

# Formulation et caractérisation physicochimique des microémulsions à base d'huile de vidange/saumure/tensioactifs

Rahal soufiane<sup>#1</sup>, moulai mostefa najji<sup>#2</sup>, benyoucef karima<sup>#3</sup>, talbi abdelhakim<sup>#4</sup>

#laboratoire des matériaux et environnement

Université de Medea, Ain D'Heb, 26001 Medea, Algerie

Corresponding author: Fax: +00 (213) 25594540 Email: [rahalsoufiane@yahoo.fr](mailto:rahalsoufiane@yahoo.fr)

**Résumé—** L'objectif de cette étude est la formulation et la caractérisation des propriétés des microémulsions à base d'un mélange saumure à différents pourcentages de sel/huile de vidange / tensioactif anionique / cotensioactif (pentanol). Le tensioactif utilisé est le dodécylbenzènesulfonate de sodium (SDBS). Le comportement des microémulsions a été systématiquement étudié par la variation de la salinité afin de trouver les conditions de formulation optimales. Par conséquent, une transformation progressive de type huile-dans-eau (W I) à bicontinue (W III) vers des microémulsions inverses eau-dans-huile (W II) se produit lors de l'augmentation de la fraction de sel. Des microémulsions ont été obtenues en présence de petites quantités de sel variant entre 0.05 à 8 %.

**Mots clés —** *Microémulsion, SDBS, Solubilisation.*

## INTRODUCTION

La contamination des sols par des polluants organiques tels que les hydrocarbures est le résultat d'une accumulation quotidienne de la pollution générée par les activités industrielles sur une longue période, [1,2]. Ces sols contaminés présentent un intérêt particulier pour les autorités sanitaires en raison du danger qu'ils présentent pour la santé humaine, [1 -4]. En effet, en tant que zone source par nature difficilement biodégradable, ils constituent des foyers de dissémination à long terme, [3-5]. Ils sont une menace sérieuse pour l'homme et les animaux à travers la contamination de la chaîne alimentaire, la pollution atmosphérique et celle des eaux souterraines. La sauvegarde et la réutilisation de ces ressources nécessitent donc de traiter prioritairement les sources de contamination, [1,6].

Les sols contaminés par les hydrocarbures présentent un danger lors d'un contact direct avec l'homme ou lors de leur transfert dans la chaîne alimentaire par le phénomène de bioaccumulation, [1].

La toxicité des hydrocarbures vis-à-vis des personnes et

de l'environnement dépend de leur structure et de leur concentration, [3-6]. Les problèmes liés au site contaminé par les polluants organiques dans les milieux environnementaux ont fait l'objet d'une attention croissante des chercheurs. Pour résoudre ces problèmes, une technologie innovante pour le nettoyage de cette contamination.

La solubilisation de l'huile par les tensioactifs est un facteur clé dans la remédiation des sols contaminés par des hydrocarbures, [6-9]. Les tensioactifs peuvent augmenter la solubilité des hydrocarbures en les introduisant dans les noyaux hydrophobes des micelles tensioactifs [10-13].

L'objectif de ce travail est la formulation et la caractérisation des microémulsions à base d'un mélange de l'huile de vidange/ saumure à différents pourcentages de sel /tensioactif/cotensioactif (pentanol-1) afin de trouver des systèmes stable candidat à la remédiation environnementale. Le tensioactif utilisé est le dodécylbenzènesulfonate de sodium (SDBS).

## MATÉRIELS ET METHODE

### II.1 MATÉRIEL

Dans cette étude nous avons utilisé comme polluants organique huiles de vidange, Huiles noires qui comprennent les huiles de moteurs et certaines huiles industrielles, ces huiles sont fortement dégradées et contaminées, on a utilisés dodécylbenzènesulfonate de sodium SDBS comme tensioactifs, et l'alcool est le Pentanol, le sel utilisé est le chlorure de sodium pur (NaCl).

### II.2 METHODE

#### II.2.1. FORMULATIONS DES MICROÉMULSIONS

La formation des microémulsions est obtenue par la méthode de titrage par l'ajout d'un composé à un mélange à différentes compositions et à température ambiante.

Lorsqu'on mélange le système saumure/ Huile de vidange / tensioactif, on obtient un aspect trouble de mélange après l'ajout de pentanol le mélange devient transparent qui prouve la formation des microémulsions.

### II.2.2. MESURE De La CONDUCTIVITÉ

Les mesures conductimétriques ont été réalisées à l'aide d'un conductimètre de type HANNA HI 8633. La conductivité électrique a été mesurée en meliSiemens [mS].

