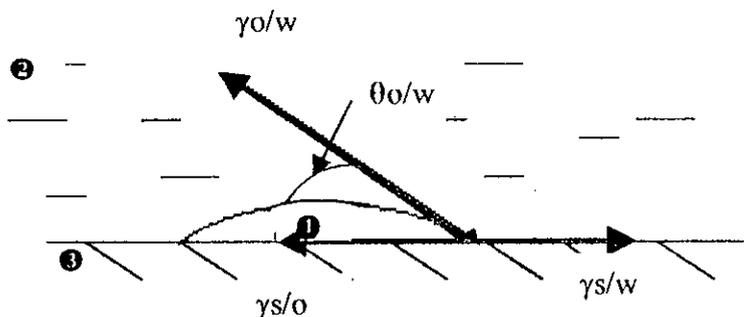


**Figure IV.3 :** Configuration d'équilibre d'une goutte d'un liquide  $l_1$  (1) en présence d'un liquide  $l_2$  (2) sur une surface solide (3)

$$\gamma_{sl_2} = \gamma_{sl_1} + \gamma_{l_1l_2} \cdot \cos\theta \quad (IV.5)$$

$$\cos\theta = \frac{\gamma_{sl_2} - \gamma_{sl_1}}{\gamma_{l_1l_2}} \quad (IV.6)$$

Considérons la phase solide (s), la phase hydrocarbure (O phase dispersée) et la phase aqueuse (W phase continue). Une goutte d'huile déposée sur une surface solide en présence d'eau prendra une configuration d'équilibre correspondant à la figure IV.4



**Figure IV.4:** Configuration d'équilibre d'une goutte d'une phase d'hydrocarbure (1) en présence d'eau (2) sur une surface solide (3)

Dans ce cas la relation de Young s'écrira [48, 59] :

$$\gamma_{s/w} = \gamma_{s/o} + \gamma_{o/w} \cdot \cos\theta_{o/w} \quad (IV.7)$$

$\theta_{o/w}$ : angle de contact vis-à-vis du solide de la phase dispersée huile en présence de la phase continue ;

$\gamma_{s/w}$  : tension interfaciale entre le solide coalesceur et la phase continue ;

$\gamma_{s/o}$  : tension interfaciale entre le solide et la phase dispersée ;

$\gamma_{o/w}$  : tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue.

Lorsque l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  est égal à  $0^\circ$ , nous avons une mouillabilité complète du solide coalesceur par la phase dispersée ; par contre s'il est égal à  $180^\circ$  nous sommes en présence d'une non mouillabilité absolue par la phase dispersée .

Les valeurs intermédiaires correspondent à des degrés divers de mouillabilité . On parlera de solide coalesceur préférentiellement mouillé par la phase dispersée si  $\theta_{o/w}$  est inférieur à  $90^\circ$  , Si  $\theta_{o/w}$  est supérieur à  $90^\circ$  on dira que le solide coalesceur est préférentiellement mouillé par la phase continue [15,46] .

Les pétroliers [ 62] ont fixé une gamme de mouillabilité par rapport à l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  qui permet de classer les différentes surfaces et roches de  $180^\circ$  à  $105^\circ$  : le support est mouillable à l'eau ;  
 $105^\circ$  à  $75^\circ$  : le support a la mouillabilité intermédiaire ;  
 $75^\circ$  à  $0^\circ$  : le support est mouillable à l'huile.

### III.2- Travail de cohésion [15]

On définit également selon Harkins une énergie de cohésion d'un liquide par le travail nécessaire pour séparer une colonne liquide dite de Harkins [60]. La rupture de cette colonne fait apparaître deux aires unités de surfaces libres de liquide , donc le travail de cohésion ou d'adhésion du liquide avec lui même est donné par la relation suivante :

$$W_c(l) = 2 \cdot \gamma_l \quad (IV.8)$$

$W_c(l)$  : travail de cohésion,  
 $\gamma_l$  : tension superficielle du liquide.

En présence d'une phase dispersée et d'une phase continue , la rupture de cette colonne liquide fera apparaître deux aires unités d'interfaces , phase dispersée - phase continue , dans ce cas le travail de cohésion s'écrira :

$$W_c(o/w) = 2 \cdot \gamma_{o/w} \quad (IV.9)$$

$W_c(o/w)$  : travail de cohésion phase dispersée -phase continue  
 $\gamma_{o/w}$  : tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue

### III.3- Travail d'adhésion solide-liquide [15]

Le travail d'adhésion  $W_{adh}$  est le travail nécessaire pour séparer une surface de  $1\text{cm}^2$  de liquide de la surface. Harkins et Levingston [67] ont établi la relation suivante :

$$W_{adh} = P_a + \gamma_l (1 + \cos\theta) \quad (IV.10)$$

$W_{adh}$  : travail d'adhésion entre la phase liquide et le solide ,  
 $\theta$  : angle de contact  
 $P_a$  : pression d'adsorption définie par Harkins et Coll. par la relation suivante :

$$P_a = \gamma_s - \gamma_{se} \quad (IV.11)$$

$\gamma_s$  : énergie superficielle solide-air ,  
 $\gamma_{se}$  : énergie superficielle du solide ayant adsorbé la vapeur du liquide de mouillage .

Selon Dupré le travail d'adhésion est lié aux tensions superficielles et interfaciales par la relation suivante :

$$Wadh_{(1,2)} = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{i(1,2)} \quad (IV.12)$$

$\gamma_i$  : tension superficielle,  
 $\gamma_{i(1,2)}$ : tension interfaciale solide -liquide.

Dans le cas où l'on est en présence de 3 phases : la phase continue , la phase dispersée et le solide coalesceur , le travail d'adhésion s'écrira [15]:

$$Wadh (so)/w = \gamma_{s/w} + \gamma_{o/w} - \gamma_{s/o} \quad (IV.13)$$

Selon la relation de Young :

$$\gamma_{s/w} = \gamma_{s/o} + \gamma_{o/w} \cdot \cos \theta_{o/w} \quad (IV.14)$$

d'où

$$Wadh(so)/w = \gamma_{o/w} ( 1 + \cos \theta_{o/w} ) \quad (IV.15) \quad [15]$$

Cette relation montre que le travail d'adhésion de la phase dispersée au solide coalesceur dépend de :

- la tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue ,
- l'angle de contact vis-à-vis du solide de la phase dispersée huile en présence de la phase continue .

Dans le cas où il y a mouillabilité totale du solide coalesceur par la phase dispersée , le travail d'adhésion est supérieur ou égal au travail de cohésion du liquide .

$$Wadh(so)/w \geq 2\gamma_{o/w} = Wc(o/w) \quad (IV.16)$$

$\phi$ : coefficient d'étalement de Harkins , représente la différence entre le travail d'adhésion et le travail de cohésion

$$\phi = Wadh (so)/w - Wc(o/w) \quad (IV.17)$$

$$\phi = \gamma_{s/w} - \gamma_{s/o} - \gamma_{o/w} \quad (IV.18)$$

Si  $\phi$  est positif , il y a étalement spontané .

Si  $\phi$  est négatif , la goutte de phase dispersée sur le solide coalesceur en présence d'eau prendra une position d'équilibre selon l'équation de Young.

### III.4 - Evaluation de la mouillabilité des matériaux

#### III.4.1- Tension critique de mouillage

##### III.4.1.1- La méthode de Zisman

En déposant sur une même surface d'énergie libre superficielle faible, des liquides organiques appartenant à une même série homologue, Zisman [68,69,70] a observé qu'à température constante le cosinus de l'angle varie linéairement avec la tension superficielle, selon la figure IV.5.

Cette loi reste valable, dans le cas des liquides purs de propriétés très différentes, tant que leurs tensions superficielles ne sont pas trop élevées [63,71].

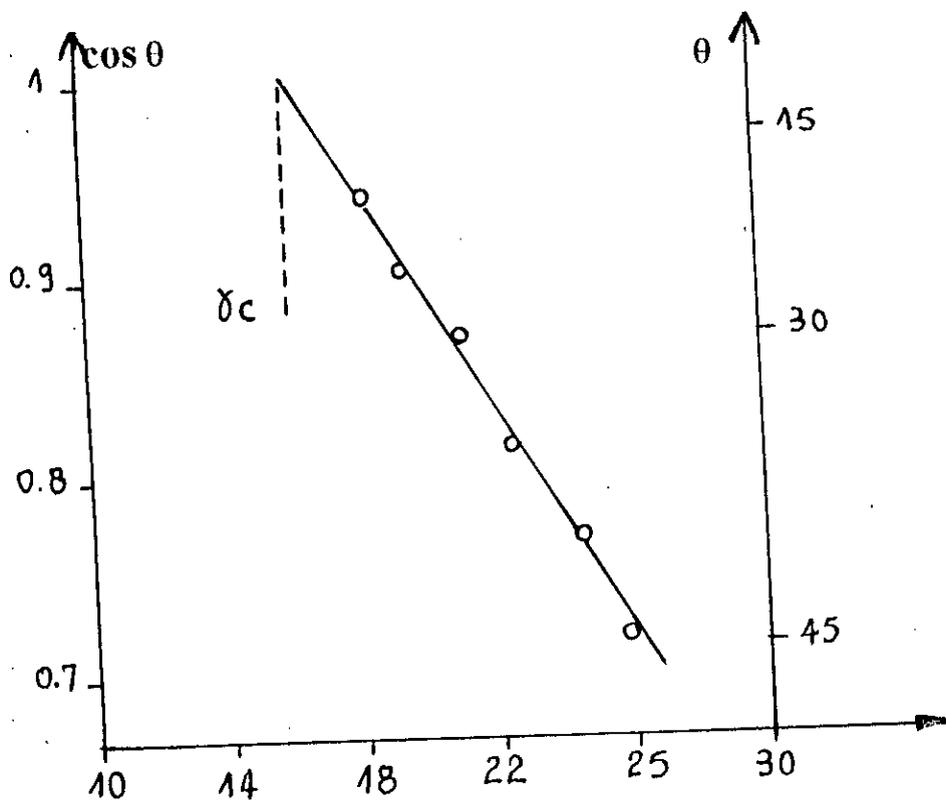


Figure IV.5 : Tension de surface en dynes/cm d'après JELLINEK [71].

L'extrapolation de la partie linéaire de la courbe expérimentale jusqu'à  $\cos \theta = 1$ , définit une grandeur  $\gamma_c$  que Zisman appelle tension critique de mouillage de la surface. C'est la tension superficielle d'un liquide hypothétique qui s'étale sur le solide puisque son angle de contact est nul. Mais il s'agit aussi d'une propriété descriptive de la surface pour prédire le comportement des liquides vis à vis de ce solide.

En effet, l'expérience montre que sur une surface donnée, seuls les liquides dont la tension superficielle  $\gamma_l$  inférieure ou égale à  $\gamma_c$  s'étalent, donc mouillent le solide.

$$\gamma_l < \gamma_c \quad (\text{IV.19})$$

Par contre, les liquides présentant une tension superficielle supérieure à la tension critique ne s'étalent pas et présenteront un angle de contact  $\theta_{o/w}$  d'autant plus élevé que la différence entre la tension superficielle du liquide et la tension critique de mouillage du solide est élevée.

$$\gamma_l > \gamma_c \quad (IV.20)$$

### III.4.2- Contributions polaires et dispersives à l'énergie de surface d'un matériau.

#### - Définitions des contributions polaires et dispersives

Elles permettent d'évaluer le caractère hydrophile et hydrophobe d'un solide coalesceur.

L'énergie d'une interface est liée aux forces dispersives ou forces de van der Waals et aux forces d'attractions de types polaires

Selon WU [72] l'énergie d'une interface solide  $\gamma_s$  est la somme des forces dispersives  $\gamma_s^d$  et des forces polaires  $\gamma_s^p$  donnée par la relation IV.21

$$\gamma_s = \gamma_s^d + \gamma_s^p \quad (IV.21)$$

$\gamma_s^d$  : forces dispersives,  
 $\gamma_s^p$  : forces polaires.

#### - Principe de la méthode de Wu

Il a été remarqué que la tension critique de mouillage défini par Zisman de divers matériaux testés est proche de la somme des forces polaires et dispersives déterminées par les méthode de WU, ce qui permet d'écrire la relation suivante :

$$\gamma_c = \gamma_s^d + \gamma_s^p = \gamma_s \quad (IV.22)$$

La tension critique de mouillage d'un matériau est donc égale à son énergie de surface.

Ce paramètre permet de prévoir la mouillabilité d'un matériau; il est comparable au HLB d'un agent tensio-actif.

#### - Principe de la méthode de Hamilton

Cette méthode, mise au point par Hamilton [73], permet d'évaluer le degrés d'hydrophilie d'une surface solide par application des relations de Fowkes et Tamai.

Suite à la relation (IV. 2), la tension interfaciale entre un solide et un liquide est égale à :

$$\gamma_{sl} = \gamma_s + \gamma_l - Wadh(sl)$$

Fowkes évalue le travail d'adhésion dans le cas particulier où seules les forces dispersives interviennent au niveau de la surface solide par la relation suivante [15,63,73]

$$W_{adh}(sl) = 2 (\gamma_s^d \cdot \gamma_s^d)^{1/2} \quad (IV.23)$$

d'où l'équation de Fowkes :

$$\gamma_{sl} = \gamma_s + \gamma_l - 2 (\gamma_s^d \cdot \gamma_s^d)^{1/2} \quad (IV.24)$$

Tamai quand à lui a appliqué la relation de Fowkes dans un cas général où interviennent et les forces dispersives et les force polaires en écrivant l'équation suivante [73]:

$$\gamma_{sl} = \gamma_s + \gamma_l - 2 (\gamma_s^d \cdot \gamma_s^d)^{1/2} - I_s/l \quad (IV.25)$$

où  $I_s/l$  est le travail d'adhésion dû aux forces de types polaires.

Le principe de Hamilton est basé sur le fait que les contributions dispersives de l'eau et du n.octane sont égales. Aussi pour évaluer le degré d'hydrophilie, il faudra déterminer l'angle de contact d'une goutte de n.octane sur la surface d'un solide en présence d'eau.

La détermination de cet angle de contact ( $\theta_{o/w}$ ), permettra d'évaluer  $I_s/w$  caractérisant le degré d'hydrophilie du solide.

Dans le cas où  $I_s/w$  est nul ou faible le solide est apolaire.

Dans le cas où le solide présente un caractère polaire, sa polarité sera d'autant plus grande que  $I_s/w$  est grand.

La méthode de Hamilton permet de classer par ordre d'hydrophilie croissante les matériaux.

#### IV. RESUME

En résumé, la méthode de Zisman permet de sélectionner les matériaux les plus hydrophobes. La méthode de Wu permet la détermination des contributions polaires et dispersives et ce à partir de la méthode de Zisman. La méthode de Hamilton confirme les résultats obtenus par la méthode de WU.

En général, on classe les matériaux en deux groupes [71]:

- 1- Les matériaux à haute énergie de surface qui recouvrent l'ensemble des métaux et alliages métalliques, dont les énergies de surface varient de quelques centaines à quelques milliers d'erg/cm<sup>2</sup>.
- 2- Les matériaux à faible énergie de surface qui sont en général des macropolymères correspondant aux matières plastiques et dont l'énergie de surface varie de quelques erg/cm<sup>2</sup> (18 erg/cm<sup>2</sup> pour le polytétrafluoroéthylène (P.T.F.E)) à quelques centaines d'erg/cm<sup>2</sup> (cellulose)

Le comportement d'un solide vis à vis des liquides en présence est un facteur très important et dépend essentiellement du revêtement de ce solide. Aussi, les liquides présentant une tension superficielle inférieure ou égale à la tension critique du matériau (voir l'équation IV.19) mouillent ce matériau.

En présence d'une phase continue dont la tension superficielle est de  $72 \text{ erg/cm}^2$  et d'une phase hydrocarbure, dont les tensions superficielles varient généralement entre  $25$  et  $35 \text{ erg/cm}^2$ , la mouillabilité vis à vis des deux phases dépendra de la tension critique de mouillage du matériau. Les matières plastiques présentant une faible énergie de surface, donc une tension critique inférieure à la tension superficielle de l'eau, sont des matériaux exclusivement hydrophobes. Par contre, les matériaux à haute énergie de surface dont la tension critique est supérieure aux tensions superficielles des deux phases, sont mouillés par tous les liquides, en particulier par la phase aqueuse.

## V. EFFET DE LA MOUILLABILITE SUR LES FORCES CAPILLAIRES AU NIVEAU DE LA SURFACE DE RELARGAGE [15]

La surface de relargage va jouer le rôle d'une membrane séparative qui permettra le passage de l'une des phases selon sa mouillabilité. Celle-ci est schématisée par la figure IV.6 [15].

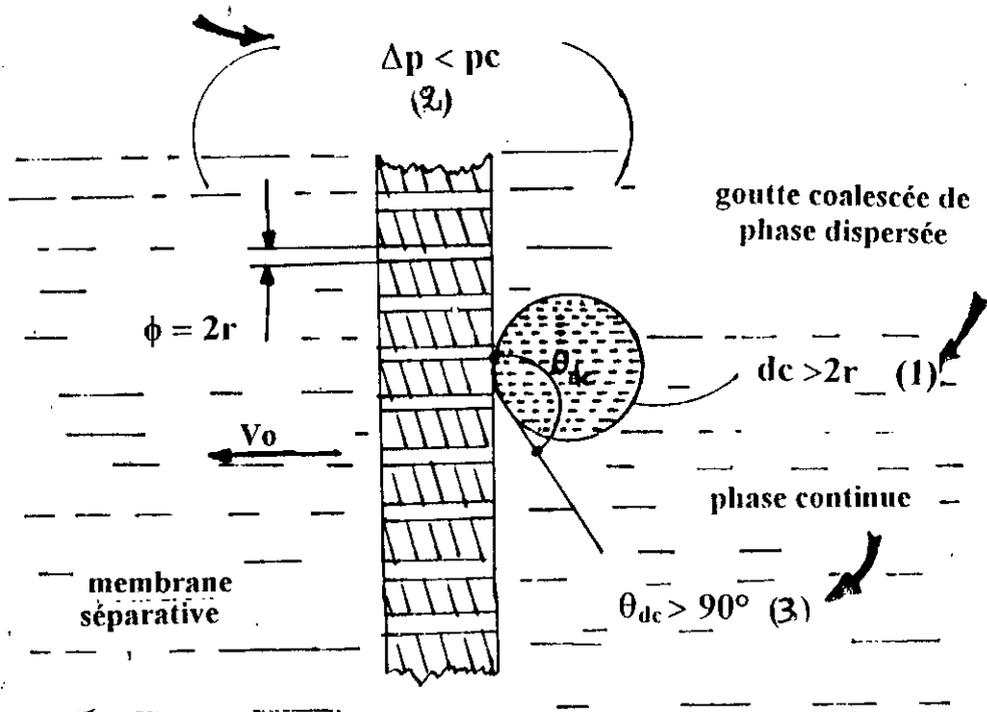


Figure IV.6 : Schéma représentant les différentes conditions de séparation d'une membrane séparative [15].

Deux paramètres seront considérés:

- La pression différentielle ( $\Delta P$ ) de part et d'autre de la membrane .

Les bornes de cette membrane seront soumises à une pression différentielle ( $\Delta P$ ) définie par l'équation de Laplace par la relation suivante :

$$\Delta P = \frac{2\gamma_{o/w} \cdot \cos\theta_{o/w}}{a} \quad (\text{IV.26}) \quad [15].$$

$\gamma_{o/w}$  : tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue

$\theta_{o/w}$  : angle de contact vis-à-vis du solide de la phase dispersée huile (o) en présence de la phase continue (w) ,

a : rayon du drip-point de la surface de relargage de la phase dispersée

- La pression capillaire ( $P_c$ ) due aux interactions capillaires phase dispersée - phase continue - solide , dans les capillaires du garnissage et de la surface de relargage est donnée par la loi de Jurin selon la relation suivante :

$$P_c = \frac{2 \gamma_{o/w} \cdot \cos\theta_{o/w}}{r} \quad (\text{IV.27}) \quad [15].$$

où

r : diamètre des pores

Les forces capillaires dépendent:

- de la tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue ;
- des dimensions des pores de la membrane ;
- de l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  .

Si l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  caractérisant la mouillabilité préférentielle est supérieur à  $90^\circ$  , la pression capillaire est négative et la membrane tend à s'opposer au passage de la phase dispersée coalescée . Elle est donc préférentiellement mouillée par la phase continue .

Si l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  est inférieur à  $90^\circ$  , la pression capillaire est positive . Dans ce cas la membrane s'oppose au passage de la phase continue . Elle est donc mouillée préférentiellement par la phase dispersée

En résumé trois conditions simultanées sont nécessaires pour assurer la séparation [15]. La figure IV.6 résume ces conditions :

Condition 1: Le diamètre des gouttelettes  $d_c$  de la phase coalescée doit être supérieur au diamètre des pores r de la membrane séparative :

$$d_c > 2r \quad (\text{IV.28})$$

Condition 2 : La pression différentielle  $\Delta P$  aux bornes de la membrane doit être inférieure à la pression capillaire :

$$\Delta P < P_c \quad (\text{IV. 29})$$

Condition 3 : La membrane séparative doit être préférentiellement mouillée par la phase qui doit traverser la membrane , qui est dans notre cas la phase continue.

Dans ce cas , l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  doit être supérieur à  $90^\circ$  ( voir figure IV.6) et la pression capillaire donnée par la loi de Jurin par la relation IV.27 est négative . La membrane tend à s'opposer au passage de la phase dispersée coalescée.

$$P_c = \frac{2 \gamma_{o/w} \cdot \cos\theta_{o/w}}{r} < 0$$

# CHAPITRE V : PROCEDURE EXPERIMENTALE

## I. INTRODUCTION

## II. MONTAGE EXPERIMENTAL

II.1 - Générateur d'émulsion

II.2 - Cellule de séparation

## III. MATERIAUX COALESCEURS

III.1 - Matériau hydrophile

III.2 - Matériau hydrophobe siliconé

III.3 - Matériau hydrophobe fluoré

III.4 - Rugosité des matériaux

## IV. LES EMULSIONS A TRAITER

## V. TECHNIQUES ANALYTIQUES

V.1 - Détermination des tensions superficielles et interfaciales

V.2 - Evaluation de la mouillabilité des matériaux

V.2.1 - Evaluation qualitative

V.2.2 - Evaluation quantitative

V.3 - Mesure de la turbidité

V.4 - Mesure des temps de coalescence

V.5 - Analyse granulométrique des émulsions

V.6 - Mesure de la concentration globale en hydrocarbure

V.7 - Mesure du potentiel Zêta

## I. INTRODUCTION

Le but de ce chapitre est de décrire le dispositif expérimental, les techniques ainsi que les processus opératoires utilisés pour tester les différents types de cellules coalescentes.

## II. MONTAGE EXPERIMENTAL

La figure V.1 caractérise le schéma du montage expérimental utilisé lors de cette étude. Il se compose :

- d'un générateur d'émulsion ,
- d'une cellule de séparation

### II.1- Générateur d'émulsion .

Le générateur d'émulsion utilisé au cours de notre étude est un venturi en verre (1). Il permet une souplesse de réglage importante en ce qui concerne la granulométrie de l'émulsion et les débits de la phase dispersée . Il permet également de bien visualiser le type d'émulsion générée .

Ce type de venturi en fonctionnement est caractérisé par la photo de la figure V.2. Il est alimenté en eau, en continu par l'intermédiaire d'un débitmètre (2). Un tube (3) d'injection de la phase hydrocarbure à disperser est soudé au niveau de la zone de striction du venturi .

La phase hydrocarbure est injectée à partir d'un réservoir (4) par l'intermédiaire d'une pompe péristaltique (5) à débit réglable. En agissant sur le débitmètre (2), on peut faire varier la granulométrie de l'émulsion hydrocarbure-eau à traiter. De même en modifiant le débit de la pompe (5), on peut faire varier la concentration en hydrocarbure de la dispersion générée par le venturi. Quant à la pompe (6), elle permet l'injection à partir du réservoir (7) d'une solution aqueuse de tepsio-actif.

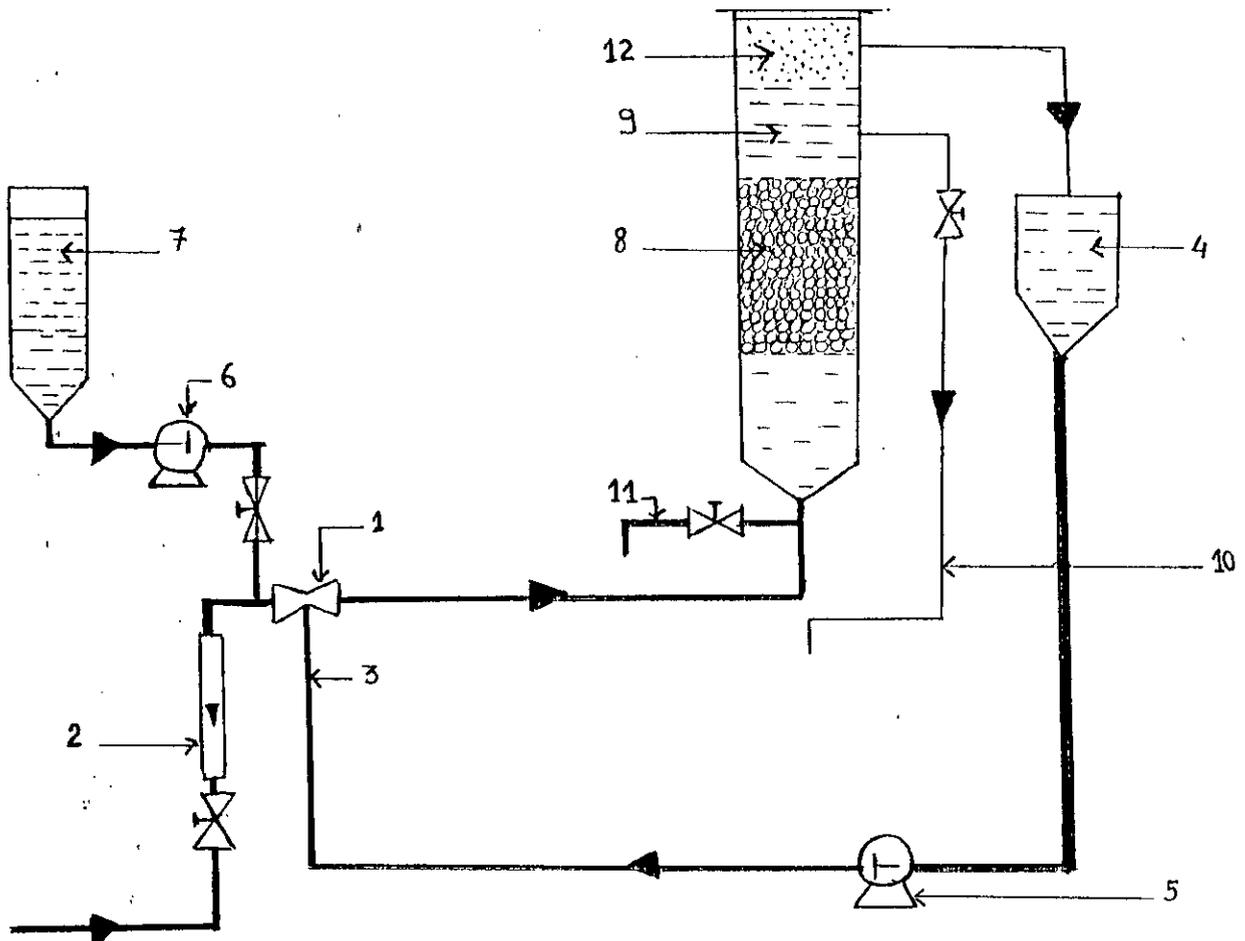


Figure V.1 : Schéma du montage expérimentale utilisé

**Générateur d'émulsion :** 1- venturi ; 2- débitmètre à eau ; 3- tube d'injection de la phase hydrocarbure ; 4- réservoir de stockage de la phase hydrocarbure ; 5- pompe d'injection de phase hydrocarbure ; 6- pompe d'injection de solution de tensio-actifs ; 7- réservoir de stockage de solution de tensio-actifs.

**Cellule de séparation :** 8- cellule de coalescence ; 9- décanteur ; 10- sortie de l'effluent après traitement ; 11- prise d'échantillon entrée cellule ; 12- phase hydrocarbure récupérée.



Figure V.2 : Photo du venturi, générateur d'émulsion

## II.2 -Cellule de séparation

La cellule de séparation (8) est représentée par la figure V.3 ,elle est constituée d'une colonne en plexiglas ( 8) de diamètre intérieur de 38mm , à l'intérieur de laquelle se trouve le matériau coalesceur (2) qui va permettre la coalescence de l'émulsion provenant du générateur précédemment décrit .

Une grille en acier inoxydable ( 9 ) est placée au bas de la colonne supportant ainsi le garnissage et est précédée par une zone tampon (7) assurant une homogénéisation de l'émulsion'. Cette colonne est suivie d'un décanteur (3) constitué d'une colonne en plexiglas de même section que la cellule de coalescence et de hauteur  $H= 12$  cm .

A l'intérieur de cette colonne s'effectue la séparation des 2 phases. La phase continue épurée est récupérée à la partie inférieure du décanteur (6) . La phase hydrocarbure coalescée est récupérée au niveau de la partie supérieure de décanteur par un trop plein (4).

Les échantillons d'eau à analyser sont pris à l'entrée de la cellule coalescente (1) constituant l'échantillon à traiter et à la partie inférieure du décanteur constituant l'échantillon traité( 6).

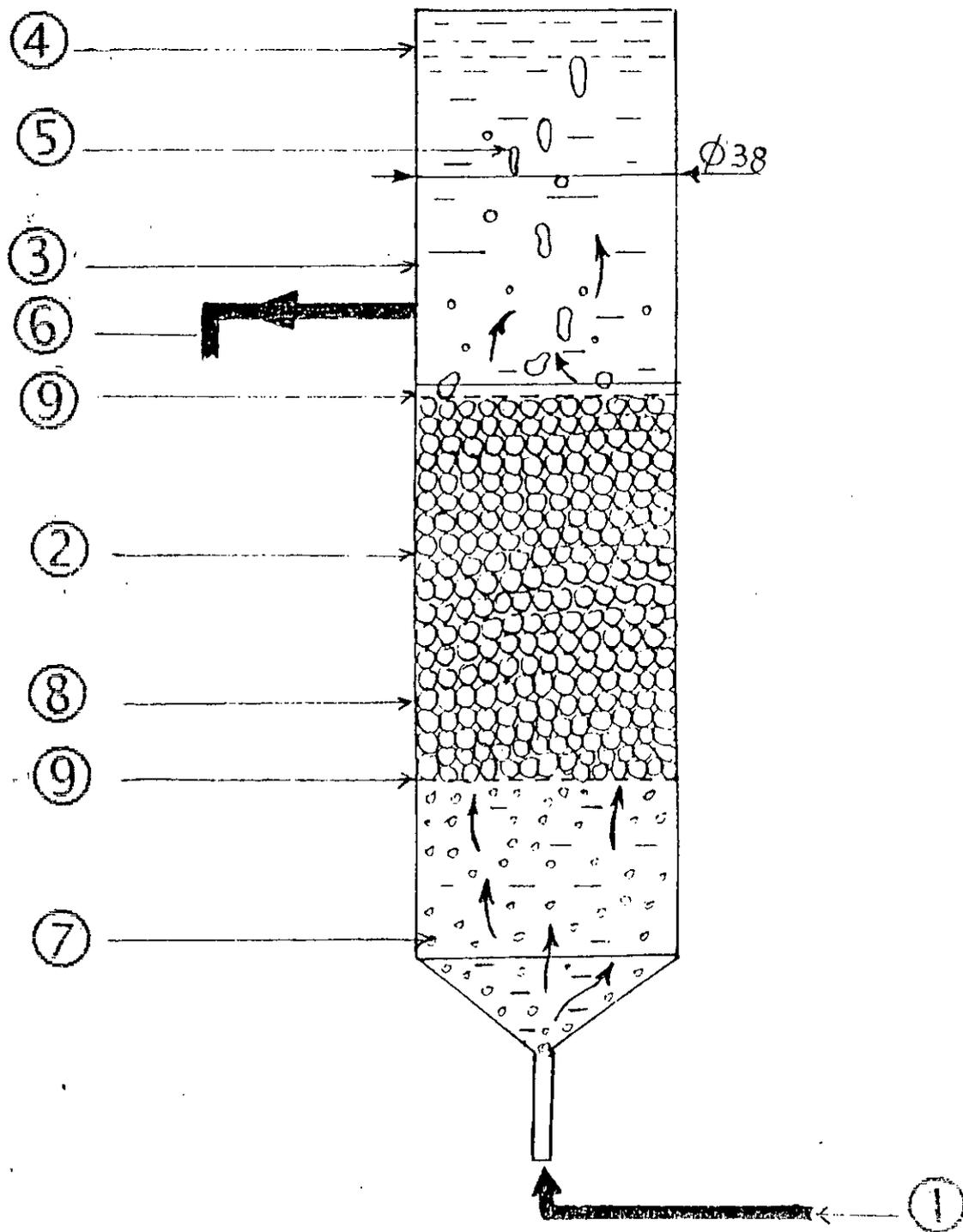


Figure V.3 : Schéma de colonne de coalescence équipée de son décanteur de tête.

1- Injection de l'émulsion à traiter ; 2- Matériau coalesceur ; 3- Décanteur ; 4- Zone de récupération de la phase hydrocarbure ; 5- Gouttes coalescées d'hydrocarbure ; 6 - Sortie de l'effluent après traitement ; 7- Zone tampon d'homogénéisation de l'effluent à l'entrée de la colonne ; 8- Colonne de coalescence en plexiglas ; 9 - Grille en acier inoxydable .

### **III. MATERIAUX COALESCEURS**

Lors des essais, nous avons utilisé 3 types de matériaux granulaires ayant des caractéristiques différentes du point de vue mouillabilité, état de surface et granulométrie. Les différents matériaux utilisés sont : décrits ci-après

#### **III.1- Matériau hydrophile**

C'est un matériau constitué de billes de verre, de forme bien définie et d'une structure superficielle lisse. Les granulométries utilisées sont de : 1,25mm - 2,17mm - 4,06mm et 9,8mm.

Afin d'obtenir un caractère hydrophile marqué, ces billes ont été décapées superficiellement au moyen d'une solution de bichromate de potassium.

#### **III.2 - Matériau hydrophobe siliconé**

Ce type de matériau est constitué de billes de verre, de granulométrie de 1,25 mm - 2,17mm - 4,06mm et 9,8mm. Pour conférer à ces billes un caractère hydrophobe, celles-ci ont été traitées par une solution à base de silicone [74]

#### **III.3- Matériau hydrophobe fluoré**

Ce matériau est constitué de billes métalliques de granulométrie de 4.65 mm. Celles-ci ont été traitées par une solution de polytétrafluoroéthylène pour leur donner un caractère hydrophobe marqué. Ce traitement a été effectué à l'E.A.W.A ( Entreprise d'Aluminium de la Wilaya d'Alger ) [75].

#### **III.4- Rugosité des matériaux**

Dans ce cas, nous avons utilisé des billes de verre. La rugosité de ces billes a été obtenue par un traitement de surface avec l'acide fluorhydrique ; que nous avons par la suite traité pour leur conférer une mouillabilité préférentielle par rapport à l'une des phases.

### **IV. LES ÉMULSIONS A TRAITER**

Notre étude a porté sur des émulsions secondaires directes (O/W), constituées d'une phase eau et d'une phase hydrocarbure.

Nous avons choisi un seul produit qui est un kérosène aliphatique, dans le but de nous faciliter l'étude, nous permettre de mieux comparer les résultats, et également pour nous permettre une visualisation des phénomènes. En effet cet hydrocarbure a été coloré selon nos expériences soit par le rouge de cérol soit par le jaune de méthyle. Ce sont des colorants qui permettent de colorer la phase organique sans colorer la phase continue.

Le choix du kérosène se justifie également par le fait qu'il possède la propriété de présenter une tension interfaciale élevée avec l'eau.

Nous avons utilisé de l'eau du réseau comme phase continue.

Les caractéristiques de l'émulsion à traiter sont données par le tableau V.1.

Constantes physiques	Phase dispersée (kérosène)	Phase continue (eau)
$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	0.789	0.998
$\gamma$ (dyne/cm)	27.1	71.2
$\mu$ (m.pa.s)	1.07	1.08

Tableau V.1 : Caractéristiques des deux phases.

Le système diphasique : couple kérosène / eau est caractérisé par :

- la tension interfaciale :  $\gamma$  o/w (dynes / cm) = 35.

## V. TECHNIQUES ANALYTIQUES

### V.1- Détermination des tensions superficielles et interfaciales

Afin de caractériser les phases hydrocarbure et eau utilisées, nous avons déterminé les valeurs respectives des tensions superficielles de chaque phase.

Le système diphasique est quant à lui caractérisé par la mesure de la tension interfaciale.

Ces mesures sont aussi indispensables pour évaluer le travail d'adhésion entre la phase hydrocarbure et le matériau coalesceur en présence d'eau.

Pour déterminer ces deux paramètres, nous avons utilisé un tensiomètre à équilibrage automatique de type prolaboTD 2000 basé sur la méthode d'arrachement d'une lame de platine. Cet appareil est représenté sur la photo de la figure V.4.



Figure V.4 : Photo du tensiomètre utilisé.

## V.2- Evaluation de la mouillabilité des matériaux

### V.2.1 -Evaluation qualitative

La mouillabilité d'un solide coalesceur de type granulaire peut être évaluée qualitativement par une méthode visuelle [17] qui consiste à placer dans un erlen meyer :

- une phase continue (eau) ,
- des particules du solide à étudier,
- une phase dispersée (hydrocarbure).

Après une agitation vigoureuse, des prises de vue stéréoscopique du solide coalesceur considéré déterminent approximativement le type de mouillabilité du matériau coalesceur

### V.2.2 -Evaluation quantitative

Nous avons évalué la mouillabilité des matériaux coalesceurs en utilisant une cellule de mouillabilité représentée schématiquement par la figure V.5

Cette cellule permet de mesurer l'angle de contact de la phase dispersée sur une surface solide en présence d'eau . Cet angle de contact est caractéristique de la mouillabilité du matériau coalesceur considéré .

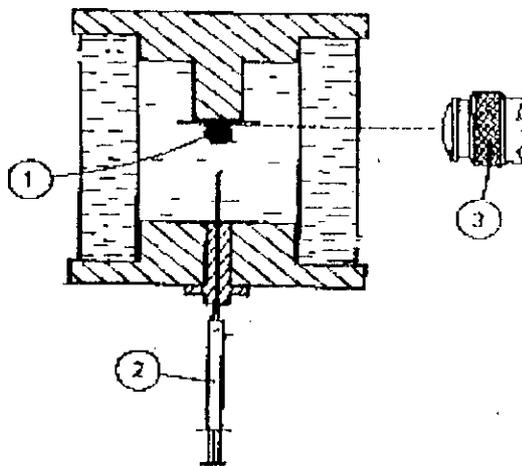


Figure V.5 : Schéma de la cellule de mouillabilité utilisée

1-Echantillon-testé ; 2- Seringue d'injection de la goutte d'hydrocarbure ; 3-Microscope stéréoscopique.

L'échantillon 1 testé est placé sur un plot central de la cellule . Ensuite cette cellule remplie d'eau est renversée. Au moyen d'une seringue 2 , on forme une goutte de 20 $\mu$ l de phase hydrocarbure sur la surface de l'échantillon . L'angle de contact caractéristique de la mouillabilité du matériau est déterminé à l'aide d'un microscope stéréoscopique .En effet des prises de vue stéréoscopiques sont effectuées

La photo figure V.6 représente l'ensemble cellule et stéréoscope utilisé au cours de notre étude .

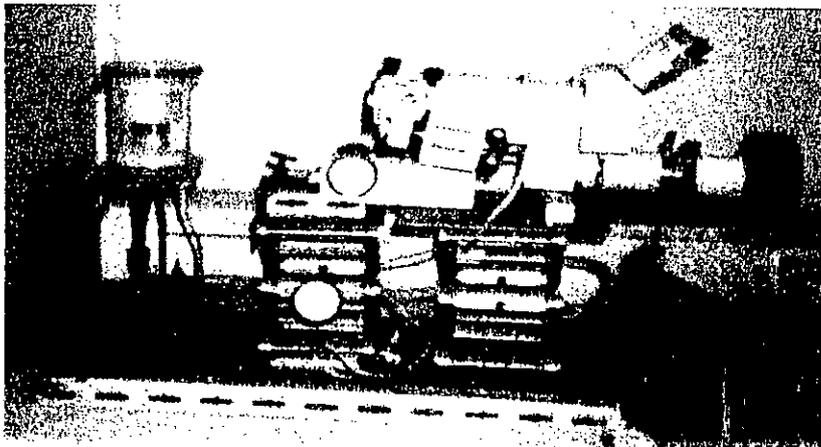


Figure V.6 : Photo de l'ensemble cellule de mouillabilité et microscope stéréoscopique.

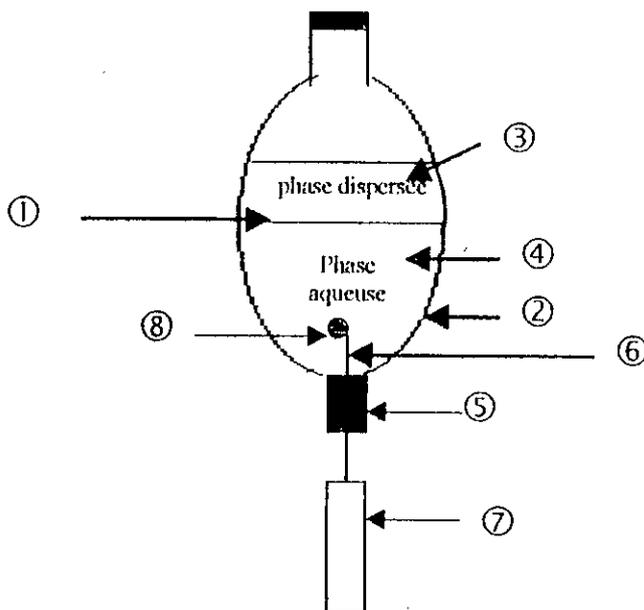
### V.3- Mesure de la turbidité

L'utilisation d'un spectrophotomètre UV-Visible en turbidimétrie permet d'évaluer la stabilité d'une émulsion en suivant dans le temps l'évolution de la turbidité par mesure de l'absorbance .

Des émulsions Kérosène-eau stabilisées par des agents tensio-actifs sont générées par des ultra- sons . Un échantillon de chaque émulsion générée est prélevé pour suivre l'évolution de la turbidité dans le temps à une longueur d'onde de 270 nm . La mesure est effectuée en continu pendant 5 heures dans les conditions d'essais . Un enregistreur branché sur le spectrophotomètre UV-Visible de type PERKIN ELMER LAMBDA 3 permet de suivre en continu l'évolution de l'absorbance en fonction du temps .

### V.4- Mesure des temps de coalescence

La stabilité d'une émulsion peut être définie par la mesure du temps de coalescence d'une goutte d'hydrocarbure à l'interface hydrocarbure -eau [23] . Pour cela , nous avons utilisé un dispositif expérimental représenté par la figure V.7, permettant la mesure des temps de coalescence des gouttes de kérosène à l'interface kérosène - eau.



**Figure V.7** : Montage expérimental pour la mesure des temps de coalescence des gouttes de la phase dispersée à l'interface Kérosène- eau.

Une interface (1) phase hydrocarbure - phase aqueuse est créée dans une cellule en verre (2) de forme conique . La phase hydrocarbure (3) de 1 cm d'épaisseur est colorée en jaune par du jaune de méthyle , la phase aqueuse(4 ) étant incolore. A la partie inférieure de la cellule est placé un raccord SVL (5) emprisonnant une pastille en caoutchouc , à partir de laquelle sont injectées par l'intermédiaire d'une aiguille (6) d'une microseringue (7), des gouttelettes d'hydrocarbure colorées en rouge par du rouge de cérol de 20 $\mu$ l. ( 8) . Le jeu de couleur de la phase coalescée et des gouttelettes permet de visualiser les phénomènes et l'effet de la coalescence .

Les temps de coalescence des gouttelettes sont mesurés au fur et à mesure que celles-ci arrivent au niveau de l'interface huile- eau.

### V.5- Analyse granulométrique des émulsions

L'analyse granulométrique des émulsions nous permet de calculer le diamètre moyen des émulsions, paramètre déterminant pour leur stabilité.

Cette analyse est effectuée au moyen d'un compteur de particules (Coulter TA II) , permettant de déterminer les répartitions granulométriques en nombre et en poids des gouttelettes de Kérosène. Les calculs sont effectués directement à l'aide d'un logiciel sur un ordinateur type Bull Micral 40.

## **V.6- Mesure de la concentration globale en hydrocarbure**

Pour évaluer la teneur globale en hydrocarbure, nous avons utilisé un spectrophotomètre infrarouge de type PERKIN ELMER PARAGON 1000 PC.

La phase dispersée est au préalable, extraite de la phase continue par un solvant (tétrachlorure de carbone), puis analysé au spectrophotomètre infrarouge [76]

## **V.7- Mesure du potentiel Zêta**

Afin de caractériser la stabilité des émulsions hydrocarbure -eau , nous avons déterminé le potentiel zêta des microgouttelettes d'huile dans l'eau ,en absence et en présence d'agents tensio-actifs .

Les microgouttelettes de la phase dispersée porteuses de charges superficielles sont soumises à un champs électrique où la mobilité électrophorétique de celles-ci est mesurée afin de calculer le potentiel électrocinétique ou potentiel zêta . Nous avons utilisé un zétamètre de type Analyseur modèle 1202.

# **CHAPITRE VI: COMPORTEMENT EXPERIMENTAL DES DIFFERENTS TYPES DE CELLULES DE COALESCENCE.**

## **I. INTRODUCTION**

## **II. DEROULEMENT D'UN ESSAI**

## **III. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES**

### **III.1. Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe siliconé**

#### **III.1.1. Traitement de surface**

#### **III.1.2. Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur**

#### **III.1.3. Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur**

#### **III.1.4. Caractérisation granulométrique des émulsions kérosène- eau traitées**

#### **III.1.5. Résultats expérimentaux qualitatifs.**

#### **III.1.6. Résultats expérimentaux quantitatifs**

##### **III.1.6.1. Influence de la granulométrie du matériau coalesceur hydrophobe**

##### **III.1.6.2. Influence de la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence**

##### **III.1.6.3. Influence de l'état de surface du matériau coalesceur (rugosité).**

##### **III.1.6.4. Influence de la nature physico- chimique de la surface de relargage**

##### **III.1.6.5. Influence du nombre d'étages de coalescence**

### **III.2. Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène ( P.T.F.E).**

#### **III.2.1. Traitement de surface**

#### **III.2.2. Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur**

#### **III.2.3. Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur**

#### **III.2.4. Résultats expérimentaux qualitatifs**

#### **III.2.5. Résultats expérimentaux quantitatifs**

#### **III.2.6. Influence de la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence**

## **IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES**

### **IV.1. Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau hydrophile**

### **IV.2. Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur**

### **IV.3. Résultats expérimentaux qualitatifs**

### **IV.4. Résultats expérimentaux quantitatifs**

#### **IV.4.1. Influence de la granulométrie du matériau coalesceur**

#### **IV.4.2. Influence de la vitesse de passage de l'émulsion**

## **V. CONCLUSION**

## I. INTRODUCTION

Dans cette partie de l'étude avons testé, tester les différentes cellules de coalescence en tenant compte :

- des caractéristiques de l'émulsion à traiter (nature, granulométrie...);
- du matériau coalesceur ( granulométrie ,énergie de surface , état de surface... );
- de la nature physico- chimique de la surface de relargage ;
- de la cellule de coalescence ( hauteur, vitesse de passage.....);

ce qui a permis de déterminer les différents paramètres qui limitent le processus de séparation par coalescence.

En effet ,nous avons utilisé au cours de notre étude, deux colonnes de coalescence et différents matériaux coalesceurs, de structure granulaire, dont la nature physico-chimique et la granulométrie varient d'un matériau à l'autre.

Les essais ont porté sur le couple kérosène/eau , émulsion secondaire stable. Nous avons testé les performances de ces cellules de coalescence vis à vis de ce type d'émulsion et analysé les différents paramètres qui interviennent dans le procédé de séparation.

## II. DEROULEMENT D'UN ESSAI

Notre installation pilote comprend un générateur d'émulsion (venturi) alimentant la colonne de coalescence. Avant chaque essai on se fixe ,comme variables d'entrée :

- 1- la concentration  $C_0$  de l'émulsion à traiter ;
- 2- la granulométrie de l'émulsion ;
- 3- le matériau coalesceur :
  - a) sa nature ;
  - b) sa granulométrie .
- 4- la hauteur de la cellule de coalescence ;
- 5- le débit de l'émulsion (l/h) ou la vitesse de passage en (cm/s);
- 6- le nombre d'étages de coalescence;
- 7- la nature physico chimique de la surface de relargage.

La variable de sortie étant la teneur résiduelle en kérosène ( $C_s$ ).

## III. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES

Une première série d'essais est réalisée sur des matériaux coalesceurs hydrophobes. Ces derniers présentent chacun une tension critique de mouillage de l'ordre de 21 à 23 dynes/cm pour le matériau traité à la silicone et de 18 dynes/cm pour le matériau traité au polytétrafluoroéthylène [61]. Ces deux types de matériaux utilisés se caractérisent par une mouillabilité préférentielle par la phase hydrocarbure en présence d'eau.

### III.1- Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe siliconé

La photo de la figure VI.1 caractérise ce type de matériau .

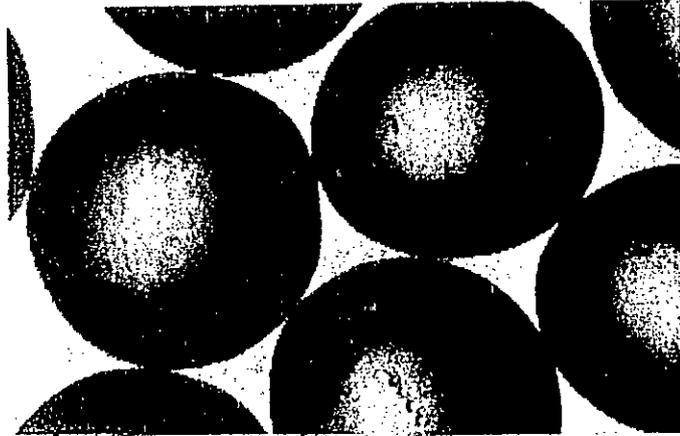


Figure VI.1. Photo caractéristique du matériau hydrophobe siliconé testé avant passage de l'émulsion.

### III.1.1- Traitement de surface

Afin d'obtenir une mouillabilité préférentielle vis à vis de la phase kérosène, un matériau hydrophile est rendu hydrophobe par traitement à la silicone.

Ce revêtement est effectué en trois étapes [74]:

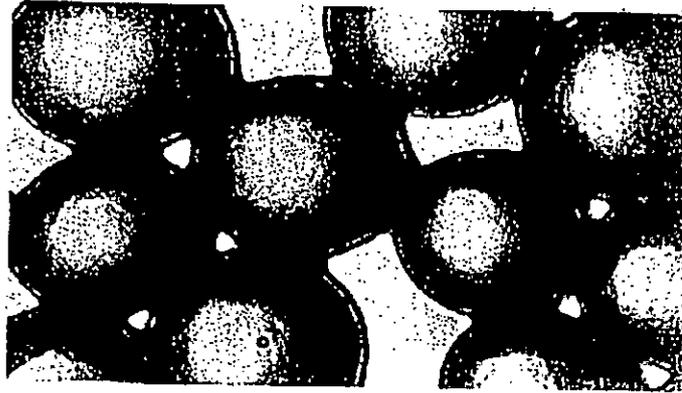
- 1-Trempage du matériau dans une solution de silicone à 2 % en poids dans du tétrachlorure de carbone
- 2-Séchage par chauffage en atmosphère ventilée pendant une heure à 80°C
- 3-Polycondensation du film de silicone par chauffage à haute température (300°C) durant une heure.

### III.1.2- Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur

Afin d'évaluer qualitativement la mouillabilité du matériau hydrophobe testé, nous avons utilisé une méthode déjà décrite au chapitre V consistant à mettre dans un erlen-meyer :

- la phase continue : eau.
- des particules du matériau coalesceur.
- la phase dispersée: kérosène coloré en rouge par du rouge de cérol.

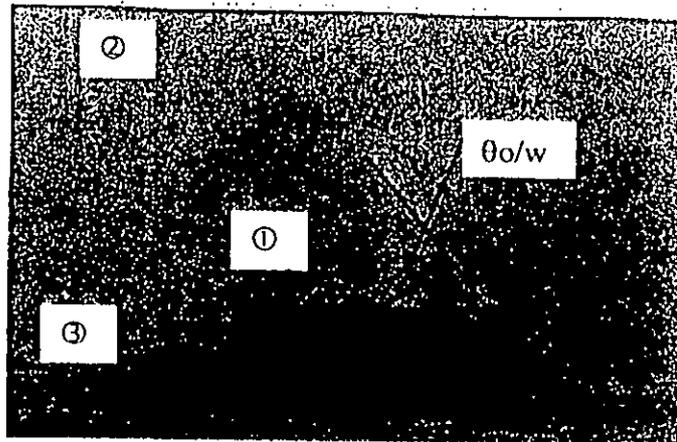
Après agitation vigoureuse, nous observons au microscope, comme le traduit la photo de la figure VI.2, la formation d'un film homogène de kérosène autour du matériau, caractéristique de la mouillabilité préférentielle de ce dernier par la phase dispersée en présence d'eau.



**Figure VI.2.** Mouillabilité préférentielle du matériau coalesceur traité à la silicone par le kérosène dispersé dans l'eau.  
*Phase dispersée sous forme de film rouge.*

### III.1.3- Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur

Une goutte de kérosène déposée sur la surface d'un matériau coalesceur traité à la silicone en présence d'eau prend une configuration d'équilibre illustrée par la photo de la figure VI.3.



**Figure VI.3.** Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact du matériau traité à la silicone (3) en présence d'eau (2).  
*Mouillabilité préférentielle de la surface de coalescence par le kérosène en présence d'eau ( $\theta_{o/w} \sim 62^\circ$ ) (mesuré)*

Connaissant l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  du kérosène en présence d'eau sur la surface du solide coalesceur, la tension interfaciale kérosène - eau ( $\gamma_{o/w}$ ), il est possible de calculer par la relation (VI.1), le travail d'adhésion  $W_{adh}(so)/w$  du kérosène vis à vis de ce matériau.

$$W_{adh}(so)/w = \gamma_{o/w} (1 + \cos\theta_{o/w}). \quad (VI.1)$$

De même, comme nous l'avons vu dans le chapitre IV, la relation de Young permet d'écrire :

$$\cos\theta_{o/w} = (\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}) / \gamma_{o/w} \quad (VI.2)$$

$$\text{soit : } (\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}) = \gamma_{o/w} \cdot \cos\theta_{o/w} \quad (VI.3)$$

A partir de la relation (VI.1) ,il est possible de calculer la différence de tension interfaciale solide-eau ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide- huile ( $\gamma_{s/o}$ ): $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$  caractéristique de la mouillabilité du solide coalesceur considéré.  
Plus la différence sera importante, plus le solide coalesceur aura une mouillabilité préférentielle pour la phase hydrocarbure en présence d'eau.

Le tableau VI.1 résume les valeurs respectives des différents paramètres caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur traité à la silicone .

Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dync/cm)	Travail d'adhésion wadh (so)/w (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) (dync/cm)
62	35	51.41	16.41

Tableau VI.1. Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité du matériau coalesceur testé.

#### III.1.4 - Caractérisation granulométrique des émulsions kérosène-eau traitées

Pour un débit d'eau dans le venturi constant et égal à 8.33 cm<sup>3</sup>/s, soit 30 l/h et un débit de phase de kérosène de 48.32 cm<sup>3</sup>/h, nous obtenons une émulsion hydrocarbure - eau dont les caractéristiques granulométriques sont représentées dans le tableau VI.2 .  
Le diamètre moyen de cette émulsion est de l'ordre de 30µm, la tension interfaciale entre les deux phases, kérosène - eau étant de 35 dynes/cm , le potentiel zêta est de -17,5 mv .

Diamètre de comptage (micron)	% poids
0	0
1.8	0.02
2.3	0.02
2.95	0.03
3.7	0.07
4.65	0.16
5.9	0.48
7.45	1.45
9.4	3.07
11.85	6.33
14.95	9.22
18.85	15.47
23.7	22.44
29.85	25.6
37.65	14.57
47.5	1.08

Tableau VI.2. Caractéristiques granulométriques d'une émulsion kérosène-eau obtenue dans les conditions standards de génération d'émulsion.

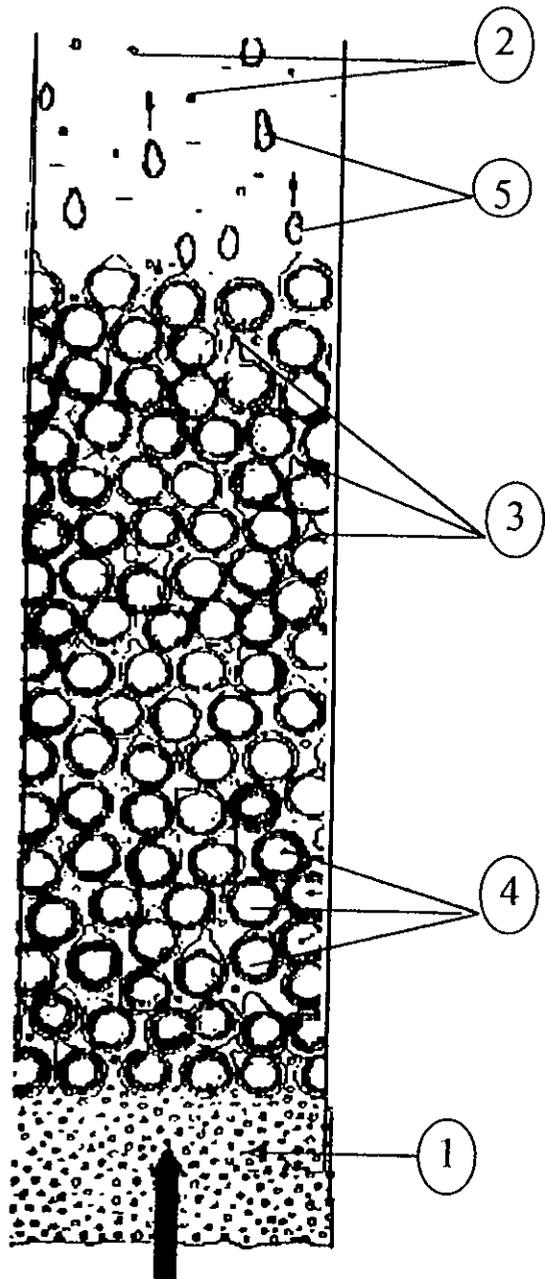
### III.1.5 - Résultats expérimentaux qualitatifs.

Le fonctionnement de la cellule de coalescence après injection de l'émulsion kérosène-eau comporte deux phases successives :

1) une phase transitoire durant laquelle les gouttes de la phase dispersée interceptent et adhèrent au matériau coalesceur, pour amorcer la formation du film de la phase dispersée. Ce dernier se déplace à l'intérieur du lit coalesceur, selon des cheminements préférentiels, et la phase coalescée n'est pas encore relarguée au niveau de la surface de relargage.

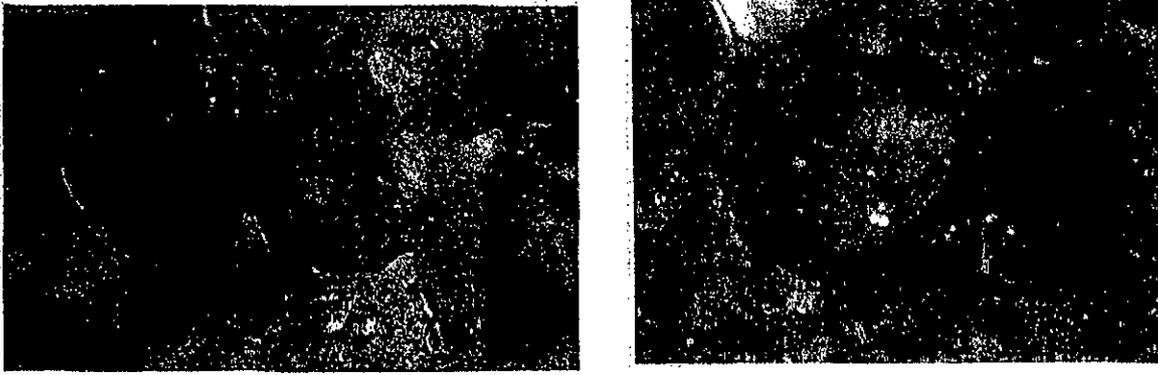
2) une phase correspondant au régime permanent, qui se traduit, comme le montre la figure VI.4, par le relargage de grosses gouttes de kérosène décantant instantanément. L'eau traitée est d'une parfaite limpidité, ce qui permet de vérifier la très bonne séparation hydrocarbure-eau qu'il est possible d'obtenir avec ce type de cellule.

Les photos des figures VI.5 et VI.6 mettent en évidence la formation d'un film continu rouge de kérosène autour du matériau coalesceur aboutissant à la formation et à la libération d'une goutte de la phase coalescée.

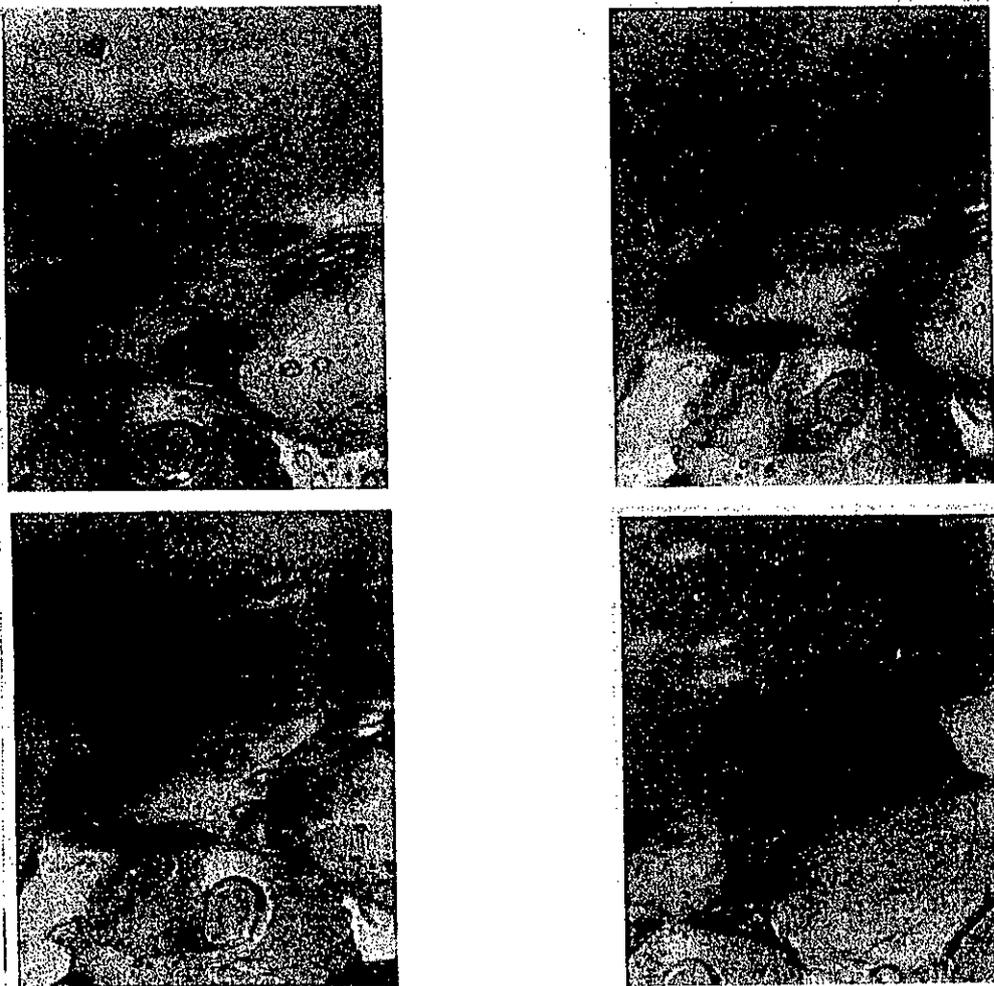


**Figure VI.4.** Principe de la coalescence en régime permanent.

*1-émulsion secondaire initiale avant traitement ; 2-émulsion secondaire résiduelle après traitement;  
3-film superficiel d'hydrocarbure assurant la formation de grosses gouttes; 4-matériau hydrophobe;  
5- gouttes d'hydrocarbure coalescées.*



**Figure VI.5.** Photos mettant en évidence la formation d'un film continu de kérosène coloré en rouge autour du matériau coalesceur.



**Figure VI.6.** Photos mettant en évidence la formation d'un film continu de kérosène coloré en rouge et formation d'une goutte de la phase coalescée  
*Coalescence d'une émulsion kérosène-eau.*

### III.1.6 - Résultats expérimentaux quantitatifs

Nous avons procédé à une étude systématique des différents paramètres intervenant lors de la séparation des phases hydrocarbure- eau , pour évaluer leur influences sur le rendement de séparation.