## RESULTATS ET DISCUSSION

### III.1 .ASPECT VISUEL

#### III.1.1. INFLUENCE DE LA SALINITÉ :

Afin d'étudier l'influence de la salinité sur le comportement des systèmes micellaires dans les tubes à essais à des différents volumes du saumure (1ml, 3ml, 5ml, 7ml, 9ml) à différents concentrations du NaCl (0.05 %, a 8%) en équilibre avec 5ml de huile de vidange avec l'ajout de 1ml du pentanol.

Les résultats par volumes de saumure à des différentes concentrations du NaCl sont présentés dans les figures ci-dessous E représente Eau et H représente Huile:

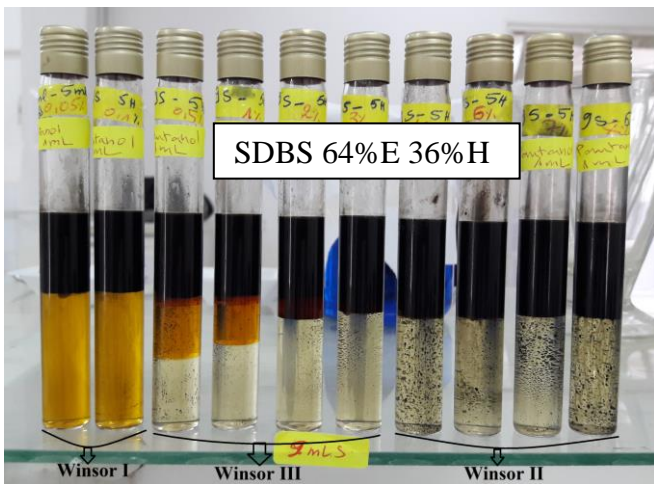


Fig.1 Formulations des microémulsions en présences de SDBS à différentes teneurs en sel.

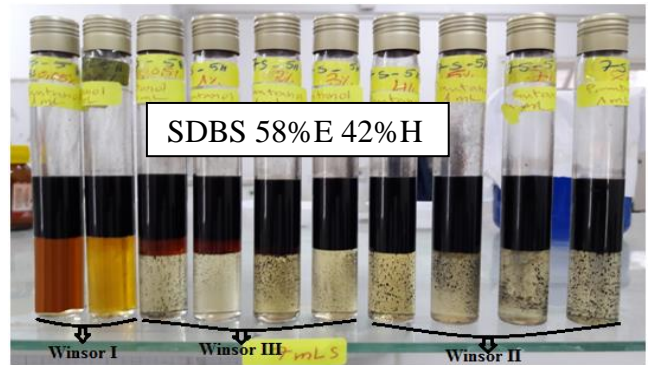


Fig.2 Formulations des microémulsions en présences de SDBS à différentes teneurs en sel.

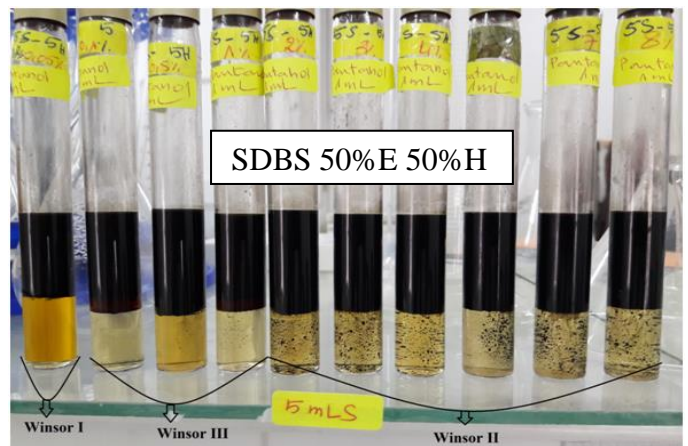


Fig.3 Formulations des microémulsions en présences de SDBS à différentes teneurs en sel.

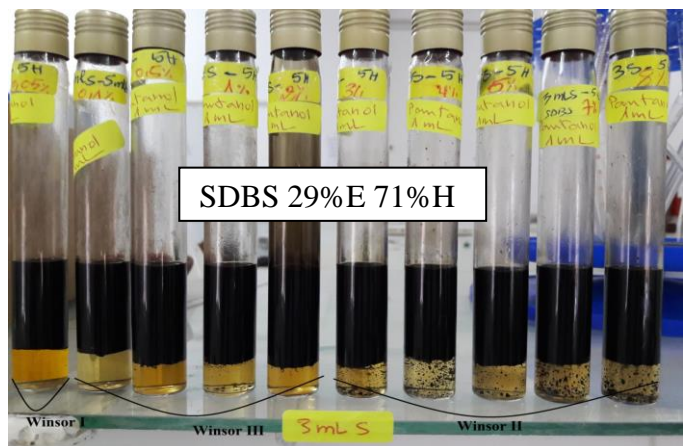


Fig.4 Formulations des microémulsions en présences de SDBS à différentes teneurs en sel.