#### III.1.6.1- Influence de la granulométrie du matériau coalesceur hydrophobe

Dans des conditions standards de génération de l'émulsion kérosène - eau :

- débit d'eau sur le venturi :30l/h soit une vitesse de passage de 0.73 cm/s ,
- débit de kérosène de 0.0483l/h soit une concentration de 1270.8mg/l environ,
- hauteur des cellules utilisées :H=5 cm et H= 10 cm,
- diamètre intérieur de la cellule de coalescence;38 mm,
- surface de relargage constituée d'une grille hydrophile en acier inoxydable,

nous avons procédé à 2 séries d'essais ,en utilisant dans chaque cas un matériau hydrophobe siliconé, de granulométrie  $d_p$  différente: 1.25mm , 2.17mm, 4.06mm et 9.8mm, présentant une énergie de surface  $\gamma_s=23$  dynes/cm environ et un travail d'adhésion  $W_{adh}(so)/w=51.41$  erg/cm<sup>2</sup>. Nous avons évalué la concentration résiduelle de la phase dispersée à la sortie de la cellule et calculé le rendement de séparation en fonction de la granulométrie du garnissage :

$$\% \text{ séparation} = \left( \frac{C_o - C_s}{C_o} \right) \cdot 100 \quad (\text{VI.4})$$

avec :

$C_o$  : concentration de l'effluent en kérosène à l'entrée de la cellule ;

$C_s$  : concentration de l'effluent en kérosène à la sortie de la cellule.

La figure VI.7 représente l'évolution du rendement de séparation des deux cellules de coalescence testées en fonction de la granulométrie du matériau coalesceur.

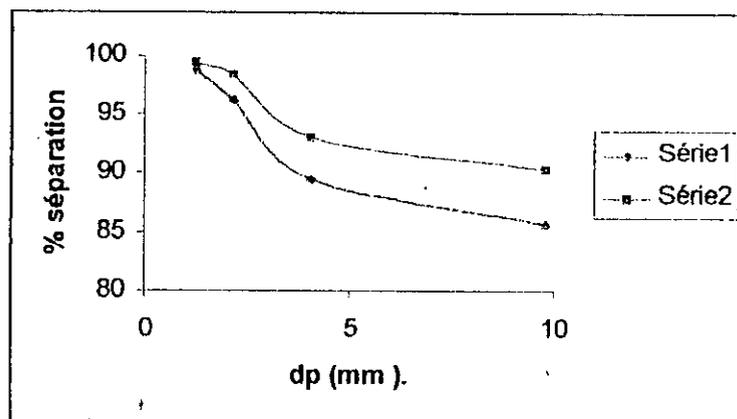


Figure VI.7. Influence de la granulométrie du matériau coalesceur sur le rendement de séparation.  
Série1 : H=5 cm. ; Série2 : H=10 cm.

Les courbes 1,2 de la figure VI.7 montrent clairement que la granulométrie du matériau coalesceur ( $d_p$ ) influence le rendement de séparation de la cellule de coalescence. Ce paramètre apparaît dans la relation (III.2) citée dans le chapitre III.

$$\eta_i = 3/2 (d_e/d_p)^2 \quad (VI.5)$$

Où  $\eta_i$  représente le facteur d'efficacité de contact par interception des microgouttes de la phase dispersée par le solide coalesceur. En effet, cette relation fait apparaître clairement l'importance du rapport ( $d_e/d_p$ ) sur l'interception des microgouttelettes de la phase dispersée par le solide coalesceur. Celle-ci augmente et devient d'autant plus importante que le rapport  $d_e/d_p$  est important.

Il est important de noter que les meilleurs rendements de séparation sont obtenus pour une hauteur  $H=10$  cm. Ceci confirme les résultats obtenus par Yao, Habibian et O'mella [59] en étudiant les filtres à pénétration présentant une analogie avec la coalescence. Ils ont déterminé l'efficacité globale de séparation donnée par la formule ci dessous :

$$\ln C_s/C_0 = - 3/2 (1 - \epsilon) \cdot \alpha \cdot \eta_t \cdot H/d_p \quad (VI.6)$$

Avec:

- $C_s$  : concentration résiduelle de l'émulsion en phase dispersée à la sortie de la cellule
- $C_0$  : concentration initiale de l'émulsion à l'entrée de la cellule ;
- $\epsilon$  : coefficient du vide du lit granulaire ;
- $\alpha$  : facteur d'efficacité de collision ;
- $\eta_t$  : facteur d'efficacité total d'un collecteur;
- $H$  : hauteur du lit ;
- $d_p$  : diamètre moyen du grain de garnissage .

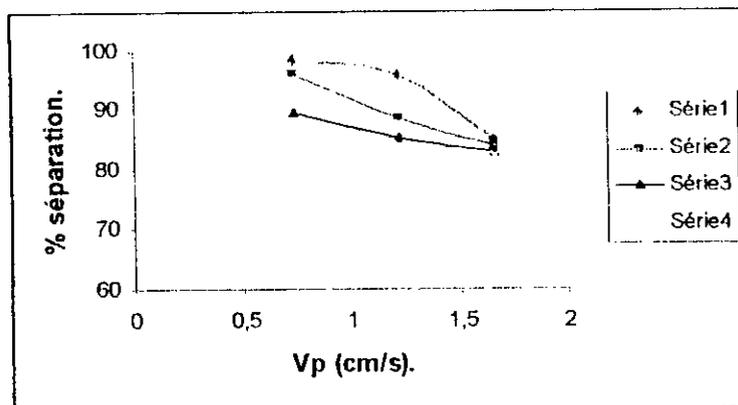
La relation VI.6 fait apparaître clairement l'importance du rapport  $H/d_p$  sur l'efficacité de séparation. Celle ci augmente et devient d'autant plus importante que le rapport  $H/d_p$  est important.

### III.1.6.2- Influence de la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence.

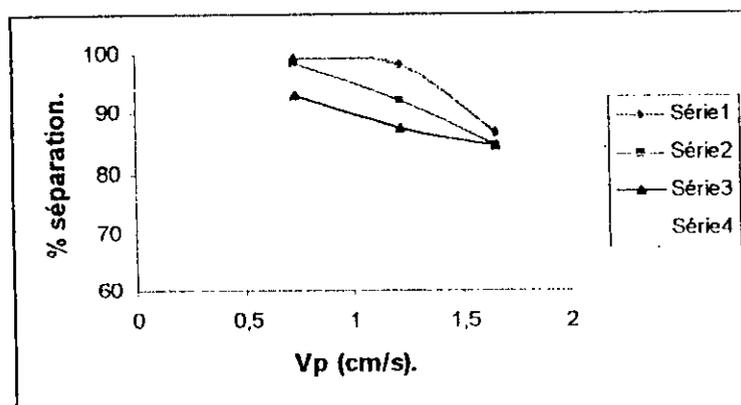
Pour chaque débit fixé, c'est à dire pour chaque vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence de:

- diamètre intérieur de 38 mm
  - surface de relargage constituée d'une grille hydrophile en acier inoxydable,
  - concentration de l'effluent en kérosène à l'entrée de la cellule  $C_0=1270.8$  mg/l,
- nous avons déterminé la concentration résiduelle de la phase dispersée et ce pour différentes granulométries du matériau coalesceur et différentes hauteurs de la cellule de coalescence.

Les figures VI.8.1 et VI.8.2 représentent l'évolution du rendement de séparation en fonction de la vitesse de passage de l'émulsion à travers les cellules de coalescence.



**Figure VI.8.1.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation.  
 Série 1 :  $dp=1.25mm$  ; Série 2 :  $dp=2.17mm$  ; Série 3 :  $dp=4.06mm$  ; Série 4 :  $dp=9.8mm$ .  
 $H=5cm$



**Figure VI.8.2.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation..  
 Série 1 :  $dp=1.25mm$  ; Série 2 :  $dp=2.17mm$  ; Série 3 :  $dp=4.06mm$  ; Série 4 :  $dp=9.8mm$ .  
 $H=10cm$

Ces courbes montrent qu'au delà d'une certaine vitesse de passage, la qualité de l'effluent diminue. Il semblerait qu'à grande vitesse de passage de l'émulsion à travers le garnissage, le laminage du film d'hydrocarbure soit plus important. Aussi les gouttes relarguées sont d'un diamètre plus faible et d'autant plus faible que la granulométrie de l'émulsion au sein du venturi est plus fine. La fréquence de relargage des gouttes de la phase coalescée est plus importante. Celle-ci peuvent être réfractionnées avant leur sortie du fait de la turbulence importante du fluide au sein du coalesceur.

### III.1.6.3- Influence de l'état de surface du matériau coalesceur (rugosité).

Dans le but d'étudier l'influence de l'état de surface du matériau coalesceur sur le rendement de séparation des cellules de coalescence, un matériau coalesceur hydrophile a subi un traitement avec l'acide fluorhydrique lui donnant un aspect rugueux, et un traitement à la silicone lui conférant un caractère hydrophobe.

Les photos de la figure VI.9. illustre le type de mouillabilité de ce type de matériau.



Figure VI.9. Mouillabilité préférentielle du matériau rugueux traité à la silicone par la phase dispersée.  
 (a) : Phase continue sous forme de poches d'eau colorée en bleu avec le bleu de méthyle.  
 (b) : Phase dispersée sous forme de film entourant les billes .

Dans les mêmes conditions expérimentales que précédemment :

- débit d'eau sur le venturi :30l/h soit une vitesse de passage de 0.73 cm/s ,
  - débit de kérosène de 0.0483l/h soit une concentration de 1270.8mg/l environ,
  - hauteur des cellules utilisées :H=5 cm et H= 10 cm,
  - diamètre intérieur de la cellule de coalescence 38 mm,
  - surface de relargage constituée d'une grille hydrophile en acier inoxydable,
- nous avons évalué le rendement de séparation de deux cellules de coalescence ,l'une constituée d'un matériau coalesceur présentant un état de surface lisse et l'autre rugueux .  
 Les résultats obtenus sont représentés sur le tableau VI.3.

Matériau coalesceur	Hauteur de la cellule de coalescence (cm)	Cs(mg/l).		% séparation	
		dp=1.25mm	dp=4.06mm	dp=1.25mm	dp=4.06mm
Matériau hydrophobe lisse.	5	15.37	134.06	98,79	89.45
	10	6.76	88.43	99.46	93.04
Matériau hydrophobe rugueux.	5	5.84	26.97	99.54	97.87
	10	4.5	21.06	99.64	98.34

Tableau VI.3. Influence de l'état de surface du matériau coalesceur (rugosité) sur le rendement de séparation

Ces résultats montrent clairement que la mise en œuvre d'un matériau hydrophobe rugueux en coalescence permet une efficacité de séparation plus importante que celle obtenue par le matériau hydrophobe présentant une surface lisse .

Lorsque la surface du matériau présente une certaine rugosité, le terme  $\cos\theta$  représenté par la relation VI.7 doit être affecté d'un coefficient de rugosité ( $r'$ ) défini par la relation de Wenzel [17]:

$$\cos \theta' = r' \cdot \cos \theta \quad (VI.7).$$

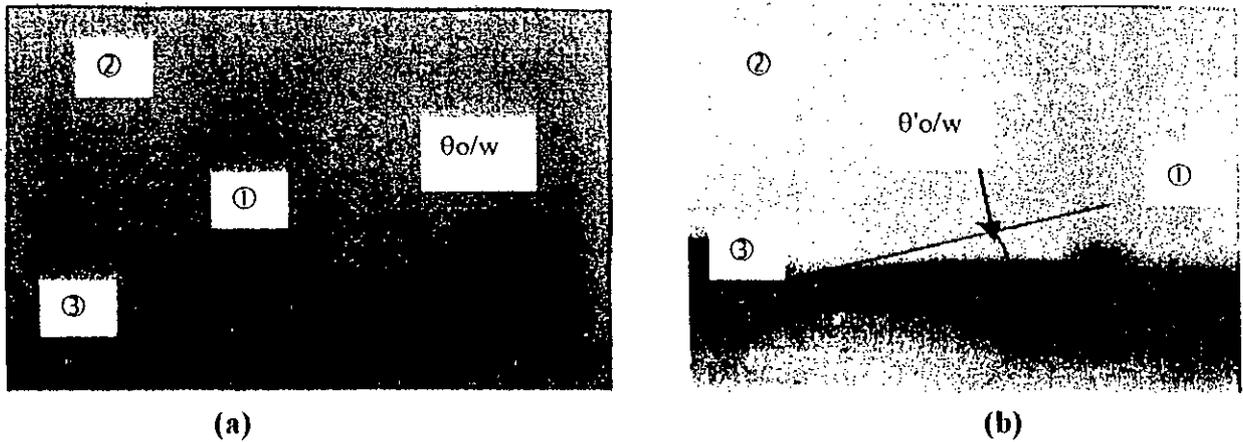
Avec :

$r'$  : facteur de rugosité (supérieur ou égal à 1),

$\theta$  : angle de contact correspondant à une surface lisse,

$\theta'$  : angle de contact correspondant à une surface rugueuse de même nature.

Nous avons vérifié cette relation en mesurant comme le traduit la photo (b) de la figure VI.10, l'angle de contact ( $\theta'o/w$ ) d'une goutte de kérosène à l'équilibre, en présence d'eau, sur la surface du matériau hydrophobe présentant une surface rugueuse.



**Figure VI.10.** Photos caractéristiques du comportement de la phase kérosène (1) au contact du matériau traité à la silicone (3) en présence d'eau (2).

(a) : Matériau lisse ( $\theta_o/w = 62^\circ$ )

(b) : Matériau rugueux ( $\theta'o/w = 34^\circ$ ).

Le tableau VI.4 résume les valeurs respectives des différents paramètres caractéristiques de la mouillabilité des deux surfaces de coalescence testées.

Surface de coalescence	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne /cm)	Travail d'adhésion $W_{adh} (\gamma_{s/o})/w$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale $(\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o})$ (dyne /cm)
Matériau hydrophobe lisse	62.0	35.0	51.41	16.41
Matériau hydrophobe rugueux	34.0	35.0	64.01	29.01

Tableau VI.4 Paramètres caractérisant la mouillabilité des deux surfaces de coalescence.

La relation VI.8 nous permet de calculer le facteur de rugosité  $r'$ :

$$r' = \cos \theta' / \cos \theta \quad (\text{VI.8})$$

$$r' = 1.76$$

La relation VI.8 montre donc, que le phénomène de mouillabilité est accentué par la rugosité du matériau coalesceur.

#### ***III.1.6.4- Influence de la nature physico- chimique de la surface de relargage***

Nous avons relevé dans le chapitre III, que le relargage de la phase coalescée est conditionné par la nature physico-chimique de la surface de relargage. Cette dernière joue un rôle prépondérant dans le comportement de la phase dispersée.

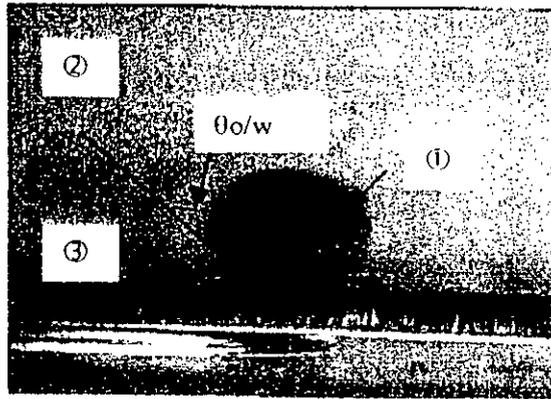
Dés lors, nous avons étudié l'influence la nature physico-chimique de la surface de relargage sur les performances de la cellule de coalescence. En effet, des essais comparatifs ont été effectués entre deux cellules de coalescence ayant les mêmes caractéristiques : de hauteur  $H = 10\text{cm}$ , composées du même matériau coalesceur, de granulométrie  $dp = 1.25\text{mm}$  et présentant chacune une surface de relargage différente, l'une est constituée d'une grille en acier inoxydable hydrophile, et l'autre d'une grille hydrophobe, celle-ci ayant été traitée au polytétrafluoroéthylène.

Les conditions des essais sont:

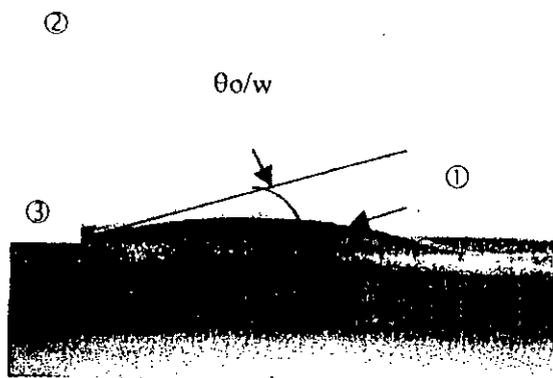
$$V_p = 0.73\text{cm/s},$$

$$C_o = 1270.8\text{ mg/l}.$$

Les photos de la figure VI.11 et VI.12 montrent le comportement de la phase kérosène en présence d'eau au contact des deux grilles hydrophile et hydrophobe.



**Figure VI.11.** Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact de la grille en acier (3) en présence d'eau (2).  
*Non-mouillabilité de l'acier par le kérosène en présence d'eau ( $\theta_{o/w} = 162^\circ$ )*



**Figure VI.12.** Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact de la grille traitée au polytétrafluoroéthylène (3) en présence d'eau (2).  
*Mouillabilité préférentielle de la grille par le kérosène en présence d'eau ( $\theta_{o/w} = 22.5^\circ$ )*

Le tableau VI.5 résume les valeurs respectives des différents paramètres caractéristiques de la mouillabilité des deux surfaces de relargage testées

Surface de relargage	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne/cm)	Travail d'adhésion $w_{adh} (s_o)/w$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) (dyne/cm).
Grille hydrophile	162	35.0	1.71	-33.28
Grille hydrophobe	22.5	35.0	67.30	32.30

Tableau VI.5. Paramètres caractérisant la mouillabilité des deux surfaces de relargage.

Les résultats obtenus à partir de ces essais sont représentés dans le tableau VI.6.

Surface de relargage	Cs (mg/l)	% séparation
Grille hydrophile	6.76	99.46
Grille hydrophobe	176.38	86.12

Tableau VI.6. Influence de la nature physico - chimique de la surface de relargage sur le rendement de séparation

Au niveau de la surface de relargage hydrophobe, préférentiellement mouillée par la phase dispersée, la pression capillaire positive de celle-ci favorise l'émergence de la phase coalescée par les pores les plus petits. Ces cheminements préférentiels correspondent aux « drip points ».

Dans ce premier cas, la phase coalescée a tendance à s'étaler sur la surface de relargage et à former de grosses nappes de phase coalescée en surface, du fait d'une importante adhésion de cette dernière sur la surface de relargage ( $Wadh = 67.30 \text{ erg/cm}^2$ ) qui sous l'effet des forces d'entraînement visqueuses ( $F_{hv}$ ) se détachent sous forme de gouttes.

Quand la vitesse de passage de l'émulsion devient importante, ces nappes de phase coalescée se réfractionnent sous forme de jets responsables de la turbidité de l'effluent et de la baisse du rendement de séparation de la cellule de coalescence.

Au niveau de la surface de relargage hydrophile, non mouillée par la phase dispersée, la phase dispersée coalescée apparaît du fait du faible travail d'adhésion de la phase coalescée sur la surface de relargage ( $Wadh = 1.71 \text{ erg/cm}^2$ ) sous forme de grosses gouttes à partir des drip-points.

La goutte en cours de formation est soumise à trois forces [15]:

- la force d'adhésion  $F_{adh}$  assurant la rétention de la goutte à la surface du solide coalesceur

$$F_{adh} = 2 \cdot \pi \cdot a \cdot \gamma_{o/w} \quad (\text{VI.9})$$

$a$ : rayon du drip-point de la surface de relargage de la phase dispersée  
 $\gamma_{o/w}$ : tension interfaciale entre les deux phases.

- aux forces d'entraînement qui tendent à faire détacher la goutte de la surface de relargage qui sont:

\* la force ascensionnelle  $F_{asc}$ , exprimée par la relation:

$$F_{asc} = \pi \cdot d_c^3 / 6 \cdot \Delta\rho \cdot g \quad (\text{VI.10})$$

$d_c$ : diamètre de la goutte coalescée à la surface de relargage,  
 $g$ : accélération de la pesanteur,  
 $\Delta\rho$ : différence de densité entre les 2 phases en présence.

\* la force d'entraînement hydrodynamique visqueuse  $F_{hv}$ , liée à l'écoulement de la phase continue, exprimée par la relation suivante :

$$F_{hv} = \frac{1}{2} C_x \rho_c \cdot V_o^2 \cdot \pi ( \frac{1}{4} \cdot d_e^2 - a^2 ) \quad (VI.11)$$

$C_x$  : coefficient de traînée , fonction du nombre de Reynolds .  
 $\rho_c$  : densité de la phase continue,  
 $V_o$  : vitesse d'écoulement de l'émulsion au travers le garnissage coalesceur,  
 $d_e$  : diamètre des microgouttelettes de l'émulsion à traiter,  
 $a$  : rayon du drip-point.

Ces deux forces augmenteront au cours du grossissement de la goutte à la surface de relargage puisque :

$$F_{asc} = f(d_e^3) \text{ et } F_{hv} = f(d_e^2).$$

Par contre  $F_{adh}$  sera constante .

Il y a relargage lorsqu'on a la relation suivante :

$$F_{adh} \leq F_{asc} + F_{hv} \quad (VI.12)$$

Si on augmente la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule ,les forces de traînée deviennent plus importantes ,la phase coalescée se trouve entraînée très rapidement, empêchant ainsi un effet de coalescence suffisant. Il en résulte la formation de gouttes relarguées coalescées de faible diamètre.

Cet effet s'accroît d'autant plus que la vitesse d'écoulement est élevée.

### III.1.6.5- Influence du nombre d'étages de coalescence

Au cours de cet essai nous avons comparé les performances d'épuration de 2 cellules de coalescence de même hauteur  $H=10\text{cm}$  .

- la première cellule est constituée d'un seul étage ,composée de matériau hydrophobe traité à la silicone ,de granulométrie  $dp=1.25 \text{ mm}$  ,
- la seconde cellule est constituée de plusieurs étages , composée de bas en haut du même matériau ,de granulométrie allant respectivement de  $9.8 \text{ mm}$ -  $4.65 \text{ mm}$  - $2.17 \text{ mm}$  à  $1.25 \text{ mm}$ .

Dans les conditions expérimentales suivantes :

$C_o=1270.8 \text{ mg/l}$  ,

$V_p=0.73 \text{ cm/s}$ ,

Les résultats obtenus sont représentés dans le tableau VI.7.

type de cellule	Cs (mg/l).	% séparation
Cellule à 5 étages	175.14	86.21
cellule à 1 étage.	6.76	99.46

**Tableau VI.7.** Influence du nombre d'étages de la cellule de coalescence sur le rendement de séparation

Qualitativement, l'eau obtenue dans le cas de la cellule monoétagée était d'un aspect très clair, et les gouttes de kérosène relarguées avaient un diamètre important (quelques millimètres).

Dans le cas de la cellule à 5 étages, l'eau traitée avait un aspect turbide et la granulométrie de la phase coalescée relarguée a diminué.

En effet, le rendement d'épuration de l'effluent est passé de 99.46% pour la colonne monoétagée à 86.21% pour la colonne à 5 étages. Ces résultats montrent clairement que la variation granulométrique du garnissage à l'intérieur du lit perturbe la séparation et le processus de la coalescence. Nous supposons que le film d'hydrocarbure à l'intérieur des deux cellules ne se comporte pas de la même manière; il est nourri dans de meilleures conditions au niveau de la cellule monoétagée.

### **III.2- Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène (P.T.F.E).**

#### **III.2.1- Traitement de surface**

Un matériau métallique hydrophile a subi un traitement au polytétrafluoroéthylène, afin d'obtenir une mouillabilité préférentielle vis à vis de la phase kérosène à coalescer.

Ce traitement a été réalisé en quatre étapes à l'E.A.W.A (Entreprise d'Aluminium de la Wilaya d'Alger) à Si-Mustapha. [75] :

- 1- décapage du matériau métallique avec l'acide chlorhydrique ;
- 2- neutralisation à la soude ;
- 3- vernissage des billes au polytétrafluoroéthylène à haute pression;
- 4- séchage et polycondensation du film de polytétrafluoroéthylène par chauffage à haute température (495°C)

De plus, ce matériau a la propriété d'avoir une résistance physico- chimique importante.

#### **III.2.2- Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau coalesceur**

De la même manière, nous avons évalué qualitativement la mouillabilité du matériau hydrophobe testé par la méthode décrite au chapitre (V).

La photo de la figure VI.13 illustre la formation d'un film homogène rouge de kérosène autour du matériau, caractéristique de la mouillabilité préférentielle de ce dernier par la phase dispersée en présence d'eau.



**Figure VI.13.** Mouillabilité préférentielle du matériau coalesceur traité au polytétrafluoroéthylène par le kérosène dispersé dans l'eau.

*Phase continue sous forme de poches d'eau colorée en bleu avec le bleu de méthyle.  
Phase dispersée sous forme de film entourant les billes.*

### III.2.3- Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur

Le tableau VI.8 résume les valeurs respectives des différents paramètres caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur traité au polytétrafluoroéthylène.

Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne /cm)	Travail d'adhésion $w_{adh} (so)/w$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w}-\gamma_{s/o}$ ) (dyne /cm).
22.5	35.0	67.30	32.30

Tableau VI.8. Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité du matériau coalesceur testé.

### III.2.4 - Résultats expérimentaux qualitatifs

Après injection de l'émulsion à travers la cellule de coalescence, composée de matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène, nous avons noté au niveau du garnissage, la formation d'un film homogène de kérosène, suivi par un relargage de grosses gouttes de kérosène décantant instantanément. La phase aqueuse traitée était d'une parfaite limpidité, ce qui traduit la très bonne séparation hydrocarbure-eau.

### III.2.5- Résultats expérimentaux quantitatifs

Dans les conditions expérimentales suivantes :

- débit d'eau sur le venturi : 30l/h soit une vitesse de passage de 0.73 cm/s ,
- débit de kérosène de 0.0483l/h soit une concentration de 1270.8mg/l environ,
- hauteur des cellules utilisées : H= 5 cm, H= 10 cm
- diamètre intérieur de la cellule de coalescence : 38 mm,
- surface de relargage constituée d'une grille hydrophile en acier inoxydable,
- granulométrie du matériau coalesceur  $d_p=4.65\text{mm}$ ,

nous avons testé l'efficacité d'une cellule de coalescence composée de matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène et comparé ces résultats à ceux obtenus sur le matériau hydrophobe traité à la silicone .

Le tableau VI.9 résume les résultats trouvés.

Matériau coalesceur	Hauteur de la cellule de coalescence (cm)	Cs(mg/l).	% séparation
Matériau hydrophobe traité à la silicone $d_p=4.06\text{mm}$	5	134.06	89.45
	10	88.43	93.04
Matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène $d_p=4.65\text{mm}$	5	122.25	90.38
	10	42.57	96.65

Tableau VI.9. Résultats comparatifs des rendements de séparation des deux cellules de coalescence.

Les rendements de séparation obtenus sur le matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène sont relativement plus importants que ceux obtenus sur le matériau hydrophobe traité à la silicone. Ceci est lié à la différence de mouillabilité des deux surfaces de coalescence vis à vis de la phase dispersée en présence d'eau.

Le travail d'adhésion  $W_{adh}(so)/w$  d'une phase hydrocarbure en présence d'eau à la surface d'un solide est donné par la relation (VI.1)

$$W_{adh}(so)/w = \gamma_{o/w} (1 + \cos\theta_{o/w}). \quad (VI.1)$$

On constate d'après cette relation que le travail d'adhésion est fonction de deux paramètres:

- la tension interfaciale huile-eau ( $\gamma_{o/w}$ ),
- l'angle de contact des gouttelettes d'huile en présence d'eau à la surface du solide  $\theta_{o/w}$ .

De même, la relation de Young permet d'écrire :

Les courbes de la figure VI.14 montrent que la vitesse de passage de l'émulsion à travers la cellule de coalescence influence le rendement de séparation. Cependant, pour une même hauteur, de la cellule de coalescence, les rendements de séparation obtenus sur la cellule composée de matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène sont plus élevés que ceux obtenus sur la cellule composée de matériau hydrophobe traité à la silicone. Ceci s'explique par le fait que le travail d'adhésion de la phase hydrocarbure sur le matériau traité au polytétrafluoroéthylène ( $W_{adh}(so)/w = 67.30 \text{ ergs/cm}^2$ ) est plus important que celui obtenu sur le matériau traité à la silicone ( $W_{adh}(so)/w = 51.41 \text{ ergs/cm}^2$ ).

#### IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES

Ce matériau est rendu hydrophile par lavage de ce dernier au moyen d'une solution de bichromate de potassium.

##### IV.1- Caractérisation qualitative de la mouillabilité du matériau hydrophile

De la même manière, nous avons évalué qualitativement la mouillabilité du matériau hydrophile testé par la méthode décrite au chapitre (V). La photo de la figure VI.15 illustre ce type de mouillabilité.

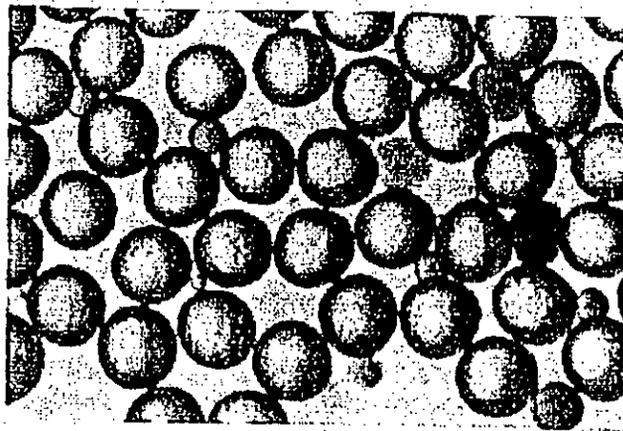


Figure VI.15. Mouillabilité préférentielle du matériau hydrophile par la phase continue (eau)  
*Phase dispersée sous forme de gouttelettes rouges de kérosène*

##### IV.2- Caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur

Une goutte de kérosène déposée sur la surface d'un matériau coalesceur hydrophile en présence d'eau prend une configuration d'équilibre illustrée par la photo de la figure VI.16.

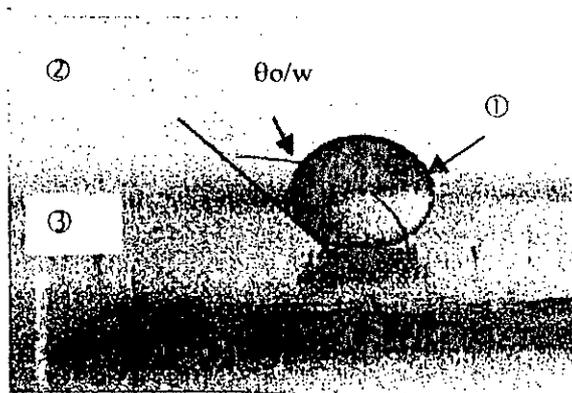


Figure VI.16. Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact du matériau (3) en présence d'eau (2).

*Mouillabilité préférentielle de la surface de coalescence par la phase continue ( $\theta_{o/w} 148^\circ$ )*

Le tableau VI.10 résume les valeurs respectives des différents paramètres caractéristiques de la mouillabilité du matériau coalesceur hydrophile.

Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne /cm)	Travail d'adhésion $w_{adh} (s_o)/w$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) (dyne /cm).
148	35	5.32	-29.68

Tableau VI.10 Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité du matériau coalesceur testé.