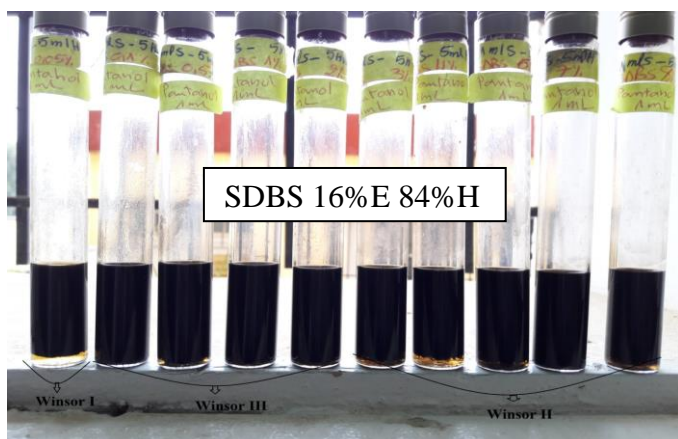


Fig.5 Formulations des microémulsions en présences de SDBS à différentes teneurs en sel.

D'après les figures (1-5) on constat que lorsque la teneur en sel augmente on voit la transition de WI vers WII via WIII. En comparant par rapport au volume de saumure ajouter on constate que plus que le volume du saumure augmente on aura une meilleure formulation de la structure WIII.

L'addition d'électrolytes a tendance de diminuer la solubilité de beaucoup de substances dans l'eau, l'addition d'électrolyte produit une plus grande concentration d'ions au voisinage de la surface des micelles et donc a un effet d'écran qui réduit les répulsions entre les parties hydrophiles, qui favorisent la formation de micelles et diminuent la CMC des tensioactifs,[13]. La diminution de la CMC est due essentiellement à la réduction de l'épaisseur de la double couche électrique qui entoure les micelles, ce qui produit une diminution des forces de répulsion entre les groupes hydrophiles voisins, [13].

### III.3. PARAMÈTRES DE SOLUBILISATION

Pour la caractérisation de la capacité de solubilisation des tensioactifs dans des solutions de NaCl de 0.05 à 8% en fraction massique, le paramètre de solubilisation de l'huile est défini comme la masse de l'huile solubilisée divisé par la masse de tensioactif dans la microémulsion  $m_h/m_s$ . Dans toutes les formulations, le tensioactif est supposé être totalement dans la phase de microémulsion. De même, le paramètre de solubilisation de l'eau est défini comme étant la masse d'eau solubilisée divisée par la masse de tensioactif dans la microémulsion  $m_e/m_s$ .

La Figure 6 illustre le comportement de phase des systèmes en fonction de la salinité en présence de NaCl en utilisant du SDBS afin de caractériser la capacité de solubilisation de tensioactif à température ambiante.

Les résultats expérimentaux montrent que le changement de la salinité de faible à une valeur plus élevée conduit à la transition de la phase de microémulsion à partir de WI, WII via WIII. Pendant la transition, le paramètre de solubilisation de l'huile (PSh) augmente, tandis que le paramètre de solubilisation de l'eau (PSe) diminue, comme montré dans la

Figure 6. La concentration en sel correspondant à la situation dans laquelle les deux paramètres de solubilisation de l'huile et de l'eau sont les mêmes est appelée la concentration optimale en sel où la salinité optimale est obtenue par l'intersection de ces deux fonctions. Le point de la salinité optimale a une immense importance parce que plusieurs propriétés physiques atteignent un maximum ou un minimum ou à proximité de ce point. D'après les résultats de Bera et al. [7.8], la tension interfaciale est minimale à la salinité optimale. Donc, l'estimation de ces deux propriétés est un excellent outil économique dans la conception des compositions des microémulsions. On constate également qu'avec une augmentation de la teneur en eau, une augmentation de la salinité optimale. Les paramètres de solubilisation dont la salinité optimale sont sensibles à l'augmentation de la teneur en eau et par conséquent la tension interfaciale.