#### IV.3- Résultats expérimentaux qualitatifs

Le comportement de la phase dispersée de l'émulsion vis à vis de la phase coalescente est différent dans ce cas. Les microgouttelettes de la phase dispersée sont interceptées par le solide coalesceur et forment des poches de kérosène au lieu d'un film. Les photos de la figure VI.17. illustrent ce phénomène

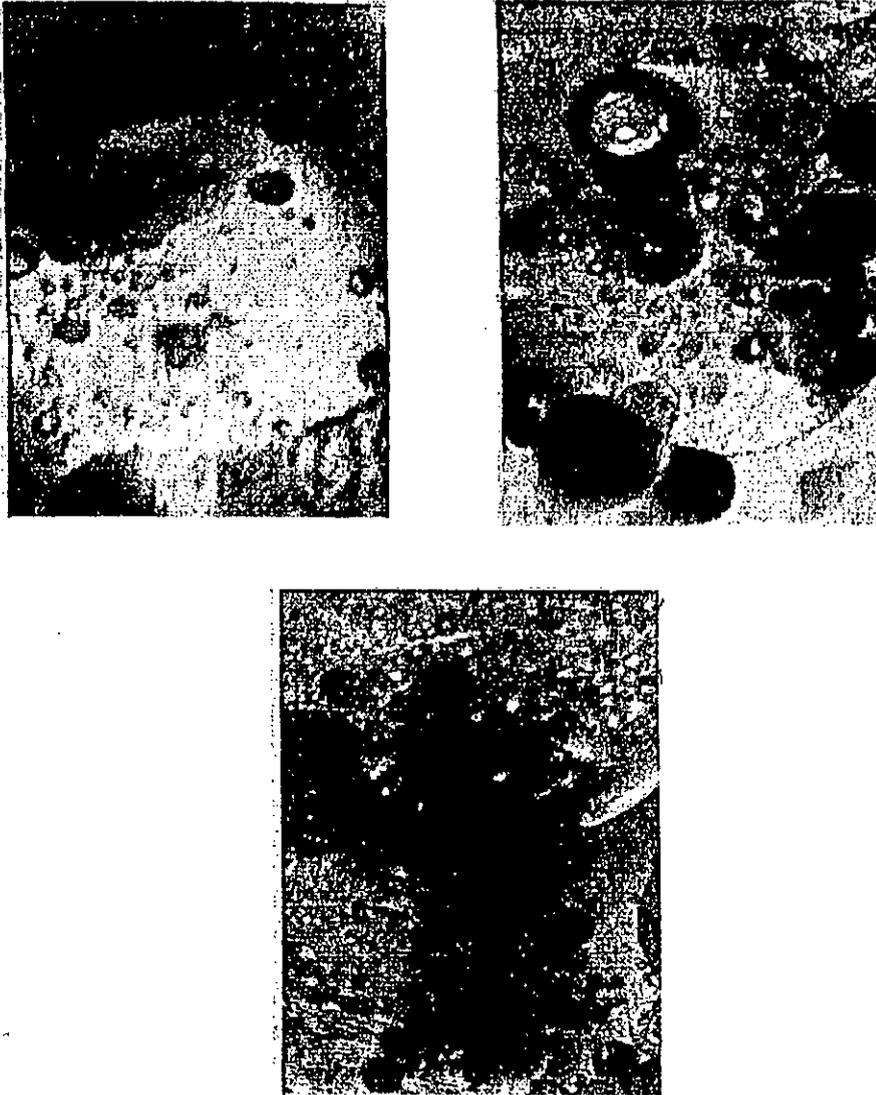


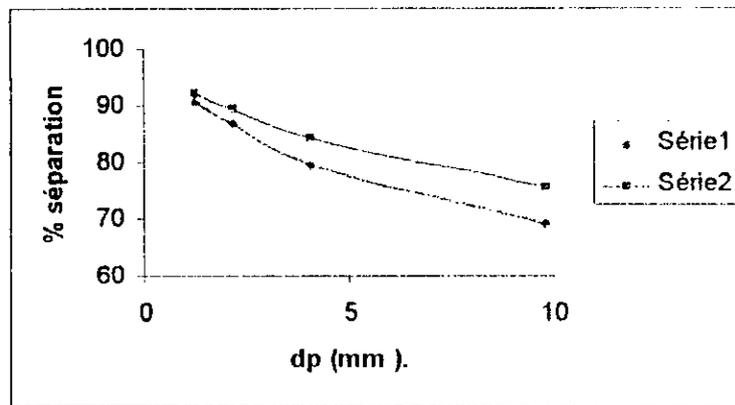
Figure VI.17. Photos mettant en évidence la formation de poches de kérosène.  
(Coalescence d'une émulsion kérosène-eau)

#### IV.4- Résultats expérimentaux quantitatifs

##### IV.4.1- Influence de la granulométrie du matériau coalesceur

Dans les mêmes conditions expérimentales ;  $C_0 = 1270.8 \text{ mg/l}$ ,  $V_p = 0.73 \text{ cm/s}$ , nous avons procédé à 2 séries d'essais, en utilisant dans chaque cas un matériau hydrophile, de granulométrie différente et présentant un travail d'adhésion  $W_{adh}(so)/w = 5.32 \text{ erg/cm}^2$ . Nous avons évalué la concentration résiduelle de la phase dispersée à la sortie de la cellule et calculé le rendement de séparation en fonction de la granulométrie du garnissage.

La figure VI.18. représente l'évolution du rendement de séparation de la cellule de coalescence en fonction de la granulométrie du matériau coalesceur.



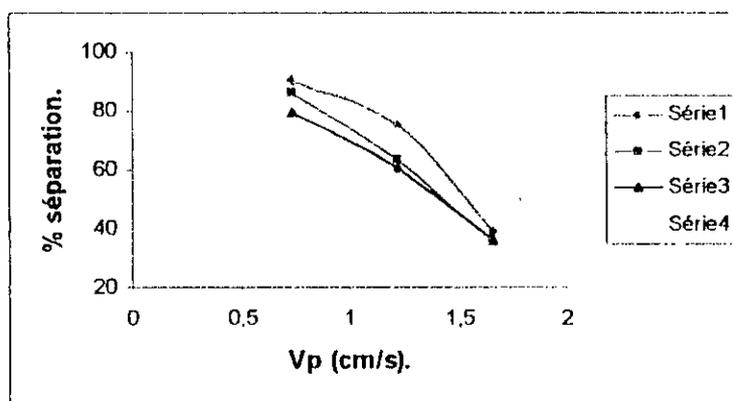
**Figure VI.18.** Influence de la granulométrie du matériau coalesceur sur le rendement de séparation.  
*Série 1 :  $H=5$  cm. ; Série 2 :  $H=10$  cm.*

Ces courbes montrent clairement que la mouillabilité d'une part et la granulométrie du matériau coalesceur d'une autre part, influent sur le rendement de séparation.

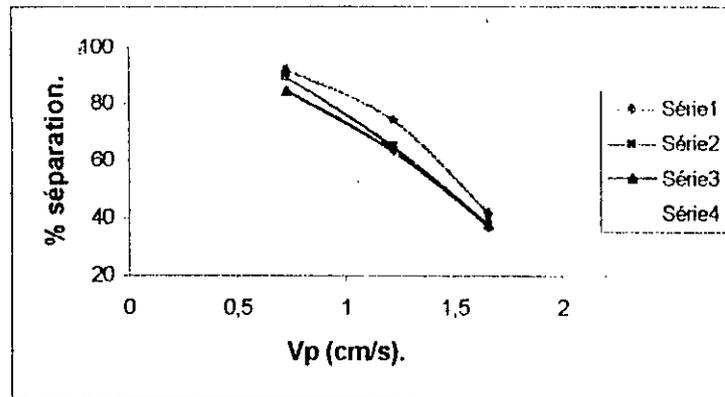
#### IV.4.2- Influence de la vitesse de passage de l'émulsion

Pour des vitesses de passage fixes de l'émulsion à travers la cellule de coalescence et dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons déterminé la concentration résiduelle de la phase dispersée.

Les figures VI.19.1 et VI.19.2 représentent l'évolution du rendement de séparation de la cellule de coalescence en fonction de la vitesse de passage.



**Figure VI.19.1.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation.  
*Série 1 :  $dp=1.25$  mm ; Série 2 :  $dp=2.17$  mm ; Série 3 :  $dp=4.06$  mm ; Série 4 :  $dp=9.8$  mm  
 $H=5$  cm.*



**Figure VI.19.2.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation.  
*Série1 :  $dp=1.25mm$  ; Série2 :  $dp=2.17mm$  ; Série3 :  $dp=4.06mm$  ; Série4 :  $dp=9.8mm$ .*  
*H=10cm.*

Nous constatons dans ce cas, que la vitesse de passage  $V_p$  est un paramètre très sensible. En effet les rendements de séparation diminuent considérablement lorsque la vitesse de passage augmente, jusqu'à atteindre un rendement de séparation de 30%; du fait :

- du faible travail d'adhésion de la phase dispersée sur la surface solide en présence d'eau  $W_{adh} = 5.32 \text{ ergs/cm}^2$ ,
- des forces d'entraînement hydrodynamiques visqueuses «  $F_{HV}$  » liée à l'écoulement de la phase continue qui deviennent importantes à grandes vitesses de passage de l'émulsion,
- de la faible granulométrie de l'émulsion au sein du venturi.

Ces trois paramètres ne permettent pas aux gouttelettes de la phase dispersée d'atteindre des tailles assez importantes avant d'être arrachées du matériau coalesceur.

## V. CONCLUSION

Suite aux résultats obtenus, on s'aperçoit que la mouillabilité du matériau coalesceur est un facteur important ; en effet les meilleurs rendements de séparation sont obtenus avec des matériaux coalesceurs hydrophobes, notamment, pour le matériau traité au polytétrafluoroéthylène, présentant un important travail d'adhésion vis à vis de la phase dispersée en présence d'eau ( $67.30 \text{ ergs/cm}^2$ ).

A des vitesses de passage élevées, on atteint plus rapidement le rendement de séparation critique (qui correspond aux phénomènes de réfractionnement de la phase hydrocarbure coalescée) dans le milieu hydrophile que dans le milieu hydrophobe. Ceci est dû vraisemblablement au rapport des forces hydrodynamiques visqueuses «  $F_{HV}$  » sur les forces d'adhésion «  $F_{adh}$  » de la phase hydrocarbure sur le solide coalesceur en présence d'eau ( $F_{HV}/F_{adh}$ ).

Les faibles granulométries du matériau coalesceur augmentent l'efficacité de séparation quelle que soit la nature physico-chimique du matériau coalesceur. Cette dernière croît avec la hauteur du lit coalesceur.

La dernière étape de la coalescence qui aboutit à la formation de grosses gouttes de la phase coalescée est fonction de la nature physico - chimique de la surface de relargage ; cette dernière semble aussi être un facteur déterminant sur le rendement de séparation .Ainsi nous pouvons conclure que la phase de relargage peut être une phase limitante de la coalescence.

# **CHAPITRE VII : INFLUENCE DE LA PRÉSENCE DES AGENTS TENSIO-ACTIFS SUR L'EFFICACITE DE SEPARATION DES CELLULES DE COALESCENCE**

## **I. INTRODUCTION**

## **II. INFLUENCES DES AGENTS TENSIO-ACTIFS SUR LA STABILITE DES EMULSIONS**

- II.1. Influence des agents tensio - actifs sur les tensions superficielles et interfaciales
- II.2. Influence des agents tensio- actifs sur la turbidité des émulsions
- II.3. Influence des agents tensio- actifs sur la granulométrie des émulsions
- II.4. Influence des agents tensio - actifs sur le temps de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée

Résultats expérimentaux

- II.5. Influence des agents tensio-actifs sur le potentiel zêta

## **III. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES**

- III.1. Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité à la silicone
  - III.1.1. Influence de la granulométrie du matériau coalesceur
  - III.1.2. Influence de la vitesse de passage de l'émulsion
- III.2. Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe fluoré

## **IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES**

- IV.1. Influence de la granulométrie du matériau coalesceur
- IV.2. Influence de la vitesse de passage de l'émulsion

## **V. INFLUENCE DE LA PRESENCE DE L'AGENT TENSIO- ACTIF DANS LA PHASE DISPERSEE SUR L'EFFICACITE DE SEPARATION DES CELLULES DE COALESCENCE**

## **VI. CONCLUSION**

## I. INTRODUCTION

Dans les procédés industriels, on rencontre très souvent des émulsions hydrocarbure-eau contenant des agents tensio-actifs. Aussi, nous avons voulu tester l'efficacité de ce type de séparateur dans ce cas particulier.

Nous avons choisi, pour caractériser l'influence des agents tensio-actifs, quatre produits représentatifs de chacune des grandes classes ioniques :

### 1-Tensio-actifs solubles dans la phase aqueuse:

*Tensio-actif anionique* : Lauryl Sulfate de Sodium, de formule chimique :  $C_{12}H_{25}-O-SO_3Na$ . C'est un produit très soluble dans l'eau.

*Tensio-actif cationique* : Chlorure de Cétyltriméthylammonium, C'est un produit parfaitement soluble dans l'eau, composé de 100% de matière active.

*Tensio-actifs non ionique* : Alcool Gras Synthétique, de formule chimique  $R-OH-(CH_2-CH_2O)_7$ . Avec R: groupement alkyle. Il est composé de 100% de matière active, sa valeur de H.L.B est de 12, soluble dans l'eau.

Ces produits solubles dans la phase aqueuse favorisent la mise en émulsion du kérosène dans l'eau, d'où la formation des émulsions directes (o/w).

### 2-Tensio-actif soluble dans la phase dispersée.

*Tensio-actifs non ionique* : de nom commercial *UNIDEM 404*. C'est un désémulsifiant qui s'applique aussi bien aux émulsions eau-pétrole brut au niveau des puits de production qu'aux émulsions créées au dessalage.

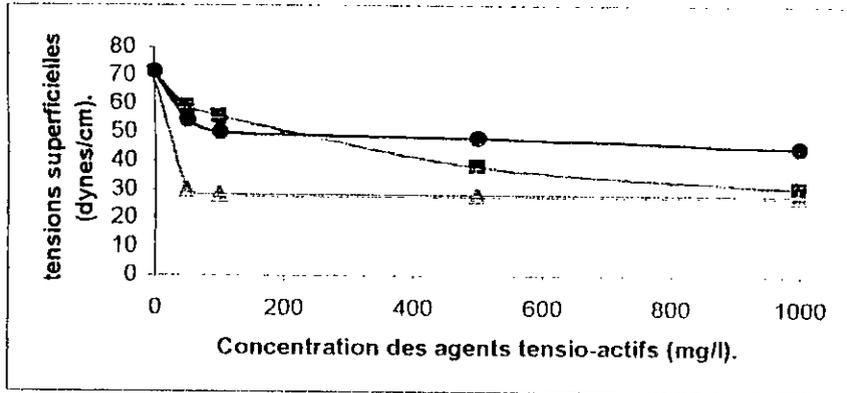
## II. INFLUENCES DES AGENTS TENSIO-ACTIFS SUR LA STABILITE DES EMULSIONS

Nous avons successivement considéré l'influence de ces différents agents tensio-actifs sur la stabilité des émulsions d'hydrocarbure dans l'eau évaluée à partir :

- 1- des tensions superficielles et interfaciales ;
- 2- de la turbidité ;
- 3- de la granulométrie des émulsions ;
- 2- du temps de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée.
- 5- du potentiel zêta

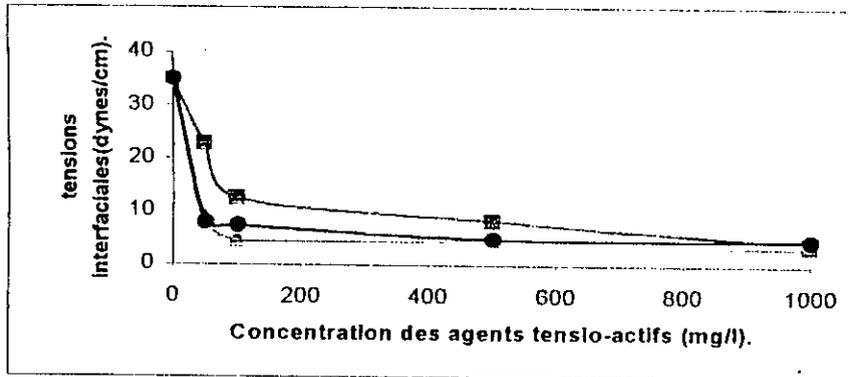
### II.1- Influence des agents tensio-actifs sur les tensions superficielles et interfaciales

Les figures VII.1 et VII.2 représentent respectivement l'évolution de la tension superficielle de l'eau et de la tension interfaciale kérosène - eau en fonction de la concentration en agents tensio-actifs dans la phase aqueuse.



**Figure VII.1.** Evolution de la tension superficielle de l'eau en fonction de la concentration en agents tensio-actifs.

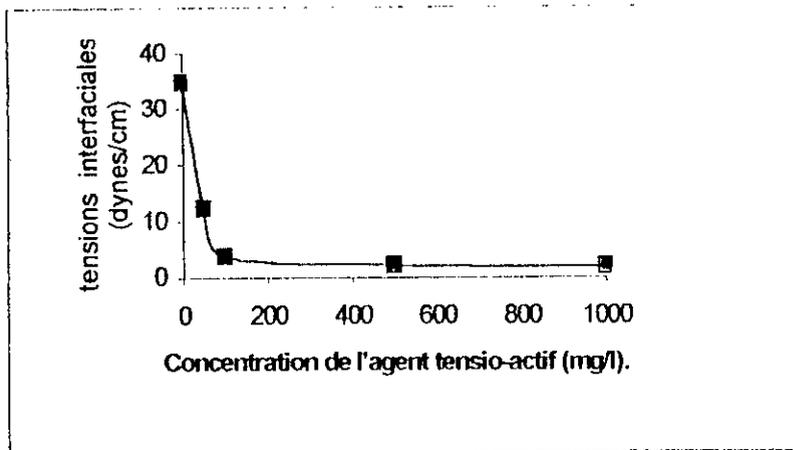
①: tensio-actif anionique ②: tensio-actif cationique ; △: tensio-actif non ionique.



**Figure VII.2** Evolution de la tension interfaciale kérosène-eau en fonction de la concentration en agents tensio-actifs.

①: tensio-actif anionique ②: tensio-actif cationique ; △: tensio-actif non ionique.

Aussi, la figure VII.3 représente l'évolution la tension interfaciale kérosène - eau en fonction de la concentration de l'agent tensio-actif UNIDEM 404 (soluble dans la phase dispersée).



**Figure VII.3.** Evolution de la tension interfaciale kérosène-eau en fonction de la concentration de l'agent tensio-actif (UNIDEM 404) soluble dans la phase dispersée.

De la figure VII.1, Il apparaît que l'ensemble des 3 produits testés abaissent fortement la tension superficielle de l'eau même à faible concentration.

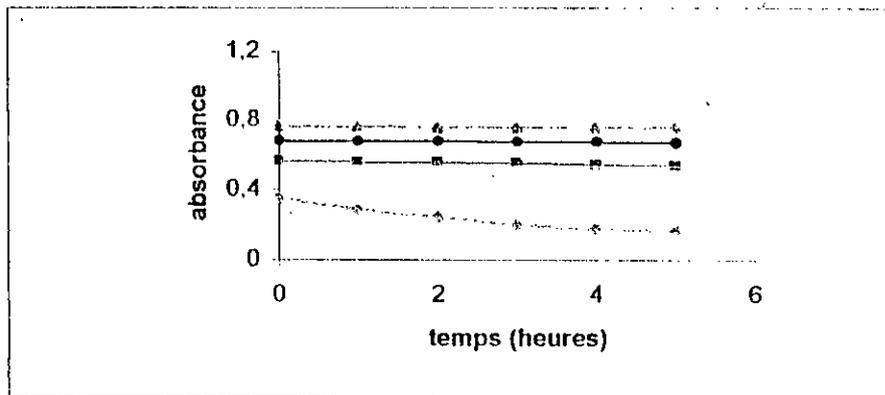
Il en est de même pour les mesures des tensions interfaciales entre le kérosène et l'eau; voir figures VII.2 et VII.3. Cette réduction met en évidence le comportement des agents tensio-actifs, dont la principale propriété est de se localiser à l'interface huile-eau par leur caractère «amphotère» hydrophile – hydrophobe.

Nous remarquons une nette diminution de la tension interfaciale jusqu'à la concentration de 100 mg/l. Au-delà de cette concentration l'abaissement de la tension interfaciale est faible. Nous choisirons dans ce cas de tester ces différents produits à une concentration de 100 mg/l

## II.2- Influence des agents tensio-actifs sur la turbidité des émulsions

Nous avons mesuré et comparé la stabilité des différentes émulsions en présence de 100 mg/l de tensio-actifs solubles dans la phase continue, en suivant l'évolution de l'absorbance de chacune d'elles en fonction du temps de décantation.

Pour une longueur d'onde de 270 nm et pour une durée de 5 heures, nous avons obtenu les résultats représentés par la figure VII.4 traçant l'évolution de l'absorbance en fonction du temps.



**Figure VII.4.** Evolution de l'absorbance des différentes émulsions testées en fonction du temps de décantation.

(0) : sans tensio-actif ; (1) : tensio-actif anionique ; (2) : tensio-actif cationique ; (3) : tensio-actif non ionique.

La référence considérée au cours de ces essais est une émulsion simple de kérosène dans l'eau. Les concentrations et les conditions de mise en émulsion sont identiques pour tous les essais.

L'émulsion formée en absence d'agent tensio-actif (courbe (0)) se distingue des autres émulsions par la réduction très rapide de l'absorbance. La décantation est rapide et le milieu s'éclaircit.

En présence des agents tensio-actifs (courbes (1), (2) et (3)), les valeurs de l'absorbance n'ont pratiquement pas varié pendant 5 heures. Ceci traduit la stabilité de ces émulsions.

### II.3- Influence des agents tensio-actifs sur la granulométrie des émulsions

L'analyse granulométrique des différentes émulsions générées dans les mêmes conditions précitées, en l'absence d'agents tensio-actifs et en présence de 100mg/l de chacun des tensio-actifs dans la phase aqueuse, nous a permis de déterminer le diamètre moyen des ces dernières donné par le tableau VII.1.

Phase aqueuse	$\gamma_0/w$ (dyne / cm)	$d_e$ ( $\mu m$ )
sans tensio-actif.	35	38
+100mg/l tensio-actif anionique	12.60	28
+ 100mg/l tensio-actif cationique	7.30	25.80
+ 100mg/l tensio-actif non ionique	4.80	20.52

**Tableau VII.1.** Influence de la présence des divers agents tensio-actifs sur la granulométrie des émulsions.  
( $v_p=0.73$  cm/s).

Nous constatons que l'addition de 100mg/l d'agents tensio-actifs dans le générateur d'émulsion, provoque un abaissement important des diamètres moyens des gouttelettes d'huile avec la diminution de la tension interfaciale et ce en fonction de la nature de l'additif.

Ces résultats s'expliquent par la relation entre la tension interfaciale hydrocarbure- eau ( $\gamma_{o/w}$ ) à l'aire interfaciale ( $A_{o/w}$ ) créée et ce pour un travail d'agitation ( $W_a$ ) donné et fixe:

$$W_a = A_{o/w} \cdot \gamma_{o/w} \quad (\text{VII.1})$$

Avec :

$W_a$  : travail d'agitation utile;

$A_{o/w}$  : aire interfaciale kérosène-eau créée ;

$\gamma_{o/w}$  : tension interfaciale kérosène - eau ;

d'où

$$A_{o/w} = \frac{W_a}{\gamma_{o/w}} \quad (\text{VII.2})$$

L'aire interfaciale kérosène-eau créée est inversement proportionnelle à la tension interfaciale.

Si "v" représente le volume de la phase kérosène dispersée et "de" le diamètre des microgouttes de l'émulsion générée, l'aire interfaciale créée est égale à:

$$A_{o/w} = \frac{6v}{d_e} = \frac{W_a}{\gamma_{o/w}}$$

d'où:

$$d_e = \frac{6v \cdot \gamma_{o/w}}{W_a} \quad (\text{VII.3})$$

La relation (VII.3) montre que le diamètre des microgouttes des émulsions générées est proportionnel à la tension interfaciale entre la phase continue et la phase dispersée.

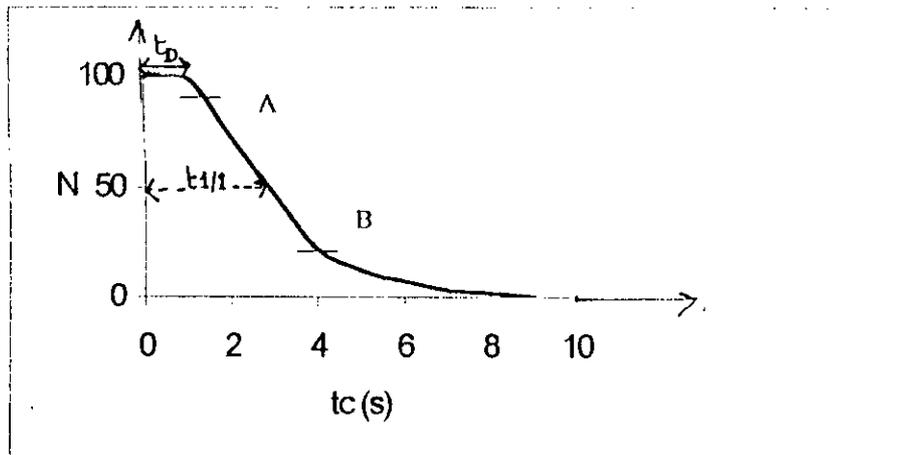
Les résultats obtenus démontrent parfaitement l'effet stabilisant des agents tensio-actifs testés.

La présence de ces produits à 100 mg/l permet une bonne stabilisation des émulsions kérosène-eau.

#### **II.4- Influence des agents tensio -actifs sur le temps de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée**

La stabilité d'une émulsion peut être définie par la mesure du temps de coalescence d'une goutte d'hydrocarbure à l'interface hydrocarbure -eau [23].

Ces mesures, nous ont permis de tracer la courbe  $N=f(t_c)$ , où N représente le nombre de gouttes n'ayant pas coalescé au temps  $t_c$  (figure VII.5).



**Figure VII.5.** Courbe de distribution des temps de vie des gouttes de kérosène à l'interface kérosène-eau  
*Nombre d'interactions : 100 gouttes.*

Cette courbe fait apparaître deux régions, qui traduisent deux phénomènes différents :

- 1- drainage du film de la phase continue se trouvant entre la goutte de la phase dispersée et le plan interfacial ,caractérisé par "  $t_D$  " : temps de drainage de la phase continue ;
- 2- rupture du film interfacial caractérisée par une constante de vitesse  $K$ , obtenue dans la partie (AB) de la courbe de la figure. VII.5 et qui obéit à la relation (VII.4) :

$$\ln N = - K \cdot t_c + \text{CONSTANTE} \quad (\text{VII.4})$$

Le temps de coalescence d'une goutte d'hydrocarbure à l'interface hydrocarbure-eau est donc la somme du temps de drainage de la phase continue se trouvant entre la goutte de la phase dispersée et le plan interfacial et le temps de rupture du film interfacial.

En général la stabilité des gouttes d'une phase dispersée est caractérisée par le temps de coalescence de demi-vie  $t_{1/2}$  ; temps pour lequel la moitié des gouttes ont coalescé [23] .

Ainsi, pour chaque type d'émulsion testée ,nous avons procédé à la mesure des paramètres suivants :  $t_{1/2}$  ,  $t_D$  et  $K$  ,en admettant la relation suivante [23] :

$$t_D = t_{1/2} - 1/K \quad (\text{VII.5})$$

### - Résultats expérimentaux

Quatre séries d'essais ont été effectués en absence et en présence de 100 mg/l d'agents tensio-actifs solubles dans la phase aqueuse.Pour chacune d'elles , nous avons mesuré les différentes valeurs de  $t_{1/2}$  ,  $t_D$  et  $K$  . Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau VII.2.

Emulsion Paramètres	Emulsion Sans tensio- actif	+ 100mg/l tensio- actif anionique	+100mg/l tensio- actif cationique	+ 100mg/l tensio- actif non ionique
$t_{1/2}$ (s)	2.66	3.82	5.82	4.37
$K$ ( $s^{-1}$ )	0.60	0.51	0.49	0.43
$t_D$ (s)	1.00	1.87	3.79	2.05

Tableau VII.2. Divers paramètres déterminant la stabilité des émulsions testées.

Après drainage et rupture du film d'eau se trouvant entre la goutte et l'interface, la coalescence de la goutte injectée se traduit par l'écoulement de celle-ci colorée en rouge dans la nappe de kérosène coloré en jaune. Des gouttes satellites se forment après coalescence de la goutte primaire.

D'après les résultats du tableau VII.2, on remarque bien que le temps de coalescence de demi-vie  $t_{1/2}$  augmente en présence des agents tensio-actifs et cette évolution est fonction de la nature de l'additif utilisé.

La stabilité des émulsions testées correspond à [23]:

- l'élévation du temps de demi vie de coalescence ( $t_{1/2}$ ),
- une réduction de la vitesse de drainage du film de la phase continue ( $t_D$ ),
- une diminution de la constante de vitesse de rupture du film interfacial ( $K$ ).

Le tableau VII.3 résume les différentes valeurs de  $t_{1/2}$ ,  $K$ ,  $t_D$  obtenues dans le cas où 100 mg/l de tensio-actif sont injectés dans la phase dispersée ( UNIDEM 404 ).

$t_{1/2}$ (s)	5.68
$K$ ( $s^{-1}$ )	0.35
$t_D$ (s)	2.87

Tableau VII.3. Divers paramètres déterminant la stabilité de l'émulsion testée.

Ces résultats montrent l'effet stabilisant de ce tensio-actif. En effet le temps de demi-vie de coalescence  $t_{1/2}$  passe de 2.66s sans tensio-actif à 5.68s en présence de 100 mg/l de tensio-actif soluble dans la phase dispersée. Il en est de même pour les valeurs de  $K$  (constante de vitesse de rupture du film interfacial) et de  $t_D$  (vitesse de drainage du film de la phase continue).

## II.5 - Influence des agents tensio-actifs sur le potentiel Zêta

Le tableau VII.4 résume l'influence de la présence de 100 mg/l de chacun des agents tensio-actifs sur le potentiel zêta des microgouttes des dispersions kérosène-eau.

Emulsion	Emulsion Non Stabilisée	+ 100mg/l tensio-actif anionique	+100mg/l tensio-actif cationique	+ 100mg/l tensio-actif non ionique soluble dans la phase aqueuse	+ 100mg/l tensio-actif non ionique soluble dans la phase dispersée
Potentiel zêta (mv)	-17.5	-34	+39	-36.6	-21

Tableau VII.4. Influence des différents tensio-actifs (100mg/l) sur le potentiel zeta moyen d'une émulsion kérosène-eau

On constate une variation notable du potentiel zêta en présence de chacun des agents tensio-actifs.

Une émulsion non stabilisée est caractérisée par un potentiel zêta négatif dû aux caractéristiques des deux liquides.

Les autres types d'émulsions sont par contre caractérisés par un potentiel électrique représentatif de la nature ionique du tensio-actif rajouté à ces dernières.

### III. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHOBES

#### III.1- Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe traité à la silicone

Nous avons testé les performances des cellules de coalescence constituées d'un matériau hydrophobe traité à la silicone, dans le cas où 100 mg/l de tensio-actifs sont injectés dans la phase aqueuse en amont du venturi. En effet, nous avons procédé à l'étude expérimentale pour chaque type de tensio-actif utilisé.

##### III.1.1- Influence de la granulométrie du matériau coalesceur

Nous avons réalisé trois séries d'essais, on utilisant dans chaque cas un matériau hydrophobe siliconé présentant une énergie de surface  $\gamma_s$  de 23 dynes/cm, et de granulométrie respective de 1.25mm ; 2.17mm ; 4.06mm.

Les conditions expérimentales sont:

Hauteur de la cellule  $H=10$ cm.

Vitesse de passage de l'émulsion  $V_p=0.73$  cm/s.

Concentration de l'effluent en kérosène à l'entrée de la cellule  $C_0=1270.8$ mg/l.

Nous avons mesuré pour chacune d'elles la concentration résiduelle du kérosène en régime permanent et calculé le rendement de séparation de la cellule de coalescence. Les courbes de la figure VII.6 représentent l'évolution du rendement de séparation des microgouttes de la phase dispersée en fonction de la granulométrie du garnissage.

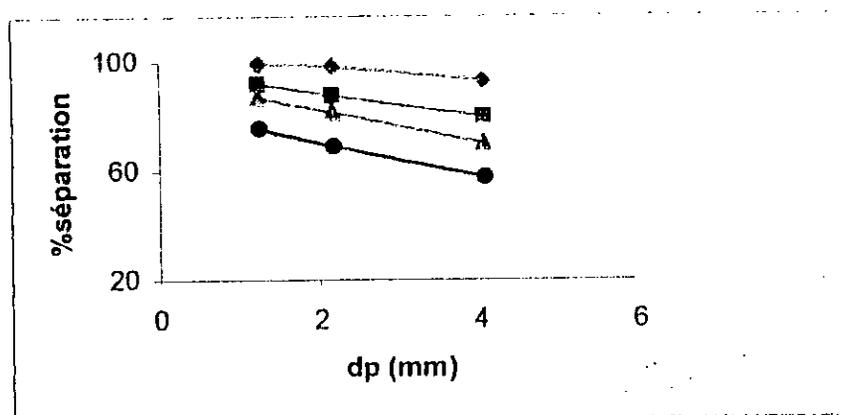


Figure VII.6. Influence de la granulométrie d'un matériau coalesceur hydrophobe sur le rendement de séparation.

① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.

Nous remarquons que la présence des agents tensio-actifs perturbent le relargage de la phase dispersée coalescée. En effet on constate un relargage accéléré de la phase coalescée sous forme de gouttelettes plus fines et d'autant plus fines que la tension interfaciale  $\gamma_{o/w}$  diminue.