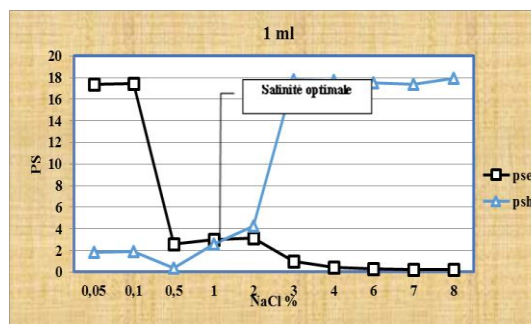
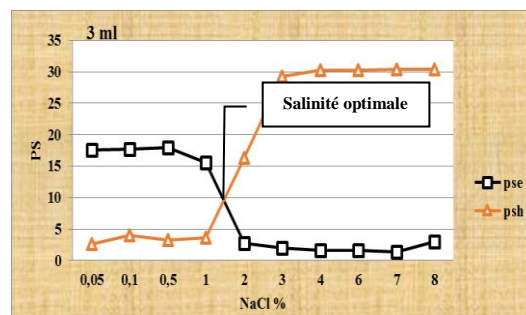
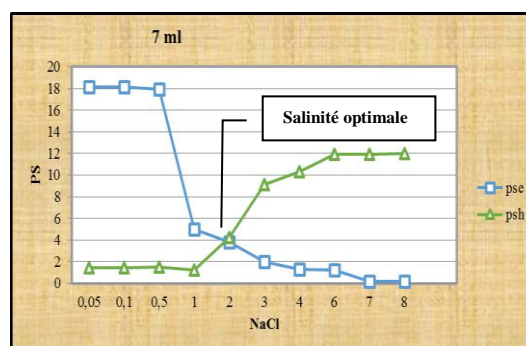


Fig. 6 Variation de paramètre de solubilisation en fonction de salinité en présence SDBS à différente teneur en eau

### III.4. VOLUMES DE PHASE RELATIVE (VPR)

Le volume relatif de chaque phase en fonction de la salinité de tensioactif est représenté dans les figures 7. Ils ont été visualisés dans des tubes à essai, expérimentalement. On constate que les volumes des phases relatives (VPR) du système de microémulsion sont largement affectés par la salinité et la teneur en eau.

#### III.4.1. EFFET DE LA SALINITE

Les figures 7 illustrent la variation de VPR en fonction de la salinité. Il est clair que dans une région de faible salinité seulement deux phases existent, soit une microémulsion au fond en équilibre avec un excès d'huile en haut, qui représente la structure appelée Winsor I. Avec une augmentation modérée de la salinité, une microémulsion de phase bicontinue est formée. Ce type de comportement de phase est reconnu comme Winsor III correspondant à un comportement triphasique avec des phases aqueuses et huileuses en excès. Lorsqu'on augmente la teneur en sel, la phase intermédiaire se convertit en Winsor II avec une microémulsion en haut avec un excès d'eau en bas. La dépendance du comportement de phase du système tensioactif/huile/eau à la teneur en sel peut être expliquée par l'énergie interfaciale et l'entropie de mélange. Les microémulsions sont thermodynamiquement stables et se forment sans apport d'énergie.

#### III.4.2. EFFET DE LA TENEUR EN EAU

D'après les figures 7, on constate que la région de la phase de microémulsion dépend du volume de l'excès d'eau présente en équilibre avec la microémulsion. Dans les expériences effectuées à une salinité variant de 0,05 à 8% en présence de l'huile de vidange pour le tensioactif, des microémulsions de type Winsor I, II et III sont formées. Le volume de microémulsion augmente progressivement avec l'augmentation de la teneur en eau. Cette augmentation du domaine de microémulsion est due à l'augmentation des monomères de tensioactif dans la phase aqueuse.