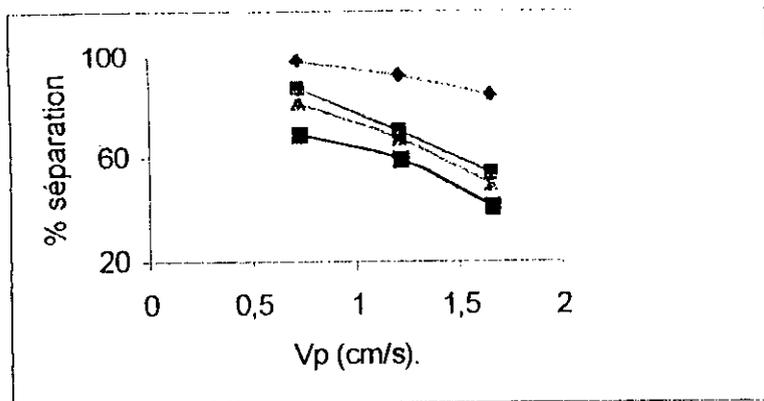
La courbe ① correspond à la référence sans agent tensio-actif. Dans ces conditions une émulsion non stabilisée est parfaitement séparée. La concentration résiduelle  $C_s$  est inférieure à 6.00 mg/l pour une granulométrie du matériau coalesceur de 1.25 mm, représentant ainsi un rendement supérieur à 99%.

Les courbes ②, ③ et ④ représentent respectivement les rendements de séparation en présence des agents tensio-actifs anionique, cationique et non ionique. Dans ce cas, nous constatons un abaissement du rendement de séparation en fonction de la granulométrie du matériau coalesceur du même type quel que soit le tensio-actif utilisé, du fait de la diminution de la tension interfaciale kérosène-eau ( $\gamma_{o/w}$ ) et de la faible granulométrie des gouttelettes de la phase dispersée. Ainsi on constate que c'est avec le tensio-actif cationique que les rendements de séparation sont les plus bas.

### III.1.2- Influence de la vitesse de passage de l'émulsion

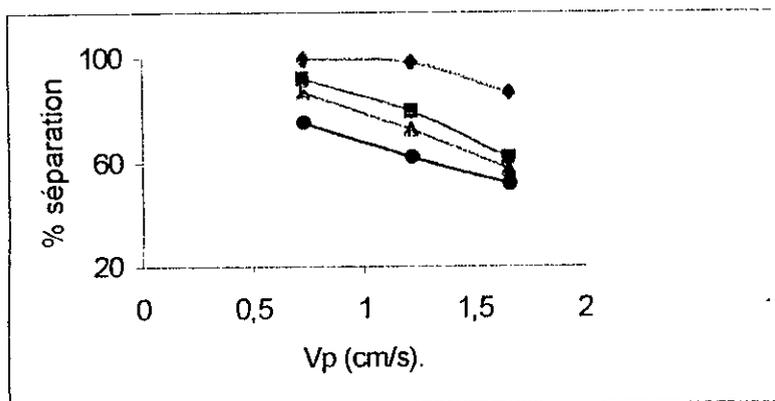
Les figures VII.7.1; VII.7.2 et VII.7.3 représentent pour chaque type d'agent tensio-actif injecté en amont du venturi, l'évolution du rendement de séparation de la cellule de coalescence en fonction de la vitesse de passage de l'émulsion pour chaque granulométrie du matériau coalesceur.

Ces essais sont réalisés dans les mêmes conditions expérimentales



**Figure VII.7.1.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.  
dp=1.25 mm

① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.



**Figure VII.7.2.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.  
dp=2.17 mm.

① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.

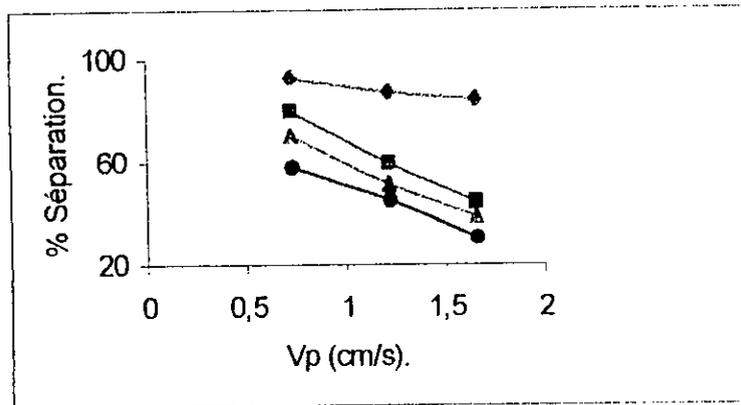


Figure VII.7.3. Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.  
 $d_p=4.06$  mm .

⊙ : sans tensio-actif ; ⊠ : tensio-actif anionique ; ⊚ : tensio-actif cationique ; ⊠ : tensio-actif non ionique.

L'augmentation de la vitesse de passage perturbe fortement la coalescence de la phase dispersée. Au fur et à mesure que la vitesse de passage augmente, le milieu se trouble par un relargage de petites gouttes sous forme de chapelets, puis un réfractionnement rapide de la phase coalescée se produit. Dans certains cas il y a apparition d'un phénomène de moussage. Ces différents phénomènes provoquent un engorgement du décanteur, ce qui réduit son pouvoir de séparation.

Ces phénomènes sont plus accentués avec le tensio-actif cationique. Mis à part ce dernier qui semble perturber l'efficacité de la cellule de coalescence, on est arrivé à obtenir, dans des conditions bien déterminées, des résultats satisfaisants.

### III.2- Résultats expérimentaux obtenus sur un matériau hydrophobe fluoré

Une autre série d'essais est réalisée sur un lit hydrophobe, constitué d'un matériau hydrophobe traité au polytétrafluoroéthylène de granulométrie  $d_p=4.65$  mm et présentant une énergie de surface  $\gamma_s$  de 18 dynes/cm .

Dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons testé l'efficacité de cette cellule de coalescence en présence de 100 mg/l de chacun des tensio-actifs anionique, non ionique et cationique dans l'eau, avant la dispersion du kérosène dans la phase continue. Les résultats obtenus sont représentés par le tableau VII.5 et sont comparés aux résultats obtenus sur un matériau hydrophobe siliconé.

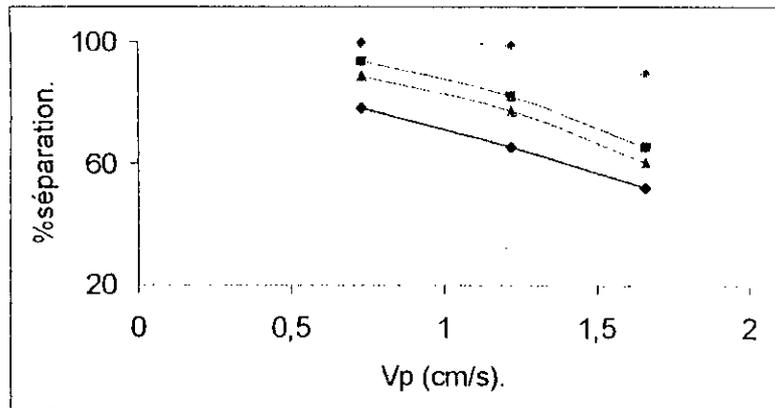
Matériau	Type d'émulsion	Cs (mg/l)	% séparation
<b>Matériau traité à la silicone</b> dp=4.06mm	sans tensio- actif	88.43	93.04
	+ 100 mg/l tensio-actif anionique	253.65	80.04
	+ 100 mg/l tensio-actif cationique	374.89	70.5
	+ 100 mg/l tensio- actif non ionique	539.58	57.54
<b>Matériau traité au polytétrafluoroéthylène</b> dp=4.65mm	sans tensio- actif	42.57	96.65
	+ 100 mg/l tensio-actif anionique	82.60	93.50
	+ 100 mg/l tensio-actif cationique	277.03	78.2
	+ 100 mg/l tensio-actif non ionique	146.77	88.45

Tableau VII.5. Résultats comparatifs de l'influence de la présence des agents tensio- actifs dans la phase continue sur le rendement de séparation des deux cellules de coalescence

Malgré une granulométrie élevée, nous remarquons des rendements de séparation importants pour ce type de garnissage ,même en présence des agents tensio-actifs .

L'augmentation de la vitesse de passage perturbe la coalescence de la phase dispersée . Au fur et à mesure que la vitesse de passage augmente, le milieu se trouble par un relargage de fines gouttelettes. Effectivement à des vitesses de passages élevées, les forces hydrodynamiques visqueuses à l'intérieur du lit deviennent plus importantes, jusqu'à atteindre des valeurs supérieures aux forces d'adhésion entre la phase coalescée et le solide coalesceur qui diminuent en présence des agents tensio- actifs, ce qui provoquera l'entraînement de la phase dispersée vers la surface de relargage.

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure VII.8.



**Figure VII.8** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.

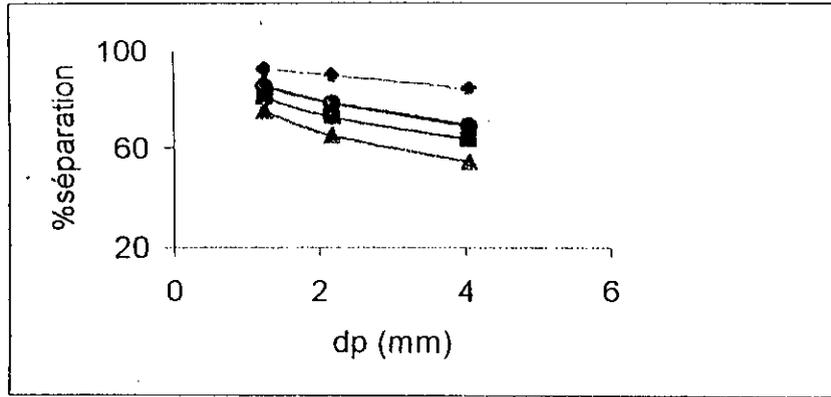
① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.

#### IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A PARTIR DES CELLULES DE COALESCENCE HYDROPHILES

Dans les mêmes conditions opératoires, nous avons testé des cellules de coalescence constituées d'un matériau hydrophile de granulométrie respective de 1.25mm ; 2.17mm ; 4.06mm

##### IV.1- Influence de la granulométrie du matériau coalesceur

De la même façon, nous avons procédé à l'étude de l'effet de la granulométrie du matériau coalesceur hydrophile sur le rendement de séparation de la cellule de coalescence. Dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons obtenu les résultats représentés par les courbes de la figure VII.9 indiquant pour chaque type de tensio-actif, le rendement de séparation des microgouttes de la phase dispersée en fonction de la granulométrie du garnissage.

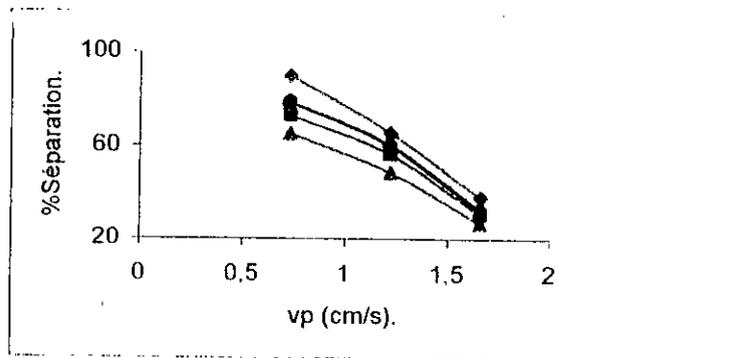


**Figure VII.9** Influence de la granulométrie du matériau coalesceur sur le rendement de séparation.  
 □ : sans tensio-actif ; (1) : tensio-actif anionique ; (2) : tensio-actif cationique ; (3) : tensio-actif non ionique.

Nous observons un relargage accéléré de la phase coalescée sous forme de fines gouttelettes, ce qui explique la diminution du rendement de séparation dans ce cas de figure. En présence du tensio-actif cationique, les rendements de séparation sont plus importants et l'on remarque que la cellule a un comportement d'une cellule hydrophobe après quelques heures de fonctionnement.

#### IV.2- Influence de la vitesse de passage de l'émulsion

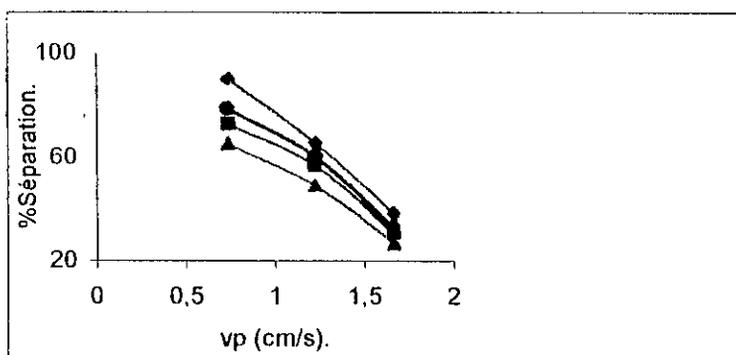
Les figures VII.10.1 ; VII.10.2 et VII.10.3 représentent pour chaque type d'agent tensio-actif injecté en amont du venturi et pour chaque granulométrie du matériau coalesceur hydrophile et dans les mêmes conditions expérimentales, l'évolution du rendement de séparation de la cellule de coalescence en fonction de la vitesse de passage de l'émulsion.



**Figure VII.10.1.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.

dp=1.25 mm

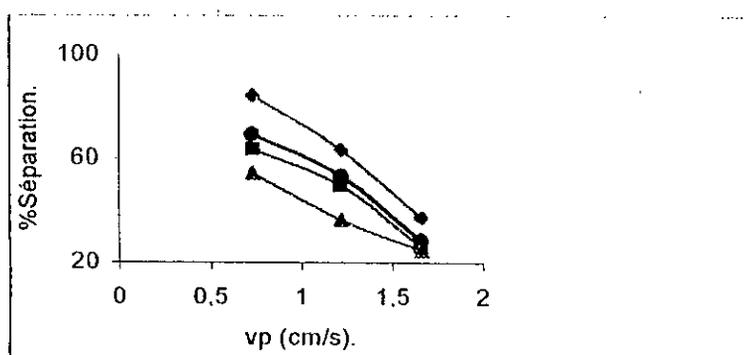
□ : sans tensio-actif ; (1) : tensio-actif anionique ; (2) : tensio-actif cationique ; (3) : tensio-actif non ionique.



**Figure VII.10.2.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.

$dp = 2.17 \text{ mm.}$

① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.



**Figure VII.10.3.** Influence de la vitesse de passage sur le rendement de séparation pour chaque type de tensio-actif.

$dp = 4.06 \text{ mm.}$

① : sans tensio-actif ; ② : tensio-actif anionique ; ③ : tensio-actif cationique ; ④ : tensio-actif non ionique.

Quand la vitesse de passage augmente, très vite le milieu se trouble par un réfractionnement de la phase coalescée au niveau du décanteur et un phénomène de moussage apparaît. On s'aperçoit que la séparation des phases est très sensible à l'augmentation de la vitesse de passage. Ceci est dû vraisemblablement au rapport des forces hydrodynamiques visqueuses «  $F_{HV}$  » sur les forces d'adhésion «  $F_{adh}$  » de la phase hydrocarbure sur le solide coalesceur en présence d'eau ( $F_{HV} / F_{adh}$ ). En effet les forces hydrodynamiques visqueuses «  $F_{HV}$  » liées à la vitesse de passage de l'émulsion sont importantes et les forces d'adhésion «  $F_{adh}$  » sont plus faibles en présence des agents tensio-actifs. De ce fait les gouttelettes de la phase dispersée sont entraînées à travers la cellule et sont relarguées sous forme de très fines gouttelettes responsables de la turbidité de l'effluent.

## V. INFLUENCE DE LA PRESENCE DE L'AGENT TENSIO ACTIF DANS LA PHASE DISPERSEE SUR L'EFFICACITE DE SEPARATION DES CELLULES DE COALESCENCE

Des essais comparatifs ont été effectués entre trois cellules de coalescence constituées respectivement: d'un matériau hydrophile, d'un matériau hydrophobe siliconé et d'un matériau hydrophobe fluoré .

Dans les mêmes conditions expérimentales , nous avons testé les performances des cellules de coalescence dans le cas où 100 mg/l de tensio -actif sont injectés dans la phase dispersée . En effet, nous avons mesuré pour chaque granulométrie du matériau coalesceur testé , en régime permanent, la concentration résiduelle en kérosène de l'effluent et calculé le rendement de séparation.

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau VII.6.

Matériau coalesceur	Granulométrie du matériau coalesceur (mm).	Cs (mg/l)	% séparation
Matériau hydrophile	1.25	139.53	89.02
	2.17	205.23	83.85
	4.06	282.11	77.80
Matériau hydrophobe siliconé	1.25	40.41	96.82
	2.17	73.07	94.25
	4.06	171.13	86.53
Matériau hydrophobe fluoré	4.65	64.42	94.93

Tableau VII.6. Influence de la présence de 100 mg/l de tensio -actif non ionique soluble dans la phase dispersée sur les performances d'épuration des trois cellules de coalescence.

Les rendements de séparation obtenus sur les trois types de cellule de coalescence en présence de 100 mg/l d'agent tensio-actif soluble dans la phase dispersée sont du même ordre que ceux obtenus sur les mêmes cellules sans l'ajout d'agents tensio- actifs. Ceci montre que le tensio- actif soluble dans la phase dispersée n'affecte pas l'efficacité de séparation des deux phases comme dans le cas des tensio- actifs solubles dans la phase aqueuse . Nous supposons que ceci est lié aux propriétés physiques des agents tensio- actifs utilisés . En effet un tensio actif soluble dans l'eau favorise la formation de l'émulsion directe (o/w) et un tensio actif soluble dans la phase huile favorise la formation de l'émulsion inverse (w/o) [19]. L'UNIDEM 404 est un agent tensio-actif soluble dans la phase dispersée ; il joue le rôle d'un désémulsifiant, ! rendant ainsi l'émulsion testée plus instable et facilement séparable.

Aussi, nous avons observé à la sortie des cellules de coalescence testées, un relargage accéléré de gouttes de phase dispersée , mais la concentration résiduelle mesurée à la sortie du lit coalesceur ne présente pas d'écarts importants. Les gouttes relarguées ont un diamètre moindre mais suffisamment important pour décanter instantanément.

## VI. CONCLUSION

Les résultats obtenus, montrent que la présence des agents tensio- actifs dans la phase aqueuse influence les rendements de séparation des cellules de coalescence testées. Ceci est dû aux diamètres des gouttelettes de l'émulsion injectée, mais aussi aux charges superficielles qui créent un effet de répulsion entre les gouttes.

Cependant, mis à part le tensio- actif cationique, les cellules de coalescence hydrophiles sont les plus sensibles à la présence de ces derniers. Ceci semble être dû au faible travail d'adhésion de la phase dispersée sur le solide coalesceur hydrophile en présence de la phase aqueuse.

Nous remarquons que l'ajout d'un tensio -actif soluble dans la phase dispersée affecte sensiblement l'efficacité des cellules de coalescence

La vitesse de passage devient un facteur limitant en présence des agents tensio- actifs. En effet nous remarquons une baisse sensible des rendements de séparation et nous constatons que les cellules de coalescence hydrophiles sont les plus influencées et les plus sensibles.

Le phénomène de relargage est particulier en présence des agents tensio-actifs. Effectivement les gouttes relarguées sont plus fines et au fur et à mesure que la vitesse de passage augmente, des phénomènes de réfractionnement et autres apparaissent. Ce phénomène est très particulier dans le cas des cellules hydrophiles.

# **CHAPITRE VIII : ETUDE DE LA MOUILLABILITE DES MATERIAUX COALESCEURS EN PRESENCE DES AGENTS TENSIO-ACTIFS**

**I. INTRODUCTION**

**II. RESULTATS EXPERIMENTAUX**

**III. INTERPRETATION DES RESULTATS**

## I. INTRODUCTION

Nous avons évalué la mouillabilité des différents matériaux coalesceurs testés en présence des agents tensio-actifs choisis, dans le but d'étudier l'influence de ces derniers sur le comportement de la phase dispersée de l'émulsion sur le solide coalesceur.

## II. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les tableaux VIII.1, VIII.2, VIII.3 et VIII.4 représentent pour chacun des agents tensio-actifs solubles dans la phase aqueuse, l'influence de la concentration de ces derniers sur les paramètres caractéristiques de la mouillabilité de chacune des surfaces de coalescence.

### Tensio-actif anionique.

Concentration des agents tensio-actifs (mg/l)	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne/cm)	Travail d'adhésion $W_{adh}$ so/w (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) (dyne/cm)
0	22.50	35.00	67.30	32.30
50	34.50	22.90	41.76	18.86
100	40.50	12.60	22.17	9.57
500	26.50	8.40	15.90	7.50
1000	30.66	4.10	7.62	3.52

### Tensio-actif non ionique.

0	22.50	35.00	67.30	32.30
50	40.00	8.90	15.71	6.81
100	40.00	4.80	8.47	3.67
500	50.00	4.70	7.71	3.01
1000	48.00	3.50	5.84	2.34

### Tensio-actif cationique.

0	22.50	35.00	67.30	32.30
50	26.00	7.70	14.61	6.91
100	44.00	7.30	12.54	5.24
500	39.00	4.70	8.35	3.65
1000	39.00	4.60	8.17	3.57

Tableau VIII.1. Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité du solide coalesceur traité au polytétrafluoroéthylène, en présence des agents tensio-actifs testés.

**Tensio-actif anionique.**

Concentration des agents tensio-actifs (mg/l)	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne/cm)	Travail d'adhésion Wadh so/w (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{sw}-\gamma_{so}$ ) (dyne/cm)
0	62	35.0	51.41	16.41
50	44	22.90	39.36	16.46
100	48	12.60	21.02	8.42
500	47	8.40	14.12	5.72
1000	50	4.10	6.73	2.63

**Tensio-actif non ionique.**

0	62	35.00	51.41	16.41
50	46	8.90	15.07	6.17
100	64	4.80	6.90	2.10
500	45	4.70	8.02	3.32
1000	63	3.50	5.08	1.58

**Tensio-actif cationique.**

0	62	35.0	51.41	16.41
50	38	7.70	13.76	6.06
100	54	7.30	11.58	4.21
500	47	4.70	7.90	3.20
100	52	4.60	7.43	2.83

Tableau VIII.2. Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité de la surface de coalescence traitée à la silicone, pour les différents agents tensioactifs testés.

**Tensio-actif anionique.**

Concentration des agents tensio actifs (mg/l)	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré)	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne/cm)	Travail d'adhésion Wadh so/w (erg/cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{sw}-\gamma_{so}$ ) (dyne/cm)
0	148	35.0	5.32	-29.68
50	160	22.9	1.39	-21.50
100	142.5	12.6	2.60	-9.99
500	159	8.4	0.560	-7.83
1000	143.5	4.1	0.80	-3.29

**Tensio-actif non ionique.**

0	148	35.00	5.320	-29.68
50	150	8.90	1.192	-7.70
100	145	4.80	0.868	-3.93
500	154	4.70	0.479	-4.22
1000	152	3.50	0.413	-3.087

**Tensio actif cationique.**

0	148	35.0	5.32	-29.68
50	48	7.70	12.85	5.151
100	40	7.30	12.89	5.59
500	36	4.70	8.50	3.802
1000	35	4.60	8.36	3.767

**Tableau VIII.3.** Résumé des paramètres caractérisant la mouillabilité du matériau coalesceur hydrophile, pour les différents agents tensio-actifs testés.

**Tensio- actif anionique.**

Concentration des agents tensio-actifs (mg/l).	Angle de contact $\theta_{o/w}$ (degré ).	Tension interfaciale $\gamma_{o/w}$ (dyne /cm).	Travail d'adhésion $W_{adh\ so/w}$ (erg /cm <sup>2</sup> )	Différence de tension interfaciale ( $\gamma_{sw}-\gamma_{so}$ ) (dyne /cm)
0	162	35.00	1.71	-33.28
50	156	22.90	1.99	-20.90
100	155	12.60	1.18	-11.41
500	152	8.40	0.99	-7.40
1000	149	4.10	0.58	-3.51

**Tensio- actif non ionique.**

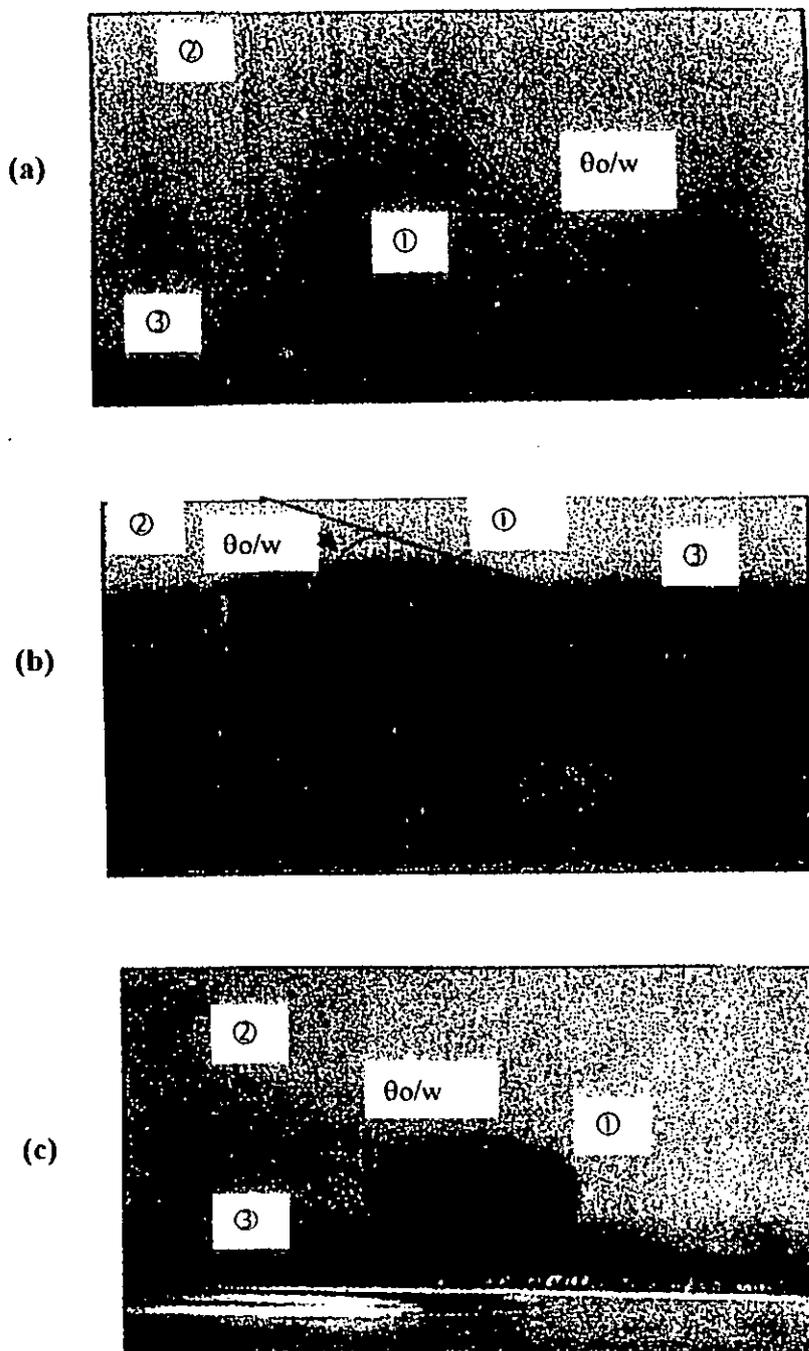
0	162	35.00	1.710	-33.28
50	165	8.90	0.311	-8.58
100	160	4.80	0.292	-4.50
500	157	4.70	0.376	-4.32
1000	158	3.50	0.255	-3.24

**Tensio-actif cationique.**

0	162	35.00	1.715	-33.28
50	156	7.70	0.66	-7.03
100	147	7.30	1.18	-6.11
500	38	4.70	8.40	3.70
1000	32	4.60	8.50	3.90

Tableau VIII.4. Résumé des divers paramètres caractérisant la mouillabilité de la surface de coalescence en acier inoxydable, pour les différents agents tensio-actifs testés.

Les photos de la figure VIII.1 illustrent quelques mesures des angles de contact de la phase dispersée sur différentes surfaces de coalescence en présence de la phase aqueuse.



**Figure VIII.1.** Photos caractéristiques du comportement de la phase kérosène (1) au contact de la surface de coalescence (3) en présence de la phase aqueuse (2).

(a) : Surface de coalescence traité à la silicone,  $\theta_{o/w} = 62^\circ$ .

(b) : Surface de coalescence traité au polytétrafluoroéthylène,  $\theta_{o/w} = 40^\circ$  en présence de l'agent tensio-actif non ionique.

(c) : Surface de coalescence en acier inoxydable.  $\theta_{o/w} = 162^\circ$ .

### III. INTERPRETATION DES RESULTATS

D'après les relations décrites dans le chapitre IV, le travail d'adhésion entre un solide et un liquide s'écrit selon la relation:

$$W_{adh} (so)/w = \gamma_{o/w} (1 + \cos \theta_{o/w}) \quad (VIII.1) \quad [15]$$

avec :

- $W_{adh} so/w$  : travail d'adhésion d'une phase hydrocarbure en présence d'eau à la surface d'un solide.
- $\gamma_{o/w}$  : tension interfaciale entre la phase dispersée (huile) et la phase continue (eau).

Cette relation montre que pour une émulsion donnée, le travail d'adhésion dépend de la tension interfaciale ( $\gamma_{o/w}$ ) et de l'angle de contact ( $\theta_{o/w}$ ).

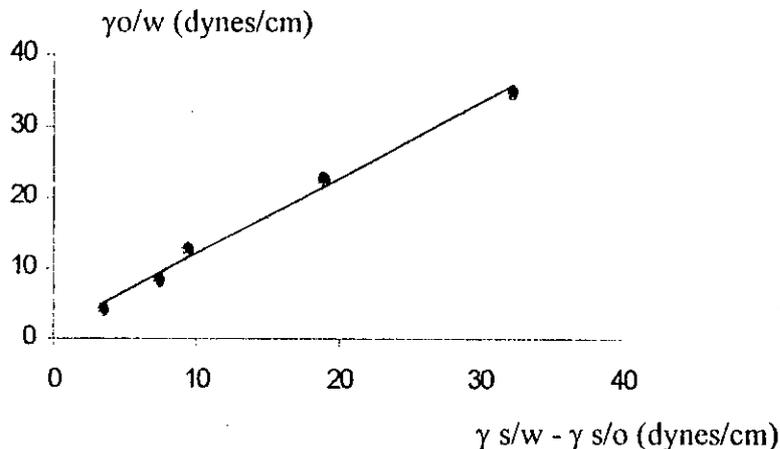
Cependant, nous observons que si la tension interfaciale ( $\gamma_{o/w}$ ) est fortement abaissée pour des doses croissantes des agents tensio-actifs dans la phase continue, l'angle de contact ( $\theta_{o/w}$ ) par contre n'est pas modifié, ceci permet de conclure, selon la relation de young [15] :

$$\gamma_{s/w} = \gamma_{s/o} + \gamma_{o/w} \cdot \cos \theta_{o/w} \quad (VIII.2)$$

d'où

$$\cos \theta_{o/w} = \frac{\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}}{\gamma_{o/w}} \quad (VIII.3)$$

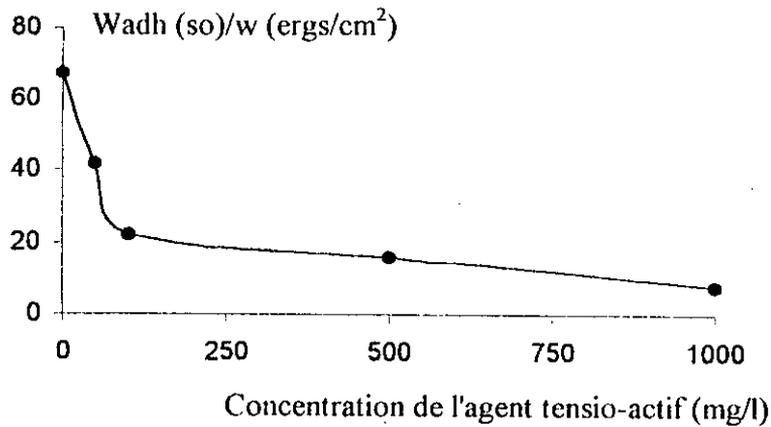
que ce sont les valeurs des tensions interfaciales solide -phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide -phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ) qui diminuent dans un même rapport que la tension interfaciale  $\gamma_{o/w}$  (voir figure VIII.2).



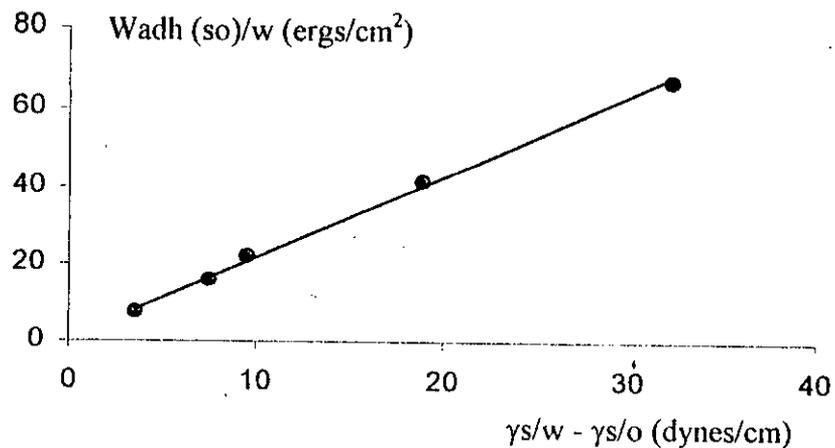
**Figure VIII.2.** Evolution de la différence des tensions interfaciales solide -phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide -phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ) en fonction de la tension interfaciale phase dispersée-phase aqueuse ( $\gamma_{o/w}$ ).

Donc ,si l'angle de contact  $\theta_{o/w}$  reste constant ,le travail d'adhésion diminue en fonction de la concentration des agents tensio-actifs (voir figure VIII.3) dans un même rapport que la différence des tensions interfaciales solide –phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide –phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ) (voir figure VIII.4) puisque le travail d'adhésion  $W_{adh}(so)/w$  est exprimé par la relation VIII.4:

$$W_{adh}(so)/w = (\gamma_{o/w}) + (\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}) \quad (VIII.4)$$



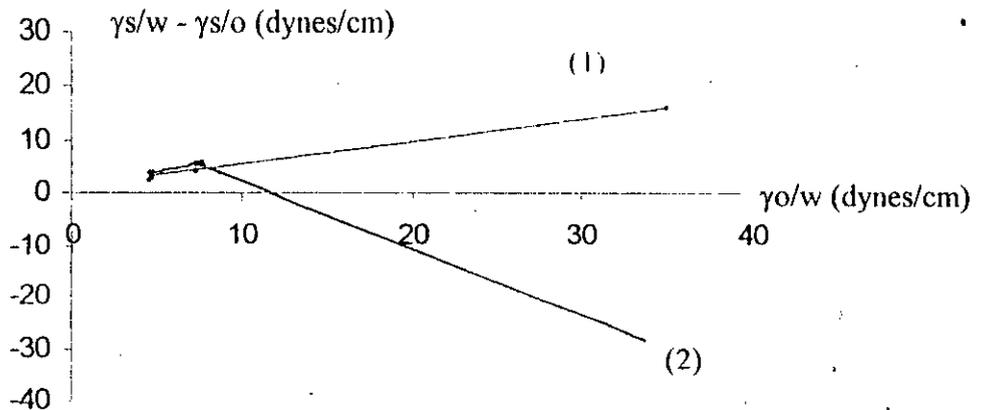
**Figure VIII.3.** : Evolution du travail d'adhésion de la phase hydrocarbure sur la surface de coalescence traitée au polytétrafluoroéthylène en fonction de la concentration de l'agent tensio-actif anionique dans la phase aqueuse.



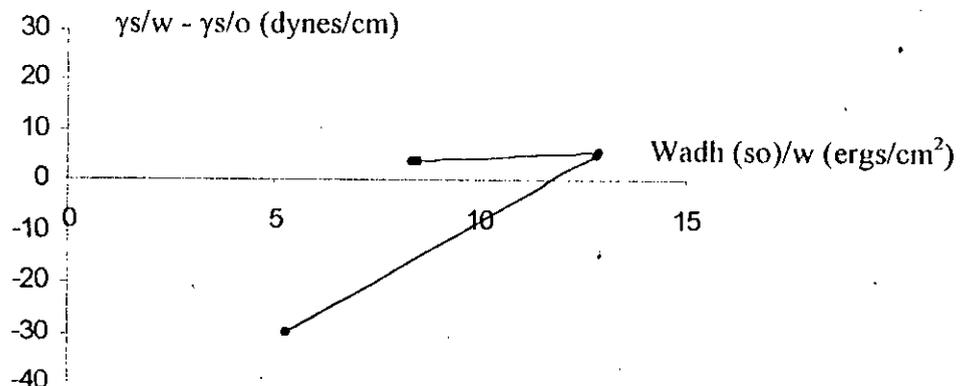
**Figure VIII.4.** : Evolution du travail d'adhésion de la phase hydrocarbure sur la surface de coalescence traitée au polytétrafluoroéthylène en présence de l'agent tensio-actif anionique en fonction de la différence des tensions interfaciales solide –phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide –phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ).

Par contre nous remarquons des résultats fort intéressants dans le cas de l'agent tensio-actif cationique sur le verre et l'acier. Nous constatons que la présence de ce dernier dans la phase continue, rend hydrophobe le verre à une concentration de 50 mg/l et l'acier à une concentration de 500 mg/l.

Ce phénomène d'inversion de mouillabilité s'explique par le greffage des molécules de tensio-actif cationique sur la surface polaire du matériau, pour constituer un film superficiel à caractère hydrophobe [ 7]. Les courbes de la figure VIII.5 et la figure VIII.6 illustrent ce phénomène d'inversion de mouillabilité.



**Figure VIII.5.** Evolution de la différence des tensions interfaciales solide-phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide-phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ) en fonction de la tension interfaciale phase dispersée-phase aqueuse ( $\gamma_{o/w}$ ).  
 (1): Verre hydrophobe en présence de l'agent tensio-actif cationique.  
 (2): Verre hydrophile en présence de l'agent tensio-actif cationique.



**Figure VIII.6.** Evolution du travail d'adhésion de la phase hydrocarbure sur le verre hydrophile en présence de l'agent tensio-actif cationique en fonction de la différence des tensions interfaciales solide-phase aqueuse ( $\gamma_{s/w}$ ) et solide-phase dispersée ( $\gamma_{s/o}$ ).

Les photos de la figure VIII.7 et la figure VIII.8 caractérisent ce phénomène d'inversion de mouillabilité.

Cette observation est importante, car la surface de relargage est constituée d'une grille en acier inoxydable hydrophile. L'utilisation d'un tensio-actif cationique rendra cette surface de relargage mouillable par la phase hydrocarbure. Ce qui présente un inconvénient pour un bon relargage de la phase coalescée.

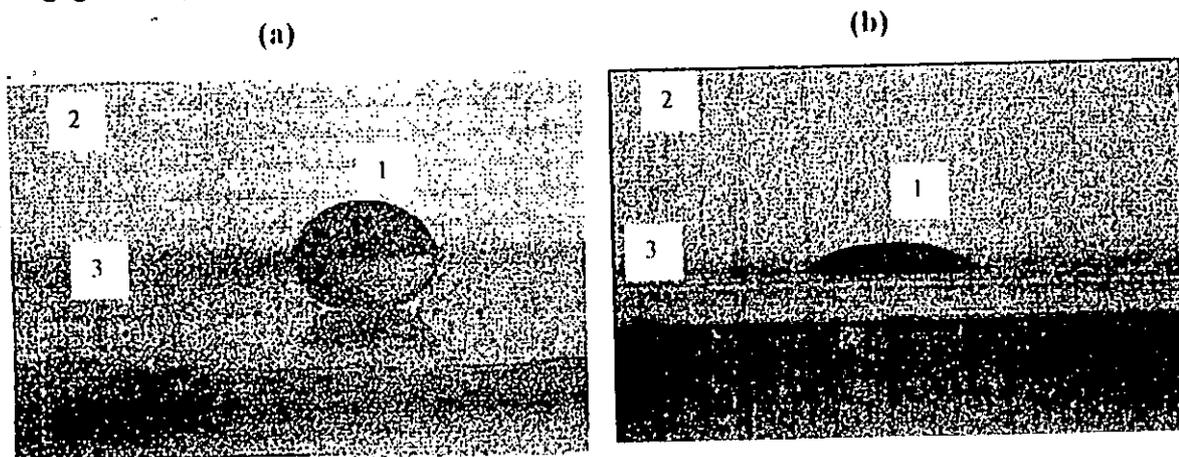


Figure VIII.7. Caractérisation du phénomène d'inversion de mouillabilité du verre hydrophile (3) vis à vis d'une goutte de kérosène (1) en présence d'agent tensio-actif dans la phase continue (2).

(a) : en l'absence d'agent tensio-actif.  $\theta_{o/w} = 148^\circ$ .

(b) : en présence de 1000 mg/l de tensio-actif cationique  $\theta_{o/w} = 35^\circ$ .

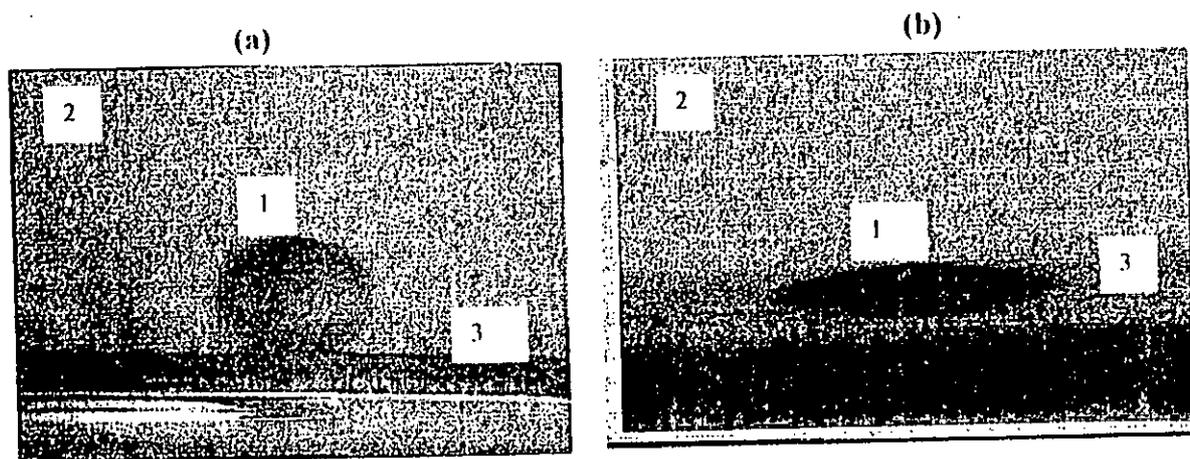


Figure VIII.8. Caractérisation du phénomène d'inversion de mouillabilité de l'acier inoxydable (3) vis à vis d'une goutte de kérosène (1) en présence d'agent tensio-actif dans la phase continue (2).

(a) : en l'absence d'agent tensio-actif  $\theta_{o/w} = 162^\circ$ .

(b) : en présence de 1000 mg/l de tensio-actif cationique  $\theta_{o/w} = 32^\circ$ .

# **CHAPITRE IX. VISUALISATION DES PHENOMENES D'INTERACTION DANS LE DOMAINE DE LA COALESCENCE**

## **I. INTRODUCTION**

## **II. ETUDE DES INTERACTIONS ENTRE LES GOUTTES D'HYDROCARBURE ET LES SOLIDES COALESCEURS**

### **II.1. Dispositif expérimental**

### **II.2. Essais expérimentaux**

#### **II.2.1. Essais expérimentaux en statique**

##### **II.2.1.1. Influence de la mouillabilité de la surface de coalescence**

**II.2.1.1.1. Surface de coalescence hydrophobe préférentiellement mouillée par la phase hydrocarbure**

**II.2.1.1.2. Surface de coalescence hydrophile non mouillée par la phase hydrocarbure.**

##### **II.2.1.2. Influence de la présence d'un agent tensio - actif dans la phase aqueuse**

**II.2.1.2.1. Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe**

**II.2.1.2.2. Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile**

##### **II.2.1.3. Influence de la présence d'un agent tensio actif dans la phase dispersée**

**II.2.1.3.1. Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe**

**II.2.1.3.2. Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile**

#### **II.2.2. Essais expérimentaux en dynamique**

##### **II.2.2.1. Garnissage hydrophobe**

##### **II.2.2.2. Garnissage hydrophile**

### **II.3. Conclusion**

## **III. ETUDE DU PHENOMENE DE RELARGAGE**

### **III.1. Observation des phénomènes**

#### **III.1.1. Surface de relargage hydrophile**

#### **III.1.2. Surface de relargage hydrophobe**

### **III.2. Conclusion**

## **IV. CONCLUSION**

## I. INTRODUCTION

Le but de ce chapitre est d'analyser les mécanismes des interactions qui se produisent entre les différentes phases en présence : phase solide – phase dispersée – phase continue au cours des différentes étapes de la séparation par coalescence et d'étudier l'influence et les perturbations provoquées par la présence des agents tensio-actifs au niveau des différentes surfaces de coalescence.

Les phénomènes mis en jeu seront visualisés dans des cellules modèles transparentes par un système de microscopie à grande profondeur de champs et par système vidéo.

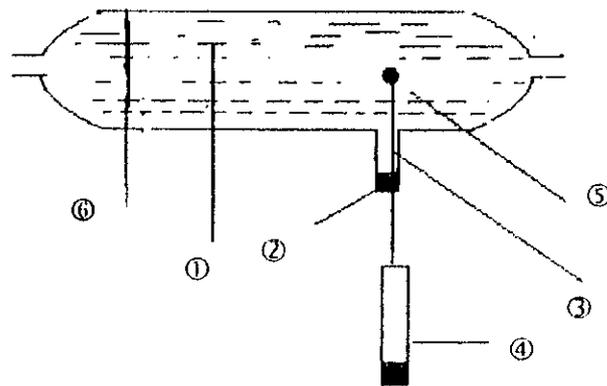
## II. ETUDE DES INTERACTIONS ENTRE LES GOUTTES D'HYDROCARBURE ET LES SOLIDES COALESCEURS

### II.1- Dispositif expérimental

Dans le but de bien visualiser les phénomènes mis en jeu dans les lits coalesceurs, lorsque les gouttelettes d'hydrocarbures viennent au contact du garnissage, qui correspond à une surface de coalescence, nous avons utilisé deux montages permettant de visualiser cette étape en statique et en dynamique.

#### a) *En statique :*

La figure IX.1 illustre le schéma de la cellule transparente cylindrique utilisée pour l'étude en statique, des interactions gouttes d'hydrocarbure- surface de coalescence, gouttes d'hydrocarbure-phase coalescée.



**Figure IX.1** Schéma d'une cellule transparente utilisée pour l'étude en statique, des interactions gouttes d'hydrocarbure- surface de coalescence.

Cette cellule se compose d'un tube cylindrique ① de 50mm de diamètre, rempli d'eau. Sur ce tube est placé un raccord type SVL comportant une pastille en caoutchouc ②. Par l'intermédiaire de cette dernière, on injecte au moyen de l'aiguille ③ d'une micro seringue ④

des gouttes de kérosène coloré en rouge ⑤, qui vont interagir au niveau de la génératrice supérieure ⑥ de la cellule, jouant ainsi le rôle d'une surface solide de coalescence.

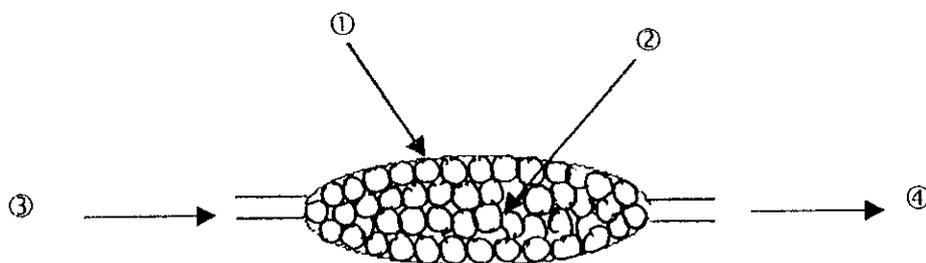
Pour avoir un caractère hydrophile marqué, la surface interne de la cellule est parfaitement décapée par un mélange sulfochromique. Dans le cas contraire, où l'on recherche une surface hydrophobe, la surface interne de la cellule est revêtue d'un film de silicone selon la procédure opératoire décrite dans le chapitre VI.

L'observation est réalisée au moyen d'un microscope stéréoscopique type CITOVAL 2 équipé d'un zoom et d'un appareil photographique type PRAKTIKA.

A partir de cette cellule, il est possible de mesurer les temps de coalescence pour les différents types de parois et différents types d'interactions.

### b) *En dynamique* :

Nous avons utilisé une pastille en verre ① schématisée par la figure IX.2, à l'intérieur de laquelle, nous avons inséré une couche de matériau traité ② et nous avons placé celle-ci sur la platine d'un microscope type CITOVAL 2. L'émulsion générée dans les mêmes conditions que pour les cellules de coalescence est envoyée à l'entrée ③ de la pastille au moyen d'une pompe péristaltique à débit réglable. Après passage au travers la pastille, celle-ci est rejetée par la sortie ④. Des phénomènes intéressants sont mis en évidence par les photos. L'appareil de prise de vue étant directement fixé sur le microscope.



**Figure IX.2.** Schéma d'une pastille en verre ovoïde, transparente utilisée pour l'étude en dynamique, des interactions gouttes d'hydrocarbure- surface de coalescence.

Ce matériau traité peut être hydrophile par lavage de ce dernier au moyen d'un mélange sulfochromique ou hydrophobe par traitement à la silicone selon le mode opératoire décrit dans le chapitre VI.

## II.2- Essais expérimentaux

### II.2.1. Essais expérimentaux en statique

Nous avons effectué deux études concernant les interactions entre les gouttes de kérosène et la paroi de coalescence. La première concerne la cellule en verre présentant un caractère

hydrophile marqué. Par contre, la seconde étude concerne une cellule en verre rendue hydrophobe par traitement à la silicone.

### *II.2.1.1- Influence de la mouillabilité de la surface de coalescence*

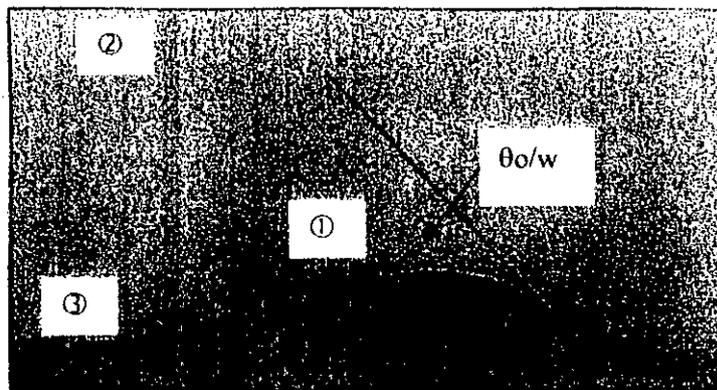
Pour les deux cas cités ci-dessus, la cellule est remplie d'eau et placée horizontalement; ensuite on forme et on libère des gouttes de kérosène ayant un volume de 20  $\mu\text{l}$  environ.

Dans une première phase, on étudie les interactions entre les gouttes de kérosène et la surface de coalescence «vierge» qui correspond au régime de fonctionnement transitoire du coalesceur.

Dans une deuxième phase, on étudie les interactions entre les gouttes de kérosène et les films de kérosène accumulés et formés au niveau de la génératrice supérieure, phase qui correspond au régime de fonctionnement permanent du coalesceur.

#### *II.2.1.1.1- Surface de coalescence hydrophobe préférentiellement mouillée par la phase hydrocarbure*

Une goutte de kérosène en présence d'eau sur une surface de verre siliconée forme un angle d'équilibre de  $62^\circ$ , comme le montre la photo de la figure IX.3.



**Figure IX.3.** Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact du matériau traité à la silicone (3) en présence d'eau (2).

*Mouillabilité préférentielle de la surface de coalescence par le kérosène en présence d'eau ( $\theta_{o/w} = 62^\circ$ )*

Comme la tension interfaciale kérosène-eau est de 35 dynes/cm, le travail d'adhésion entre la phase hydrocarbure et la paroi de coalescence conformément à l'équation de DUPRE est de 51,41 dynes/cm, ce qui correspond à une différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) de 16,41 dynes/cm, caractéristique d'une bonne mouillabilité de la surface de coalescence siliconée vis à vis de la phase kérosène en présence d'eau.

a) Régime transitoire : interaction gouttes de kérosène - surface de coalescence hydrophobe vierge.

Au moment où la goutte de kérosène heurte la paroi de la surface de coalescence, il y a aussitôt étalement de la goutte sur la surface, ceci conformément au schéma de la figure IX.4 et à la photo de la figure IX.5.

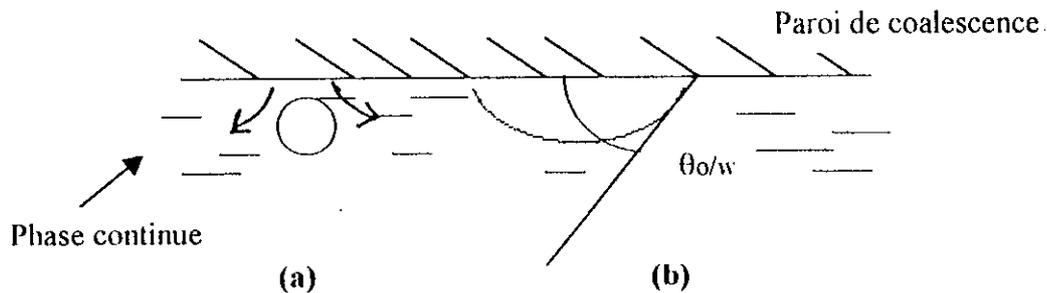


Figure IX.4 . Schématisation de l'interaction entre une goutte de kérosène et une paroi de coalescence hydrophobe.

- (a) :Phase de drainage du film d'eau.
- (b) :Adhésion de la goutte sur le solide.

Le drainage du film d'eau entre la goutte du kérosène et la surface solide est instantané, ce qui permet une adhésion très rapide de la goutte de kérosène sur la paroi de coalescence.



Figure IX.5 Photo caractéristique de l'adhésion d'une goutte de kérosène au niveau de la surface de coalescence hydrophobe.

Après plusieurs interactions de gouttes de kérosène avec la paroi de coalescence, on observe la formation d'une nappe homogène de la phase coalescée comme le montre la photo de la figure IX.6.

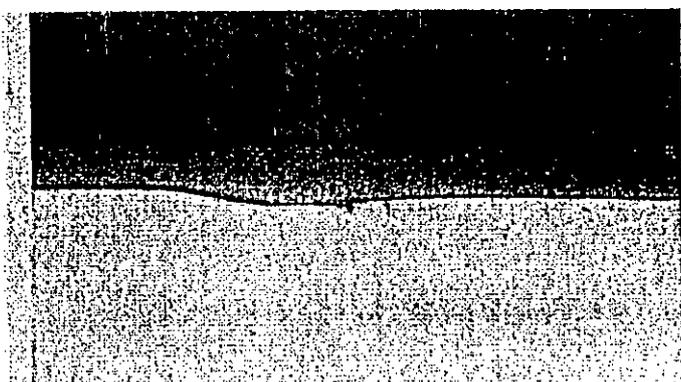


Figure IX.6. Photo caractéristique de la formation d'un film homogène rouge de kérosène au niveau de la surface de coalescence hydrophobe.

*b) Régime permanent : interaction goutte de kérosène - film de kérosène.*

Dans ce cas la surface de coalescence n'est plus une surface solide rigide mais plutôt un interface hydrocarbure- eau déformable. C'est pour cela qu'après interaction entre la goutte de kérosène et le film déjà formé, nous avons constaté que le temps de coalescence de la goutte est bien plus long que lors de la phase transitoire. Le drainage du film d'eau nécessaire à la coalescence s'avère plus long.

Comme le traduit le schéma de la figure IX.7, un piégeage du film d'eau entre la gouttelette et la nappe d'hydrocarbure qui, étant associé à un phénomène d'oscillation, rend le drainage du film d'eau plus long que dans le cas d'un drainage au niveau d'une surface solide non déformable [7].

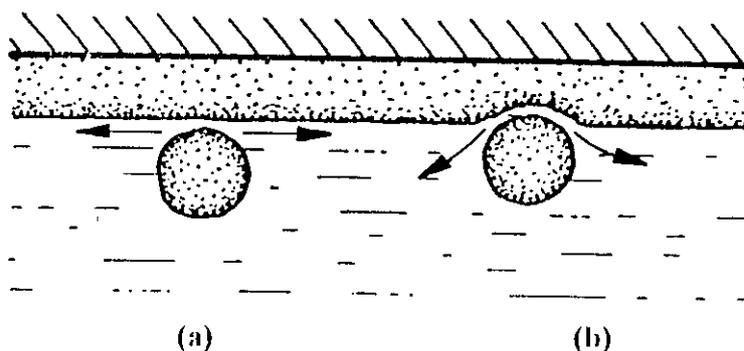
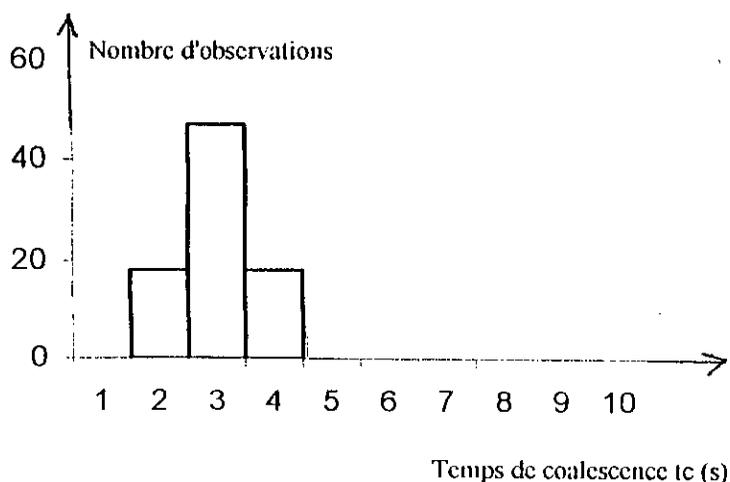


Figure IX.7. Schématisation de l'interaction entre une goutte de kérosène et le film d'hydrocarbure formé à la surface de coalescence hydrophobe.

(a): Phase de drainage du film d'eau.  
 (b): Interaction de la goutte avec le film d'hydrocarbure.

A ce niveau nous avons commencé à mesurer les temps de coalescence des gouttes de kérosène avec le film de kérosène formé. En effet, nous avons effectué 3 séries d'essais. La figure IX.8 caractérise sous forme d'histogramme les temps de coalescence mesurés pour une série d'essais.



**Figure IX.8.** Histogramme des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et le film d'hydrocarbure sur une paroi de coalescence hydrophobe.

*Série n°1, nombre d'interactions : 83,  $t_{mc} = 2.5 \pm 0.26$  s*

Nous constatons que le temps de coalescence est de l'ordre de 2.5 s. Le second phénomène observé lors de la coalescence de la goutte de kérosène est la formation d'une gouttelette de kérosène « satellite » phénomène déjà observé par S.CHERID [7], qui à son tour coalescera avec le film d'hydrocarbure déjà formé pour donner naissance à une autre gouttelette. Ce phénomène non observé lors des interactions gouttes de kérosène - paroi hydrophobe vierge est lié à la déformation de l'interface hydrocarbure- eau considérée.

Pour mieux caractériser la formation des gouttes satellites, nous avons coloré en jaune par du jaune de méthyle le film du kérosène au niveau duquel on étudie les interactions, et en rouge par du rouge de cérol, les gouttes de kérosène libérées. On a pu ainsi observer après rupture du film d'eau, l'écoulement du kérosène rouge constitutif de la goutte au sein du film jaune d'hydrocarbure.

Les divers schémas de la figure IX.9. permettent de décrire le phénomène de coalescence d'une goutte arrivant à une interface.

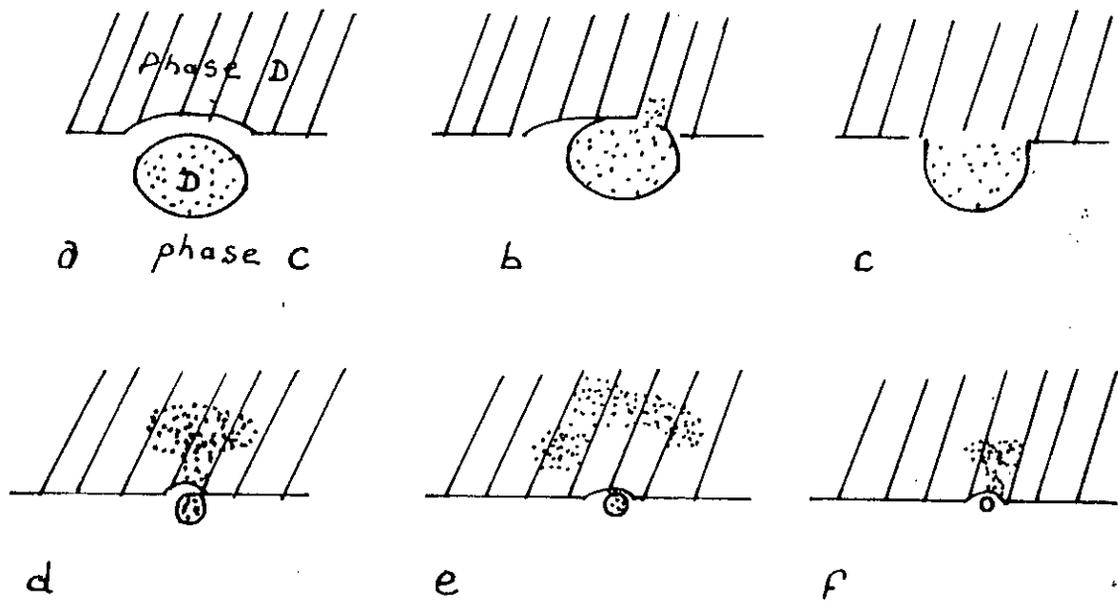


Figure IX.9. Différents stades de la coalescence d'une goutte de kérosène à une interface [77].

- (a): La goutte de kérosène entre en contact avec l'interface phase eau - phase kérosène et se stabilise immédiatement. La partie enfoncée dans l'interface est sphérique et est séparée de l'interface par le film d'eau, la surface libre de la goutte est aplatie.
- (b): Le film se rompt en un point généralement situé à la périphérie.
- (c): En un temps très bref, le film disparaît et la goutte prend la forme décrite sur la figure (c).
- (d): Le liquide contenu dans la goutte s'écoule très rapidement dans la phase kérosène (D) situé au dessus de l'interface en formant un « champignon ». Une goutte secondaire se forme.
- (e): Le champignon se répand petit à petit dans la phase (D).
- (f): La goutte secondaire coalescera selon un processus analogue à la goutte mère en donnant « un champignon ». Une goutte tertiaire se forme et coalescera selon un processus analogue.

JEFFEREYS, CHARLE et MASON [77] ont expliqué comme le traduit le schéma de la figure IX.10, le mécanisme de la formation des gouttes satellites.

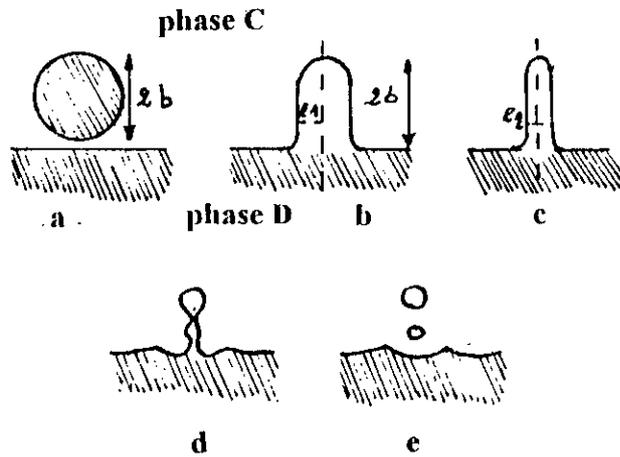


Figure IX.10. Mécanisme de formation des gouttes secondaires. [ 77 ]

Ils ont montré selon la figure IX.10 que la goutte prend la forme d'une colonne cylindro sphérique de hauteur égale au diamètre  $2b$  de la goutte. Le liquide contenu dans cette colonne s'écoule dans la phase (D) sous l'action des forces de pression interfaciale, la hauteur de la colonne restant à peu près constante pendant cet écoulement. Au contraire, son épaisseur diminue et lorsque la circonférence de la base atteint une valeur égale à sa hauteur, elle se comporte comme un jet instable soumis à une perturbation, la colonne se cisaille à la base, libérant le reste du liquide non écoulé, qui constitue la goutte secondaire.

Les divers schémas de la figure IX.11 permettent de mieux comprendre les différentes phases du phénomène qui conduit à la formation de ces gouttes "satellites" [7].

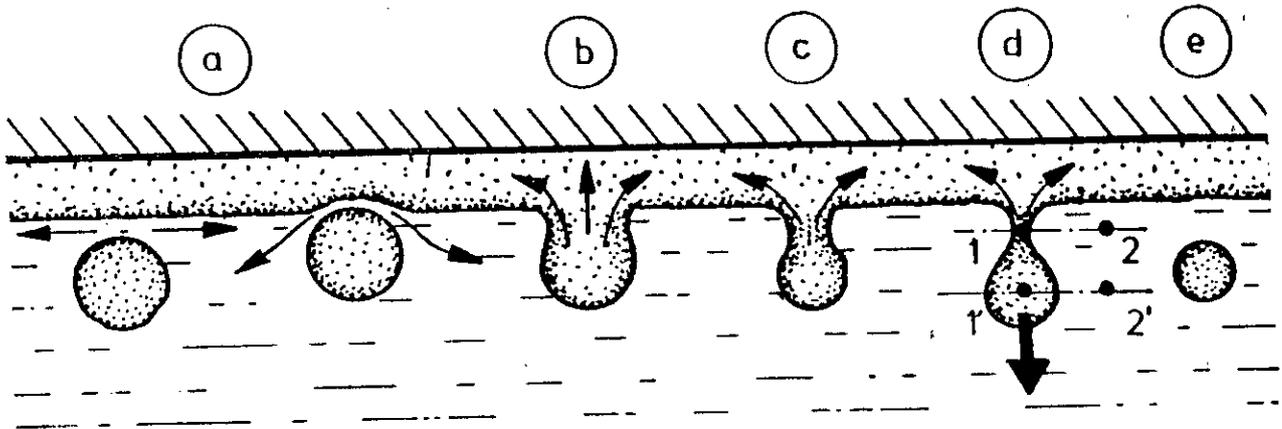


Figure IX.11. Schématisation des différentes phases de la coalescence d'une goutte avec un film d'hydrocarbure formé à la surface d'une paroi de coalescence hydrophobe [7].

- a: phase de drainage du film d'eau.
- b: écoulement de l'hydrocarbure contenu dans la goutte au sein du film.
- c: formation d'une colonne d'hydrocarbure.
- d: apparition d'un phénomène de striction à la base de la colonne.
- e: cassage de la colonne au niveau de la striction et formation de la goutte satellite.

Ce phénomène de formation des gouttes satellites a été démontré par S.CHERID [7] par le calcul suivant:

Si l'on considère le plan P correspondant à la zone de striction de la colonne (schéma d) et le plan P' correspondant au rayon de courbure maximum de la colonne, la loi de LAPLACE entre les points 1-2 et 1'-2' permet d'écrire :

$$\Delta P = \gamma_{o/w} \cdot \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (\text{IX.1}) \quad [7]$$

Avec:

$\Delta P$  : différence de pression entre deux points situés de part et d'autre de l'interface considérée .  
 $R_1$  et  $R_2$  : rayons de courbure principaux de l'interface aux points considérés .

Si l'on admet que  $R_1 = r$  dans le plan P;  $R_1 = R'$  dans le plan P' et que  $R_2 = \infty$  dans le plan perpendiculaire à P et P' ,on peut ainsi écrire:

$$\Delta P_{1-2} = \frac{\gamma_{o/w}}{r} \quad (\text{IX.2}) \quad [7]$$

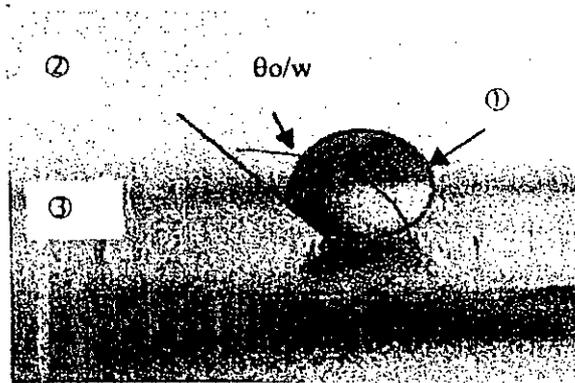
$$\Delta P_{1'-2'} = \frac{\gamma_{o/w}}{R'} \quad (\text{IX.3}) \quad [7]$$

Comme  $R' > r$  et que  $P_2 = P_2'$  ,on déduit que la pression interfaciale dans la colonne considérée ( $P_1$ ) dans la zone de striction est bien plus élevée que la pression ( $P_1'$ ) dans la zone " ventre de la colonne ". En conséquence ,cette différence de pression liée à la déformation de la colonne ,en cours de coalescence ,accentue la déformation de celle-ci jusqu'à sa rupture avec formation de la goutte de kérosène "satellite".

#### ***II.2.1.1.2- Surface de coalescence hydrophile non mouillée par la phase hydrocarbure.***

La surface interne de la cellule est parfaitement décapée par une solution de bichromate de potassium.

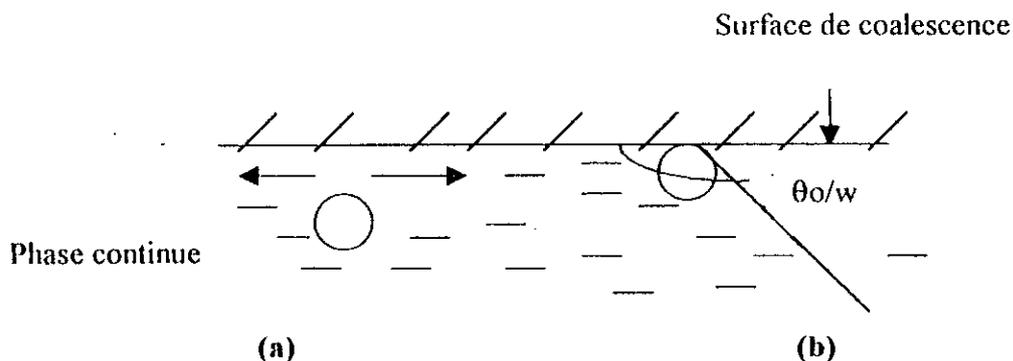
Une goutte de kérosène en présence d'eau sur une surface de verre parfaitement hydrophile , forme comme le montre la photo de la figure IX.12 , un angle de contact ( $\theta_{o/w}$ ) à l'équilibre de 148°. La tension interfaciale kérosène- eau est de 35 dynes/cm ,ce qui entraîne un travail d'adhésion de kérosène sur la surface de verre hydrophile de 5,32 ergs/cm<sup>2</sup>, correspondant à une différence de tension interfaciale ( $\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}$ ) de -29,68 dynes/cm caractéristique d'une mouillabilité de la surface de coalescence par la phase aqueuse.



**Figure IX.12.** Photo caractéristique du comportement de la phase kérosène (1) au contact du matériau (3) en présence d'eau (2).  
*Mouillabilité préférentielle de la surface de coalescence par la phase continue ( $\theta_{o/w} 148^\circ$ )*

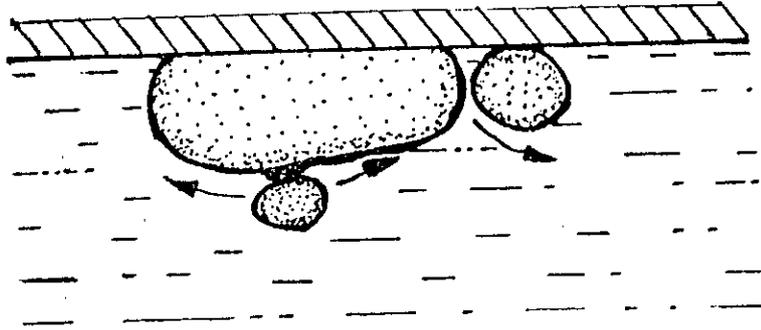
**a) Régime transitoire : interaction gouttes de kérosène - surface de coalescence hydrophile**

Les gouttes de kérosène adhèrent très rapidement à la paroi hydrophile, le drainage du film d'eau comme le traduit le schéma de la figure IX.13 est très rapide et instantané et conduit à l'adhésion de la goutte sur la surface de coalescence.



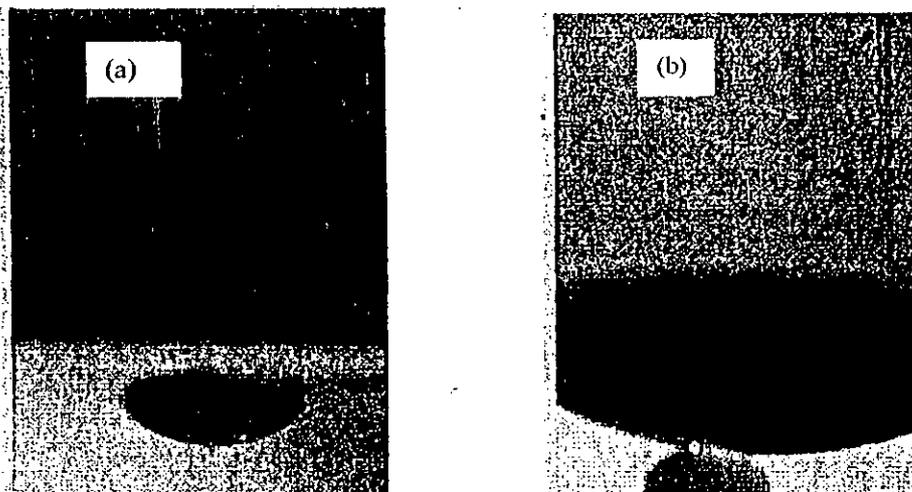
**Figure IX.13.** Schématisation de l'interaction entre une goutte de kérosène et une paroi de coalescence hydrophile.  
 (a) :Phase de drainage du film d'eau.  
 (b) :Phase de coalescence.

Après plusieurs interactions gouttes de kérosène avec la paroi de coalescence, nous avons observé une coalescence partielle des gouttes entraînant la formation d'agglomérats de kérosène comme le traduit la figure IX.14.



**Figure IX.14** . Schéma caractéristique du comportement des gouttes de kérosène injectées sur la paroi de coalescence, effet de coalescence intergouttes et formation d'agglomérats de kérosène.

Les photos de la figure IX.15 caractérisent ce phénomène.

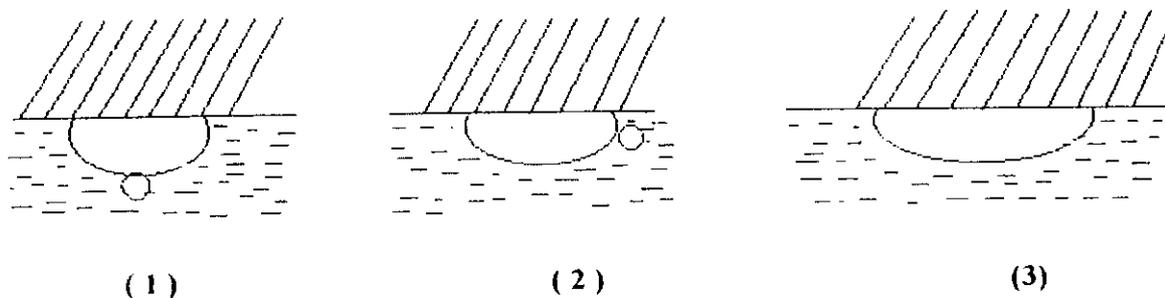


**Figure IX.15** . Photos caractéristiques du comportement des gouttes de kérosène injectées sur une paroi de coalescence hydrophile.

- (a) : Goutte de kérosène sur paroi hydrophile.  
 (b) : Poche ou nappe de kérosène résultant de l'interaction goutte- goutte de kérosène sur la paroi de coalescence hydrophile.

**b) Régime permanent : interaction goutte de kérosène – nappe de kérosène formée .**

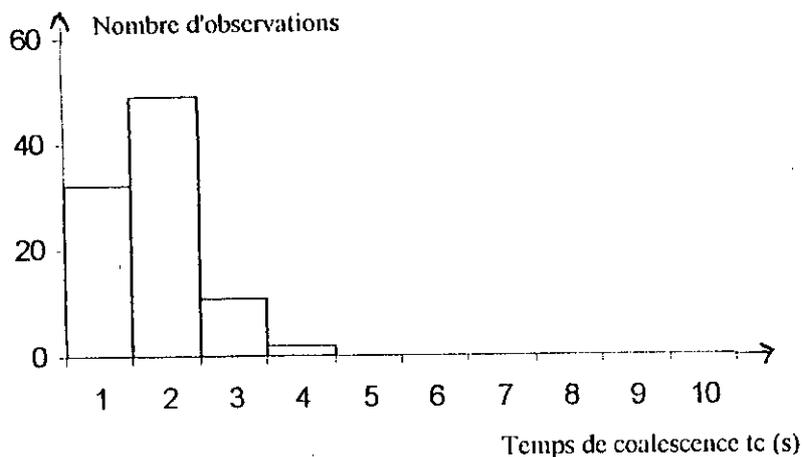
Nous avons observé lors de cette phase, la migration des gouttes de kérosène injectées , à la périphérie des agglomérats de kérosène formés dans la phase précédente, entraînant ensuite un effet de coalescence avec ces derniers comme le traduit la figure IX.16 .



**Figure IX.16 .** Schématisation des interactions goutte - nappe d'hydrocarbure au niveau d'une surface de coalescence hydrophile.

- (1). Glissement de la goutte de kérosène injectée sur la périphérie de la nappe d'hydrocarbure formée.
- (2). Interaction goutte de kérosène - nappe d'hydrocarbure.
- (3). Coalescence goutte de kérosène - nappe de kérosène.

Dans cette phase nous avons mesuré les temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et la nappe de kérosène formée. La figure IX.17 caractérise sous forme d'histogramme les temps de coalescence mesurés pour une série d'essais.



**Figure. IX.17.** Histogramme des temps de coalescence relatifs aux interactions entre gouttes de kérosène et nappe de kérosène sur une paroi de coalescence hydrophile. série n°2, nombre d'interactions : 94 ,  $t_{mc} = 1.31 \pm 0.27s$

### II.2.1.2- Influence de la présence d'un agent tensio-actif dans la phase aqueuse.

Sur le même type de cellules transparentes, l'une hydrophobe et l'autre hydrophile, nous avons procédé à la mesure des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène- film ou nappe d'hydrocarbure. Dans ce cas ,l'eau contenue dans la cellule contient 100 mg/l de chacun des tensio- actifs, anionique , cationique et non ionique cités dans le chapitre (VII).

### ***H.2.1.2.1- Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe.***

Nous distinguons deux phases correspondant respectivement aux régimes transitoire et permanent.

Durant le régime transitoire la quasi totalité des gouttes de kérosène injectées adhèrent à la surface de la paroi de coalescence et forment rapidement un film continu de kérosène.

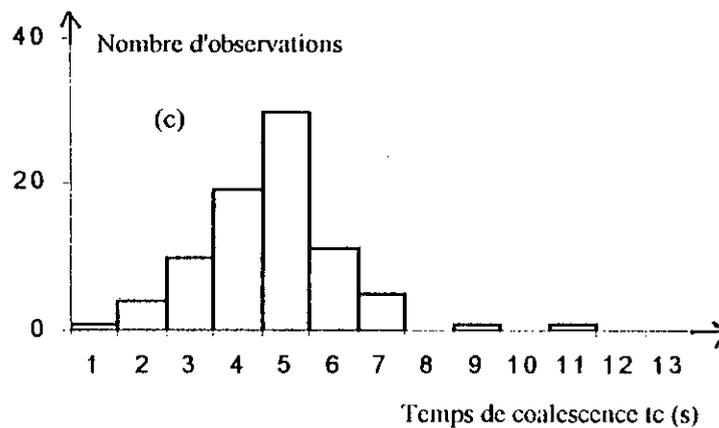
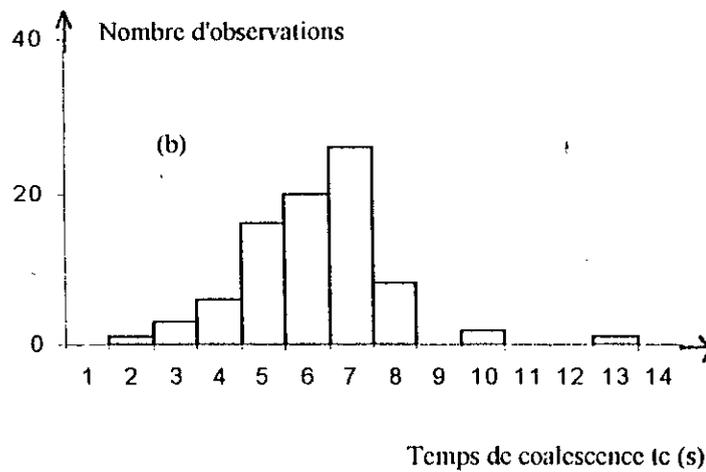
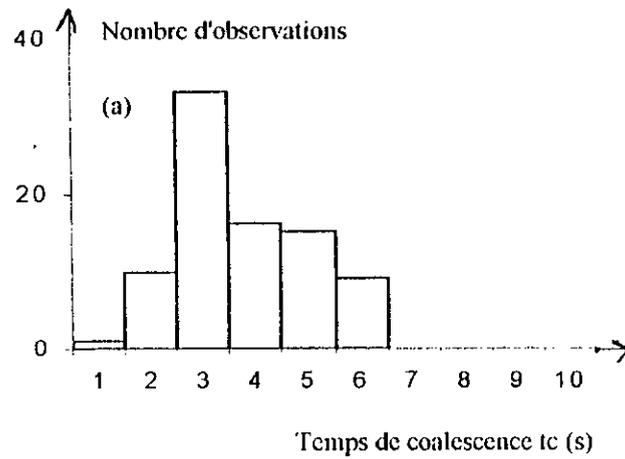
Durant le régime permanent correspondant aux interactions entre les gouttes de kérosène et le film de kérosène formé durant le régime transitoire, la majorité des gouttes de kérosène roulent ou glissent à la surface du film pour y coalescer après un certain de temps qui, en effet, correspond au temps de coalescence.

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau IX.1 et sont comparés à ceux obtenus sans l'ajout d'agents tensio actifs.

<b>Phase aqueuse</b>	<b>Temps moyen de coalescence (s)</b>
<b>Sans agent tensio -actif</b>	2.5 - 2.5 - 2.72
<b>+ 100 mg/l Tensio -actif anionique</b>	3.2 - 3.22 - 3.62
<b>+ 100 mg/l Tensio -actif cationique</b>	5.21 - 5.28 - 5.51
<b>+ 100 mg/l Tensio -actif non ionique</b>	4.00 - 4.07 - 4.21

Tableau IX.1. Comparaison des temps moyens de coalescence, en régime permanent des gouttes de kérosène en présence et en absence des agents tensio- actifs à la surface d'une paroi de coalescence hydrophobe.

La figure IX.18 nous montre clairement la répartition des temps de coalescence pour chacun des cas précédents sous forme d'histogrammes.



**Figure IX.18** . Histogrammes des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et le film de kérosène formé à la surface d'une paroi de coalescence hydrophobe en présence d'agents tensio-actifs .

*a-100mg/l tensio-actif anionique, nombre d'interactions 84 , $t_{mc}=3.22 \pm 0.45s$ .*

*b- 100mg/l tensio-actif cationique, nombre d'interactions :80, $t_{mc}=5.51 \pm 0.86$ .*

*c-100mg/l tensio-actif non ionique, nombre d'interactions :80 , $t_{mc}=4.07 \pm 0.60$ .*

Les résultats indiquent que les temps de coalescence relatifs aux interactions gouttes –film de kérosène sur une paroi hydrophobe en présence d’agents tensio -actifs sont plus élevés que ceux obtenus sans agents tensio-actifs.

Les temps de coalescence obtenus avec 100 mg/l de tensio-actif anionique et 100 mg/l de tensio-actif non-ionique s’avèrent assez proches ; mais la répartition des temps de coalescence est plus large pour le tensio actif non-ionique .

Avec 100 mg/l de tensio-actif cationique ,le temps moyen de coalescence est le plus élevé (5.51s) avec une répartition la plus large.

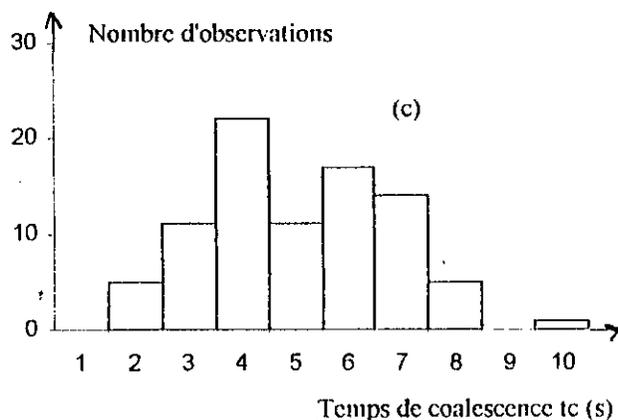
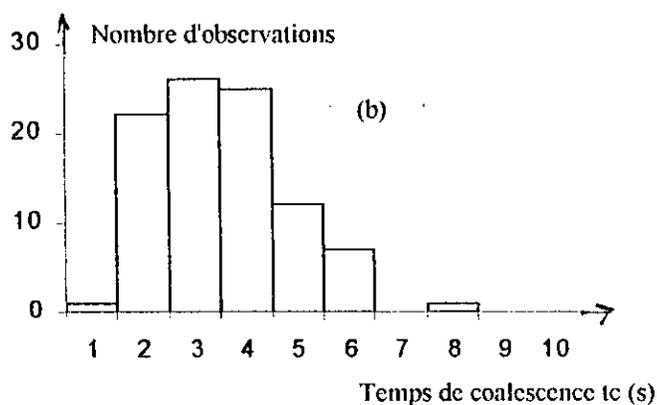
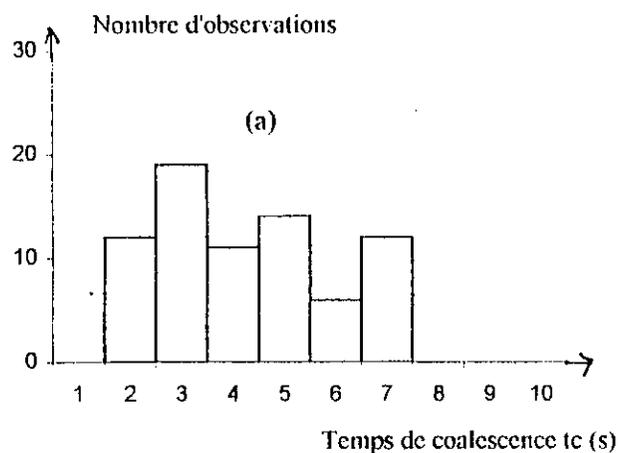
#### **II.2.1.2.2- Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile**

Dans ce cas, durant le régime transitoire et mis à part le tensio-actif cationique ,nous constatons l’entraînement par rotation de nombreuses gouttes à la surface de la paroi de coalescence .Certaines de ces gouttes coalescent entre elles pour former d’autres gouttes de tailles plus importantes .Ces dernières arrivent à adhérer à la surface de la paroi de coalescence formant ainsi des agglomérats de kérosène jouant un rôle d’obstacles pour les autres gouttes en mouvement de rotation , phénomène déjà étudié et observé par CHERID [7].Cet effet "obstacle" est responsable des effets de coalescence observés.

Les résultats concernant les interactions gouttes - nappe de kérosène sur paroi de coalescence hydrophile en présence de 100 mg/l de chacun des tensio actifs anionique cationique et, non ionique sont résumés dans le tableau IX.2 et représentés sous forme d’histogrammes sur la figure IX.19 .

Phase aqueuse	Temps moyen coalescence (s)
Sans agent Tensio actif	1.1 - 1.31 -1.61
+100 mg/l Tensio actif anionique	3.52 - 3.75 - 4.05
+100 mg/l Tensio actif cationique	2.18 – 2.99
+100 mg/l Tensio actif non ionique	3.88 - 4.51 - 4.55

Tableau IX.2. Comparaison des temps moyens de coalescence, en régime permanent des gouttes de kérosène en présence et en absence des agents tensio actifs à la surface d’une paroi de coalescence hydrophile .



**Figure IX.19 .** Histogrammes des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et nappe de kérosène formé à la surface d'une paroi de coalescence hydrophile en présence d'agents tensio actifs .

*a*-100mg/l tensio-actif anionique, nombre d'interactions :74, $t_{mc}=3.75 \pm 0.61s$

*b* -100mg/l tensio-actif cationique, nombre d'interactions :93, $t_{mc}=2.99 \pm 0.43$

*c*-100mg/l tensio-actif non ionique, nombre d'interactions :85, $t_{mc}=4.51 \pm 0.71$ .

De ces résultats, nous constatons que les temps de coalescence obtenus avec 100 mg/l de chacun des tensio-actifs anionique, cationique et non ionique sont plus élevés que ceux obtenus sans agent tensio-actifs.

Avec le tensio-actif cationique, le temps moyen de coalescence est le plus faible. Dans ce cas, nous avons observé un phénomène d'inversion de mouillabilité de la surface de coalescence. En effet la présence de 100 mg/l de ce dernier dans la phase aqueuse a rendu hydrophobe la surface de coalescence hydrophile.

Le tableau IX.3 compare les temps moyens de coalescence obtenus avec et sans agents tensio-actifs sur les deux parois de coalescence hydrophobe et hydrophile.

PHASE AQUEUSE tmc (s)	PAROI DE COALESCENCE HYDROPHOBE (s)	PAROI DE COALESCENCE HYDROPHILE (s)
Sans agent tensio-actif	2.58 ± 0.3	1.34 ± 0.27
+100mg/l tensio-actif anionique	3.34 ± 0.46	3.77 ± 0.68
+100 mg/l tensio-actif cationique	5.33 ± 0.82	2.58 ± 0.38
+100 mg/l tensio-actif non ionique	4.09 ± 0.59	4.31 ± 0.66

Tableau IX.3. Comparaison des temps moyens de coalescence, en régime permanent des gouttes de kérosène en présence et en absence des agents tensio-actifs à la surface d'une paroi de coalescence hydrophobe et hydrophile.

De ces divers résultats, on conclut qu'en présence de 100 mg/l de tensio-actif anionique, cationique et non ionique, les temps de coalescence sont plus élevés que ceux obtenus sans agents tensio-actifs.

On constate une répartition plus large des temps de coalescence en présence des agents tensio-actifs.

En présence du tensio-actif cationique, on observe une augmentation très sensible du temps moyen de coalescence avec une répartition plus large des temps de coalescence dans le cas d'une paroi de coalescence hydrophobe. Au contraire le temps moyen de coalescence observé sur la surface de coalescence hydrophile est plus faible. Dans ce cas, un phénomène d'inversion de mouillabilité de la surface de coalescence a été observé.

Aussi , pour chaque essai nous avons appliqué la méthode décrite au chapitre V [23] pour la mesure de:

- temps de demi-vie de coalescence " $t_{1/2}$ " ,
- vitesse de drainage du film de la phase continue caractérisé par " $t_D$ " ,
- constante de vitesse de la rupture du film interfacial " $K$ " .

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau IX.4.

Phase aqueuse	Solide coalesceur hydrophobe			Solide coalesceur hydrophile		
	$t_{1/2}$ (s)	$t_D$ (s)	$K$ ( $s^{-1}$ )	$t_{1/2}$ (s)	$t_D$ (s)	$K$ ( $s^{-1}$ )
Essais sans tensio - actif	2.58	1.0	0.63	1.37	0.14	0.813
+100 mg/l tensio- actif anionique	3.0	1.5	0.66	3.88	1.55	0.42
+100 mg/l tensio - actif cationique	5.88	3.66	0.45	2.90	1.0	0.52
+100 mg/l tensio - actif non ionique	4.5	2.0	0.40	4.0	1.77	0.44

Tableau IX.4 divers paramètres déterminant la stabilité des gouttelettes des émulsions testées vis à vis du film interfacial sur les deux surfaces de coalescence hydrophobe et hydrophile.

Ces résultats confirment : la perturbation provoquée par la présence des agents tensio -actifs anionique , cationique et non ionique dans la phase aqueuse.

En effet les valeurs des temps de demi vie de coalescence " $t_{1/2}$ " , des vitesses de drainage du film de la phase continue caractérisées par " $t_D$ " et des constantes de vitesse de la rupture du film interfacial " $K$ " varient en fonction de la nature de l'agent tensio-actif utilisé .

Ces agents de surface, de par leur structure moléculaire, leur nature et leur orientation à l'interface O/W, forment un film interfacial plus ou moins dense , présentant une certaine élasticité rendant le drainage du film de la phase continue caractérisé par un temps de drainage " $t_D$ " plus long d'où un temps de coalescence plus important .

Les effets stériques et les effets électriques de ces agents tensio- actifs ont également un rôle important .

La barrière électrique est la force de répulsion due au potentiel de surface des gouttelettes de la phase dispersée. La source de charge sur les gouttelettes de la phase dispersée est la couche du tensio-actif adsorbé .

Les groupes hydrophiles fortement hydratés des agents tensio-actifs et les longues chaînes alkyls solubilisées à l'interface dans la phase huileuse forment un film interfacial et constituent une barrière stérique .

### II.2.1.3- Influence de la présence d'un agent tensio- actif dans la phase dispersée

Nous avons testé le comportement des mêmes parois de coalescence hydrophobe et hydrophile, en mesurant le temps moyen de coalescence relatif aux interactions gouttes de kérosène- film de kérosène. Dans ce cas, le tensio- actif utilisé se trouve dans la phase dispersée à une concentration de 100 mg/l (UNIDEM 404).

#### II.2.1.3.1- Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophobe

##### a) Régime transitoire : interaction gouttes de kérosène - surface de coalescence vierge.

Dès que la goutte de kérosène injectée arrive à la surface de coalescence hydrophobe, elle s'étale et adhère complètement pour former un angle  $\theta$  presque nul, ceci conformément au schéma de la figure IX.20.

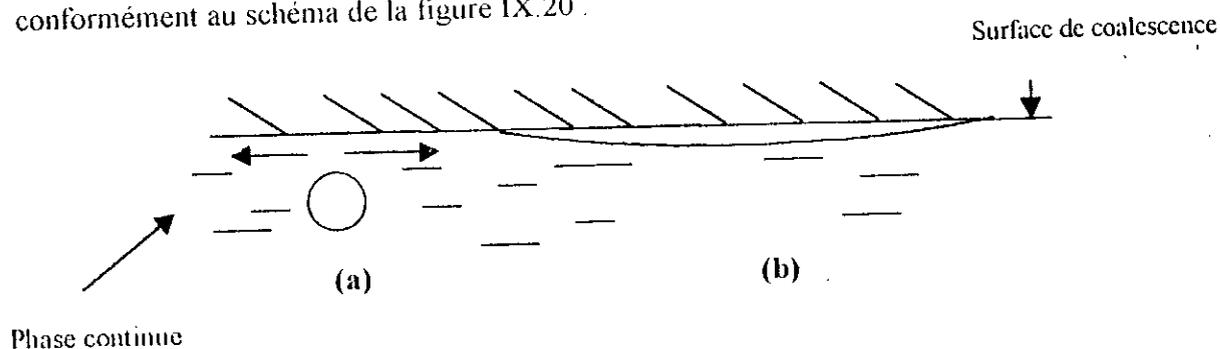


Figure IX.20. Schématisation de l'interaction entre une goutte de kérosène contenant 100 mg/l de tensio - actif non ionique et une paroi de coalescence hydrophobe.

(a) :Phase de drainage du film d'eau.  
(b) :Phase de coalescence.

Il en est de même pour les autres gouttes de kérosène. On assiste ensuite à la coalescence goutte- goutte, qui se traduit par la formation du film de phase dispersée, représentée par la photo de la figure IX.21.

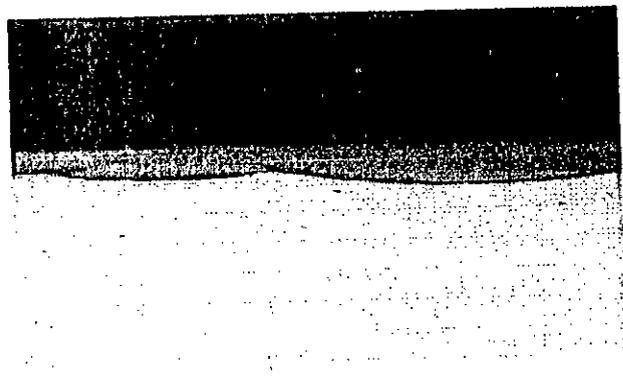
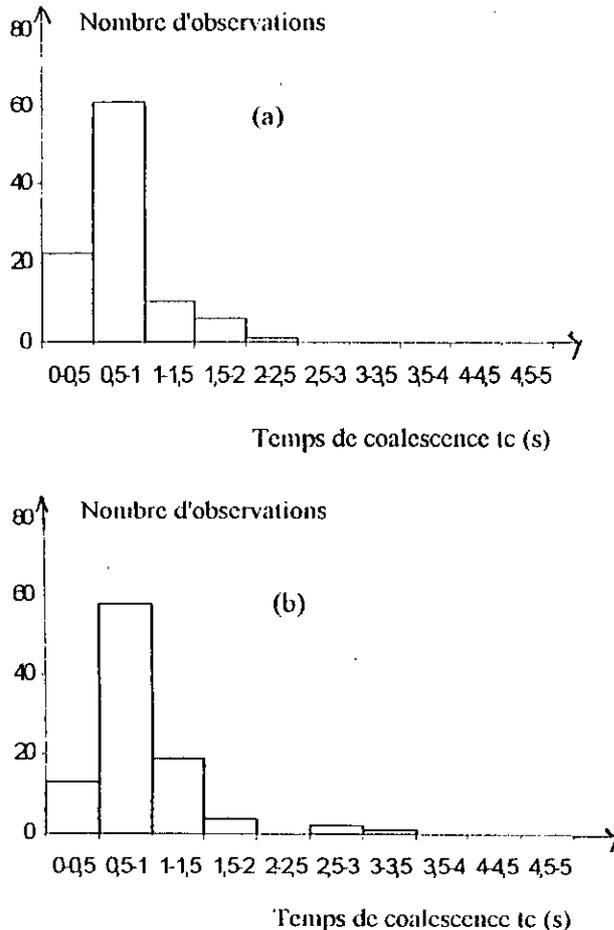


Figure IX.21. Photo caractéristique de la formation d'un film homogène de kérosène rouge au niveau de la surface de coalescence hydrophobe.

**b) Régime permanent : interaction goutte de kérosène - film de kérosène.**

Nous avons mesuré le temps moyen de coalescence relatif aux interactions gouttes de kérosène - film de kérosène formé. La figure IX.22 caractérise sous forme d'histogrammes, les temps de coalescence observés pour 2 séries d'essais.



**Figure IX.22 . Histogrammes des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et film de kérosène formé à la surface d'une paroi de coalescence hydrophobe en présence de 100 mg/l d'agent tensio actif soluble dans la phase dispersée .**

*a :essai n°1- nombre d'interactions :100, $t_{mc}=0.77 \pm 0.19$*

*b :essai n°3- nombre d'interactions :97, $t_{mc}=0.88 \pm 0.35$*

Ces résultats montrent que la présence d'un agent tensio-actif dans la phase dispersée accélère la coalescence des gouttes de la phase dispersée .

En effet une émulsion de type huile dans l'eau (o/w) se forme en présence d'un tensio-actif à caractère hydrophile, plus soluble dans l'eau que dans l'huile et inversement, une émulsion de type eau dans l'huile (w/o) se formera en présence d'un tensio-actif à caractère lipophile, soluble plus dans l'huile que dans l'eau [9,23]. " L'UNIDEM 404" est un agent tensio-actif soluble dans la phase dispersée, qui favorise donc la formation des émulsions inverses (w/o) et défavorise la formation des émulsions directes (o/w)

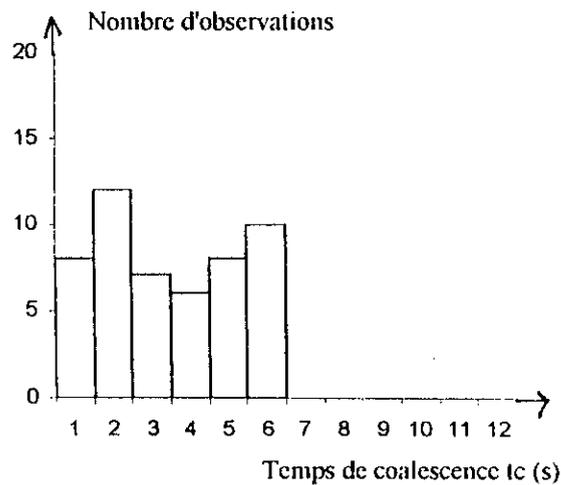
### II.2.1.3.2 - Résultats expérimentaux obtenus sur une paroi de coalescence hydrophile

#### a) Régime transitoire : interaction gouttes de kérosène- surface de coalescence hydrophile vierge.

La première goutte de kérosène injectée ,arrive à la paroi de coalescence et y adhère en formant à l'équilibre un angle presque nul .

#### b) Régime permanent : interaction goutte de kérosène - film de kérosène.

A ce niveau ,nous avons mesuré les temps de coalescence relatifs aux interactions gouttes – nappe de kérosène. la figure IX. 23 résume sous forme d'histogramme les valeurs trouvées



**Figure IX.23** . Histogramme des temps de coalescence relatifs aux interactions entre les gouttes de kérosène et nappe de kérosène formé à la surface d'une paroi de coalescence hydrophile en présence de 100 mg/l d'agent tensio actif soluble dans la phase dispersée .  
série n°2 ,nombre d'interactions : 51 , $t_{mc}=2.97 \pm 0.53$

De la même manière ,nous avons déterminé les différentes valeurs de  $t_{1/2}$  ,  $t_D$  (vitesse de drainage du film de la phase continue) et  $K$  ( constante de vitesse de la rupture du film interfacial ) dans le cas où 100 mg/l de ce tensio-actif sont injectés dans la phase hydrocarbure. Les résultats sont résumés dans le tableau IX.5.

Phase aqueuse	Solide coalesceur hydrophobe			Solide coalesceur hydrophile		
	$t_{1/2}$ (s)	$t_D$ (s)	$K$ ( $s^{-1}$ )	$t_{1/2}$ (s)	$t_D$ (s)	$K$ ( $s^{-1}$ )
Essais sans tensio_actif	2.58	1.0	0.63	1.37	0.14	0.813
+100 mg/l tensio-actif non ionique	0.75	0.152	1.67	2.48	0.08	0.416

Tableau IX.5. Divers paramètres déterminant la stabilité des gouttelettes de l'émulsion testée vis à vis du film interfacial sur les deux surfaces de coalescence hydrophobe et hydrophile.

Les résultats du tableau IX.5 expliquent le comportement différent de cet agent tensio-actif vis à vis des deux surfaces de coalescence ; en effet il accélère la coalescence des gouttelettes de la phase dispersée dans le cas d'une surface de coalescence hydrophobe alors que le délai de coalescence augmente dans le cas d'une surface de coalescence hydrophile.

## II.2.2- Essais expérimentaux en dynamique

### II.2.2.1- Garnissage hydrophobe

Sur un garnissage hydrophobe constitué par un matériau traité à la silicone, présentant une énergie de surface  $\gamma_s=23$  dynes/cm, un travail d'adhésion vis à vis de la phase dispersée en présence d'eau  $\gamma_{so/w}=51.41$  ergs/cm<sup>2</sup> et une différence de tension interfaciale  $(\gamma_{s/w}-\gamma_{s/o})=16.41$  dynes/cm, nous avons fait passer une émulsion non stabilisée de tension interfaciale  $\gamma_{o/w}=35$  dynes/cm. Les microgouttelettes de la phase dispersée sont interceptées par le garnissage, celles-ci adhèrent à la surface du garnissage et forment un film de phase coalescée autour des intercepteurs pour être entraînées par les forces hydrodynamiques visqueuses vers la sortie de la pastille.

La photo de la figure IX. 24 caractérise ce phénomène.



Figure.IX.24. Photo micrographique mettant en évidence la formation du film de kérosène autour du matériau coalesceur hydrophobe.

En rajoutant 100 mg/l de chacun des tensio-actifs anionique, cationique et non ionique, nous observons à l'entrée de la cellule, du fait de la baisse de la tension interfaciale  $\gamma_{o/w}$ , des gouttelettes plus fines qui interceptent les collecteurs pour former un film de phase coalescée. Après formation du film, on remarque que les microgouttelettes ne coalescent pas rapidement sur le film qui enrobe les billes hydrophobes, pour la plupart elles rebondissent sur le film de la phase coalescée ; celui ci migre vers la sortie de la pastille et il est rompu sous forme de petites gouttes précoalescées.

La photo de la figure IX.25 traduit ce phénomène de coalescence.



Figure IX.25. Photo micrographique mettant en évidence le comportement de la phase dispersée vis à vis du matériau coalesceur hydrophobe en présence d'agent tensio- actif.

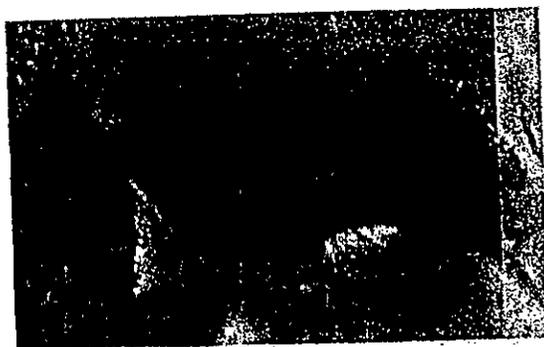
#### II.2.2.2- Garnissage hydrophile

Sur un garnissage constitué par un matériau hydrophile ,présentant un travail d'adhésion vis à vis de la phase dispersée en présence d'eau Wadh  $\sigma_{so/w} = 5.32$  ergs/cm<sup>2</sup> et une différence de tension interfaciale  $(\gamma_{s/w} - \gamma_{s/o}) = -29.68$  dynes/cm, nous avons fait passer une émulsion non stabilisée de tension interfaciale  $\gamma_{o/w} = 35$  dynes/cm . Les gouttelettes d'hydrocarbures ne s'étalent pas. Celles-ci s'accrochent sur le collecteur et coalescent entre elles pour former entre les collecteurs une nappe ou une poche de kérosène. Ceci est illustré par la photo de la figure IX.26.



Figure IX.26. Photo micrographique mettant en évidence la formation de nappes (poches) de phase coalescée entre les grains du matériau coalesceur hydrophile.

En présence de 100 mg/l de chacun des tensio- actifs anionique, cationique et non ionique nous observons à l'entrée de la cellule ,du fait de la baisse de la tension interfaciale  $\gamma_{o/w}$ , Des gouttelettes plus fines ,interceptent dans les mêmes conditions le matériau coalesceur hydrophile, elles s'y adhèrent sans fusionner entre elles. Ainsi, il ne se forme pas de nappes de phase coalescée. Ceci est illustré par la photo de la figure IX.27.



**Figure IX.27.** Photo micrographique mettant en évidence le comportement de la phase dispersée vis à vis du matériau coalesceur hydrophile, en présence d'agent tensio-actif.

### II.3- CONCLUSION

A partir de ces différentes observations, nous constatons que l'étape d'interception ne semble pas être perturbée ni par la mouillabilité des intercepteurs ni par la présence des agents tensio-actifs. Cependant, nous remarquons que l'étape de formation du film d'hydrocarbure est conditionnée par la nature physico-chimique du matériau coalesceur et elle est d'autant plus difficile en présence des agents tensio-actifs.

### III. ETUDE DU PHENOMENE DE RELARGAGE

Cette troisième étape est une phase aussi importante, conditionnant le rendement de séparation des phases au niveau du coalesceur. Suite aux résultats obtenus au chapitre VI, nous avons déduit que la mouillabilité de la surface de relargage joue un rôle non négligeable.

#### III.1- Observation des phénomènes

##### III.1.1- Surface de relargage hydrophile

a) En absence des agents tensio-actifs et à des vitesses de passage modérées, nous remarquons que la phase coalescée émerge sous forme de grosses gouttes au niveau de la surface de relargage hydrophile en des points préférentiels dits « drip-points ». Ces gouttes de l'ordre du centimètre alimentées en continu par le film de la phase coalescée n'ont aucune tendance à s'étaler sur la surface hydrophile ( $Wadh_{so/w} = 1.71 \text{ ergs/cm}^2$ ). On a dans ce cas de figure une formation spontanée de gouttes.

Nous constatons que le diamètre de ces gouttes relarguées dépend de la vitesse de passage : en augmentant progressivement la vitesse de passage, le diamètre des gouttes relarguées tend à diminuer jusqu'au réfractionnement.

b) en présence des agents tensio-actifs : à la sortie de lit coalesceur les gouttes coalescées sont plus petites et on observe un relargage accéléré jusqu'à apparition d'un phénomène de jets et parfois de moussage ; du fait de la mauvaise adhésion de la phase coalescée sur la surface de relargage, et de la faible tension interfaciale entre la phase dispersée et la phase continue. Les gouttes qui se forment n'ont pas le temps d'être alimentées par la phase coalescée qui se déplace au travers le garnissage et de grossir pour atteindre un diamètre permettant une décantation.

Celles-ci sont entraînées par les forces hydrodynamiques visqueuses plus facilement du fait qu'elles n'adhèrent que faiblement à la grille d'acier à caractère hydrophile. Ce phénomène est d'autant plus important que la vitesse de passage augmente.

En présence de l'agent tensio-actif cationique, après un moment de fonctionnement, on s'aperçoit que les gouttes de phase coalescée s'étalent. Ceci s'explique par l'inversion de mouillabilité de cette grille qui est devenue mouillée par la phase dispersée. Le phénomène de moussage s'explique par cette inversion de mouillabilité.

### **III.1.2- Surface de relargage hydrophobe**

a) En absence des agents tensio-actifs et à des vitesses de passage modérées, la phase coalescée apparaît à la surface de relargage par des cheminement préférentiels et s'étale spontanément en formant de grosses nappes. De ces nappes de kérosène se détachent de grosses gouttes de phase dispersée. On constate que la surface de relargage est recouverte en grande partie par ces nappes de phase coalescée.  $\gamma_{o/w} = 67.3 \text{ ergs/cm}^2$ . Celle-ci, à des vitesses de passage plus importantes, vont obstruer et gêner l'écoulement de la phase aqueuse, ce qui va générer au fur et à mesure le phénomène de moussage. Ce dernier fait que la séparation des phases devient de plus en plus difficile, ce qui explique les résultats obtenus.

b) En présence des agents tensio-actifs, les mêmes phénomènes sont observés avec un relargage plus accentué de très fines gouttelettes de la phase dispersée, et ce du fait de la baisse de la tension interfaciale  $\gamma_{o/w}$  qui agit sur la granulométrie de l'émulsion à traiter.

### **III.2- Conclusion**

L'étape de relargage s'avère limitée par la nature physico-chimique de la surface de relargage, par des vitesses d'écoulement élevées et par des faibles tensions interfaciales entre les deux phases.

## **IV. CONCLUSION**

L'étape d'interception des gouttelettes de la phase dispersée ne semble pas être perturbée ni par la mouillabilité des intercepteurs ni par la présence des agents tensio-actifs.

L'étape de formation du film d'hydrocarbure est conditionnée par la nature physico-chimique du matériau coalesceur et elle est d'autant plus difficile en présence des agents tensio-actifs.

En présence des agents tensio-actifs, la tension interfaciale étant plus faible, l'interface est déformée et la goutte de la phase dispersée y pénètre profondément. De plus, le film se rompt lentement.

Le délai (temps) de coalescence augmente considérablement en présence des agents tensio-actifs dans la phase aqueuse. Ces derniers ont beaucoup moins d'effet lorsque ils sont présents dans la phase dispersée.

Ces agents de surface de par leur structure moléculaire, leur nature et leur orientation à l'interface O/W forment un film interfacial plus ou moins dense , présentant une certaine élasticité rendant le drainage du film de la phase continue plus long d'où un temps de coalescence plus important .

Les effets stériques et les effets électriques de ces agents tensio-actifs ont également un rôle important sur la stabilité des émulsions et sur le délai de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée .

L'étape de relargage s'avère limitée par la nature physico -chimique de la surface de relargage ,par des vitesses d'écoulement élevées et par des faibles tensions interfaciales entre les deux phases .

## CHAPITRE X: CONCLUSION GENERALE

## CONCLUSION GENERALE

Au cours de cette étude, nous avons étudié la séparation des émulsions hydrocarbure- eau, types secondaires, par la technique de la coalescence.

Cette étude comporte trois principales parties :

- 1) une partie bibliographique et théorique,
  - 2) une partie expérimentale,
  - 3) une partie visualisation,
- ce qui nous a permis de conclure:

- que l'utilisation d'un matériau à faible énergie de surface a permis des rendements de séparation relativement élevés et ce en présence des agents tensio-actifs. En effet les meilleurs rendements de séparation sont obtenus avec des matériaux coalesceurs hydrophobes, notamment, pour le matériau traité au polytétrafluoroéthylène, présentant une énergie de surface la plus faible (18 dynes/cm) et un important travail d'adhésion vis à vis de la phase dispersée en présence d'eau (67.30 ergs/ cm<sup>2</sup>).

- l'importance des phénomènes d'interfaces. En effet, ce sont ces derniers qui régissent la séparation des phases ce qui permet, de déterminer les différents mécanismes d'interactions possibles entre les trois phases en présence et de ce fait, comprendre le processus et éventuellement améliorer ce procédé de séparation.

Aussi, les résultats expérimentaux ont permis de conclure que :

- Les faibles granulométries du matériau coalesceur augmentent l'efficacité de séparation quelle que soit la nature physico-chimique du matériau coalesceur. Cette dernière croît avec la hauteur du lit coalesceur.

- A des vitesses de passage élevées, on atteint plus rapidement le rendement de séparation critique qui, correspond aux phénomènes de réfractionnement de la phase hydrocarbure coalescée dans le milieu hydrophile qu'hydrophobe.

- L'étape de relargage qui aboutit à la formation de grosses gouttes de la phase coalescée est fonction de la nature physico - chimique de la surface de relargage ; cette dernière semble aussi être un facteur déterminant sur le rendement de séparation.

- La présence des agents tensio- actifs dans la phase aqueuse influence les rendements de séparation des cellules de coalescence. Cependant, mis à part le tensio- actif cationique, les cellules de coalescence hydrophiles sont les plus sensibles à la présence de ces derniers.

La visualisation des phénomènes d'interaction a permis aussi de conclure que:

- L'étape d'interception des gouttelettes de la phase dispersée ne semble pas être perturbée ni par la mouillabilité des intercepteurs ni par la présence des agents tensio-actifs.

- L'étape de formation du film d'hydrocarbure est conditionnée par la nature physico-chimique du matériau coalesceur et elle est d'autant plus difficile en présence des agents tensio-actifs. Ces agents de surface de par leur structure moléculaire, leur nature et leur orientation à l'interface O/W forment un film interfacial plus ou moins dense, présentant une certaine élasticité rendant le drainage du film de la phase continue plus long d'où un temps de coalescence plus important. Les effets stériques et les effets électriques de ces agents tensio-actifs ont également un rôle important sur la stabilité des émulsions et sur le délai de coalescence des gouttelettes de la phase dispersée.

- Le phénomène de relargage est particulier en présence des agents tensio-actifs; effectivement les gouttes relarguées sont plus fines et au fur et à mesure que la vitesse de passage augmente, des phénomènes de réfractionnement et autres apparaissent. Ce phénomène est très particulier dans le cas des cellules hydrophiles.

- par contre nous remarquons des résultats fort intéressants dans le cas de l'agent tensio-actif cationique sur l'acier. Nous constatons que la présence de ce dernier dans la phase continue, rend l'acier hydrophobe. Cette observation est importante, car la surface de relargage est constituée d'une grille en acier inoxydable hydrophile. Ce qui présente un inconvénient pour un bon relargage de la phase coalescée.

- L'ajout d'un tensio-actif soluble dans la phase dispersée affecte que sensiblement l'efficacité des cellules de coalescence.

Cette technique de séparation présente des avantages et des intérêts particuliers :

- qualité de séparation obtenue est importante,
- ne nécessite l'apport d'aucun produit additionnel qui impliquerait en fin de traitement la production de boue,
- la phase coalescée hydrocarbonée est récupérée complètement, donc pas de problèmes de saturation.

Le seul inconvénient est la protection du dispositif en cas de la présence des matières en suspension.

Ce procédé présente un intérêt très particulier, il permet par sa qualité de séparation d'envisager la récupération des produits recyclables.

Il est maintenant nécessaire de transposer ces études à des tests sur des eaux industrielle.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.

1. **JOURNAL OFFICIEL DE LA REPUBLIQUE ALGERIENNE**  
" décret exécutif n° 93-161 du 10 juillet 1993 réglementant le déversement des huiles et lubrifiant dans le milieu naturel " Annexe n°46 juillet 1993.
2. **EAUX METHODE D'ESSAI**  
" Recueil des normes françaises", Association Française de Normalisation (AFNOR) ",1986.
3. **PNUE, Publication du Programme des Nations Unies pour l'Environnement**  
" Aspects écologiques de l'industrie du pétrole " ,juin 1978,paris
4. **J.P.CALTEAU**  
" Contribution à l'étude hydrodynamique de la phase dispersée dans le phénomène de coalescence en lit fixe "  
Thèse de Docteur-Ingénieur ,1976, INSA ,Toulouse.
5. **Y.AURELLE**  
" Traitement des effluents chargés en hydrocarbures "  
Cycle de perfectionnement ,lutte contre la pollution des eaux, Mai ,1981, I N S A ,  
Toulouse.
6. **WORKSHOP ON BIOREMEDIATION FOR MARINE OIL SPILLS**  
" Congress of united states office of technology assessment (O T A) "  
December ,4,1990.
7. **S.CHERID**  
" Conception et étude de nouveaux séparateurs lamellaires hydrocarbure- eau type Spiraloil "  
Thèse de Docteur-Ingénieur , Mai ,1986 , INSA ,Toulouse.
8. **S.CHERID,Y. AURELLE ,H.ROQUE**  
" Mise au point de nouveaux séparateurs hydrocarbures-eaux "  
Séminaire méditerranéen ,Traitement des effluents liquides et technologies propres, Nov ,1988.
9. **MILTON .J. ROSEN**  
" Surfactant and Interfacial Phenomems "  
Edition JOHN WILEY and Sons ,1978.
10. **RAPPORT TECHNIQUE**  
" Coalescence of emulsion oily wastes by fibrous bed "  
EHE-75-05 ,CRWR-126 ,INSA.

**11. JEAN .PORE**

" Les dispersions aqueuses -suspensions-émulsions -mousses "  
Société des publications "le cuir" ,1976,Paris.

**12. B.JIRGENSONS**

" Ashort text book of colloid chemistry"  
Chapter 6.p414.

**13. S.CHERID-TILIOUINE**

" Séparation par coalescence des émulsions hydrocarbures-eaux "  
Deuxième Journées Scientifique et Technique de la SONATRACH, Avril ,1996,Alger.

**14. Y.AURELLE, E.BADORC, E.LOPEZ, H.ROQUE**

" Nouveaux procédés de séparation diphasiques hydrocarbure -eau par coalescence "  
Récents progrès ,Génie des procédés,1992,Vol 6 ,n°20,p225-235.

**15. S.CHERID-TILIOUINE**

" Cours de post graduation "  
1993,E.N.P.

**16. J.C.SANGHEZ ,Y.AURELLE ,H.ROQUE ,M.ANGLES**

" Application de la coalescence à l'extraction des phénols par solvant "  
Revue de l'institut français du pétrole , 1979,Vol XXX ,n° 2 , P.307-323.

**17. J.P CALTEAU,Y.AURELE ,H.ROQUE. et E. BADORC**

" Séparation par coalescence en lit fixe d'une phase aqueuse émulsionnée dans une  
phase organique "  
Revue de l'institut français du pétrole ,1977,Vol XXX II ,n°6, p.937-958 .

**18. AGENTS DE SURFACE DETERGENTS SAVONS**

" Recueil des normes françaises " Association Française de Normalisation  
(AFNOR) , 1982.

**19. CHANTAL LARPENT**

" Tensio-actif "  
Technique de l'ingénieur , 1985,P.K 342-1 ,K342-B.

**20 . F.LACHAMPT et R.M.VILA**

" Contribution à l'étude des émulsions "  
Parfun.Cosmetique.Savon.12 (5),1969,p239-251.

**21. P.SHERMAN**

" Emulsion Science "  
Edition Academic Press London 1969.

22. **F.HARUSAWA et T.Mitui**  
" Stability of emulsion "  
Prog.Organ.Coat,3,1975,177-199.
23. **E.G. COCKBAIN and T.S Mc ROBERTS**  
" The Stability of elementary emulsion drops and emulsions "  
Mars,1953 , England.
- 24 . **J. DELAAT**  
" Etude de l'influence des produits chimiques sur les performances des procédés de déshuilage sur matériaux oléophiles ".  
Rapport de stage, Déshuilage des eaux de gisements , 1978.
25. **R.D.VOLD et K.MITTAL**  
" J.Colloid and interfacial Science,38,1972,452.
26. **J.T.DAVIES et E.K.RIDEAL**  
" Interfacial phenomena "  
Academic Press New York,1963
27. **P.H.ELWORTHY et A.T. FLORENCE**  
J.Pharm.Pharmacol,21,1969,705.
28. **S.CHERID-TILIOUINE**  
" Procédés de traitement des effluents chargés en hydrocarbures "  
Colloque méditerranéen sur la pollution des hydrocarbures ,juin, 1993.
29. **THOMAS R.CAMP**  
" Sédimentation and the design of settling tanks "  
Trans ASCE ,111,Avril,1945,895-958.
30. **M.PERRUT**  
" Coalescence, aspect industriel "  
Revue de l'institut français du pétrole , Sep-Oct ,1972,Vol XXVII ,n° 5 ,P.763-782.
31. **F.GUIGES**  
" Le traitement et le contrôle des eaux polluées par les hydrocarbures "  
Compte rendu d'essais d'un séparateur T.P.S. à plaques ondulées inclinées C.P.I -T.P.S  
La Technique de l'eau et de l'assainissement , Septembre ,1969 , 273,35-44 .
32. **GORDON J. IGGLEDEN**  
" The design and application of tilted plate interceptor -oil interceptors "  
Chemistry and Industry , November ,1978, 826-831.

- 33. R.B.TABAKIN,R.TRATTNER,P.N.CHEREMISINOFF.**  
" Oil /water separation Technology : the options "  
Water and sewage work, juillet, 1978, 74-77
- 34. JOHN W.HERNANDEZ,JOHON R.WRIGHT**  
" Design parameters for tube settlers "  
Proc.25 th Industrial Conf.Purdue University,1970,805-829.
- 35. RONALD A. JOHNSON**  
" Use of coalescence and settling tube to remove dispersed liquid "  
Ind Eng.Chem.Fundam,1980,vol9, n°1 ,71-75
- 36. MASSE SEO , YASU SEO**  
"Apparatus for separating oil and-water"  
Brevet japonais n°4035 302 , juillet ,1977.
- 37. CORY L.LOEGERING**  
"Apparatus for removing substances from mixture "  
Brevet Américain ,n°4364 833 , December ,1982.
- 38. G.P CANEVARI,CRANDFORT,ROBERT J FIOCCO**  
" Coalescence and separator of oily water "  
Brevet Américain,n°3 147 015 , December ,1968.
- 39. S.CHERID**  
" Etude des décanteurs lamellaires hydrocarbure-eau pour les effluents des raffineries"  
Thèse de D E A,1983,INSA Toulouse.
- 40. BREVET FRANCAIS**  
" Décanteur hydrocarbure/eau pour effluent de raffineries"  
n°50598 -ANVAR-INSA-ELF-1983
- 41. D.HADJIEV , Y.AURELLE,S.CHERID,E.BADORC,L.LOPEZ,H.ROQUE**  
" New high rate liquid-liquid separator based on phase inversion"  
Récents progrès, ..genie des procédés, 1996, Vol6.
- 42. SOO- BOK LEE**  
" Contribution à l'étude de l'ultrafiltration des émulsions d'huile de coupe "  
Thèse d'Ingénieur , Mars , 1984 , INSA.
- 43. F.QUEMENEUR et J.P.SCHILUMPF**  
" Traitement des huiles solubles par ultra filtration "  
Entropie ,93,1980,22-29

**44. R.N. HAZLETT**

" Fibrous bed coalescence of water sleps in the coalescence process ».  
Ind. Eng. Chem. Fund , 8 , November ,1969 , 625-633.

**45. Y. AURELLE**

" Contribution à l'étude du traitement des eaux polluées par des hydrocarbures émulsionnés par coalescence sur résine oléophile "  
Thèse Docteur Ingénieur , 1974, n°414, Toulouse.

**46. YAO (K.M) HABIBIAN ( M.T) and O' MELIA ( C.R)**

" Water and waste water filtration : concepts and applications "  
Environmental Science and Technology , Nov ,1971,vol 5 , p 1105-1112 .

**47. JOHN NAN CHIEU ,MICHAEL J.HUMENICK**

" Coalescence of emulsified oily wastes by fibrous bed "  
Technical report ,E.H.E ;75-05 ,CRWR 126,1,aout,1975.

**48. JAMES M..MONTGOMERY**

" Water treatement principal and design "  
Consulting Engineers,I.N.C ,A.WILEY-Interscience publication.

**49. DAVIES and G.V JEFFREYS**

" Filtration and Séparation "  
july/august 1969,350-354.

**50. K.J. IVES,J.GREGORY**

" Surfaces forces in filtration"  
Proceedings of the society of water treatment and examination,1966, part.2 ,93-116,  
London

**51. G.A. H ELTON , R.G.PICKNETT**

" Proc and 2nd International congress on surface activity ,1957,1,288,Butterworks  
London .

**52. T.GILLESPIE,E.K.RIDEAL**

" The coalescence of drops at an oil -water interface "  
Trans. Faraday Soc,1956,52,173.

**53. G.V.JEFFERYS,J.L.HAWKSLEY**

" Coalescence of liquid droplets in two componet-two phasis systems"  
Aiche journal ,jj ,1965,11,413

**54. S.HARTLAND .**

" The coalescence of liquid drop at liquid-liquid interface :pact II film thickness "  
Trans.Inst.Chem.Eng ,1967,45,102.

**55. S.B.LANG ,C.R.WILKE**

"A hydrodynamic mechanism for the coalescence of the liquid drops .Theory of coalescence at planar interface "  
I E C Fundamentals,1971,10,n°3,329.

**56. R.N.HAZLETT**

"An Examination of the steps involved in the separation of water from fuel in fibrous bed"  
Paper presented at jet fuel quality symposium,1968,october,22-24 San Antonio Texas.

**57. K.YAO**

" Influence of suspended particle size on the transport aspect filtration"  
Ph.D Thesis 1968 ,University of north carolina , chapel Hill

**58. O' MELIA C.R. and STUMM W.**

" Theory of water filtration "  
J .A.W.W.A,59(11),1393,1967

**59. O' MELIA C.R. and ALI,W**

" The role of retained particle in deep bed filtration"  
Proj.Water Technol,10 (5,6),123,1978.

**60. J.GUASTALLA**

" Adhesion Liquide-Solide et Mouillage "  
Bull. Soc .Chim.France 1970,3211-3217

**61. PROPERTIES OF POLYMERS: ( estimation and correlation with chemical structures)**

Chapter 8-p-161

**62. EMANUEL SINAYOBYE**

" Contribution à l'étude de l'influence de nouveaux composés macromoléculaires sur la mouillabilité des surfaces par les hydrocarbures"  
Thèse Docteur Ingénieur ,1980,Toulouse.

**63. F.VERGARA et B.LESPINASSE**

" Détermination de la tension critique de mouillage du polytétrafluoroéthylène à l'aide des mélanges binaires ,influence de la température"  
Bull. Soc .Chim.France 1970,3227-3235.

**64. N.L.JARVIES ,W A.ZISMAN**

" Wetting and adhesion in glass fiber reinforced plastics "  
Bulletin de la société chimique de france , 1970,pp3227-3235.

65. **J.LUCASSEN , REYNDERS ET F.H.LVCASSEN**  
 " Thin films,contacts angles wetting "  
 J.NATO ASI,SER E75 ,1984, PP 79-109
66. **LEFEBRE G**  
 " Chimie des hydrocarbures "  
 Publication de l'institut français du pétrole, Société des éditions Technip, 1978, Paris.
67. **HARKINS W.D. ET LEVING STON H.K**  
 J.Chem.Phys, 1942,10,342
68. **H.W FOX and W.A Zisman**  
 J.Colloid.Sci 1950,5,514
69. **H.W FOX and W.A Zisman**  
 J.Colloid.Sci 1952 ,7,109
70. **H.W FOX and W.A Zisman**  
 J.Colloid.Sci 1952 ,7,428.
71. **H.H.G.JELLINEK**  
 Journal.Chem.Educ-1972,vol49,n°3,148-151
72. **S.WU**  
 " Calculation of interfacial tension of polymer systems"  
 J.polymer .Sci ,1971,part C, n°34,19-30
73. **W.C.HAMILTON**  
 " A technic for the characterization of hydrophilic solid surfaces"  
 J colloid sci, august ,1972, ,40,n°2, 219-222
74. **SOCIETE INDUSTRIELLE DES SILICONES**  
 " Siliconage du verre et de la céramique"  
 Notice n°3-207 B ,Novembre,1966.
75. **DOCUMENT E.A.W.A.**  
 Entreprise d'Aluminium de la Wilaya d'Alger
76. **J.RODIER**  
 " Analyse de l'eau"  
 Edition Dunod ,paris ,1986.
77. **M.PERRUT ,R.LLUTALY**  
 " La coalescence des gouttes et des bulles ,phénomènes fondamentaux dans la réaction gaz-liquide et liquide -liquide"  
 Chimie et industrie ,Génie chimique , November,1970,vol -103 ,n°19, 2545-2556.