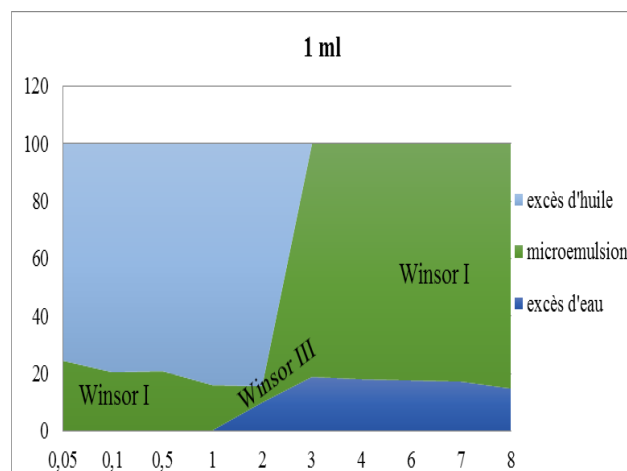
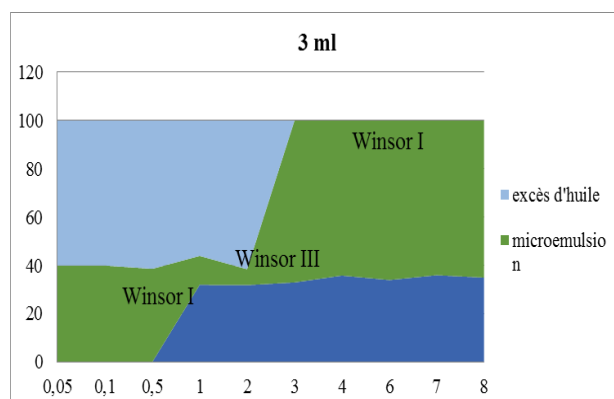
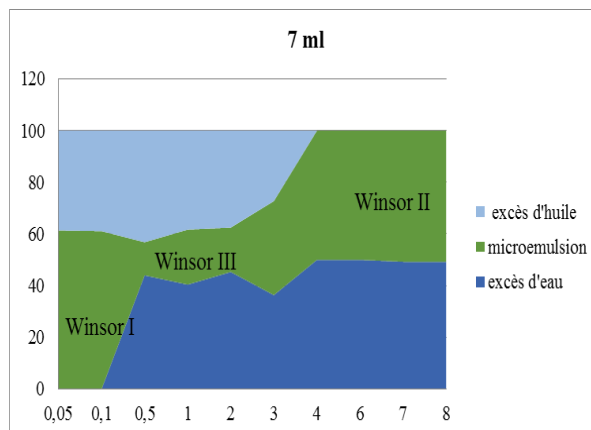


Fig. 7 Variation de VPR en fonction de la salinité en présence de SDBS à différentes teneurs en eau

### III.5. CONDUCTIVITE DE MICROEMULSION

La mesure de la conductivité électrique fournit des informations structurales principalement sur les transitions possibles sur les microémulsions. La Figure 8 montre la variation de la conductivité électrique en fonction de la salinité. La conductivité électrique des microémulsions montre un résultat intéressant avec la variation de la salinité. Avec l'augmentation de la salinité, la conductivité électrique change en fonction des trois structures de Winsor (I, II, III).

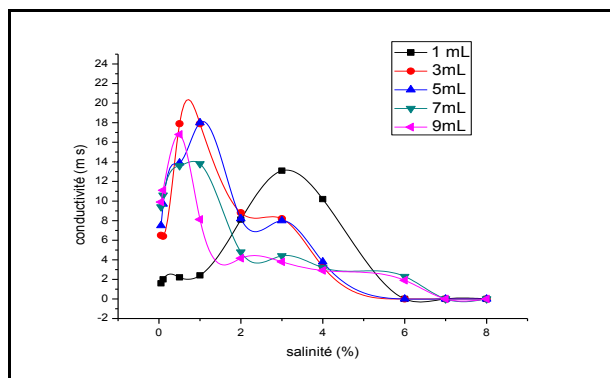


Fig. 8 Variation de la conductivité électrique en fonction de la salinité en présence de SDBS.

Dans un premier temps la conductivité électrique augmente avec une augmentation de la teneur en sel, jusqu'à une valeur maximale à certaine salinité, puis diminue avec l'augmentation de la salinité. Les effets observés peuvent être expliqués par des phénomènes d'inversion de phase, l'ajout de sel neutralise les forces de répulsion électrique entre les micelles de tensio-actif anionique qui les font se rassembler et la transformation de microémulsion. La microstructure et la salinité ont différents effets sur la conductivité de la microémulsion. À des salinités faibles, les microémulsions riches en eau restent en équilibre avec l'excès d'huile, ou les elle reste entièrement solubilisé dans la microémulsion riche en eau. Avec l'augmentation de sel, la solubilisation dans l'eau diminue et la solubilisation dans huile augmente, et conduit au changement de phase avec un changement de conductivité.

## V. CONCLUSION

Des microémulsions composées de huile de vidange en tant que phase huileuse, de l'eau, et SDBS comme agent tensioactifs et le pentanol en tant que co-tensioactifs ont été préparées avec succès.

Le comportement de phases et les propriétés physico-chimiques de microémulsions contenant le dodécyl sulfate de sodium(SDBS)/saumure/pentanol/huile de vidange et ses changements structurels avec la salinité ont été étudiés. Le balayage de la salinité a un rôle important sur les paramètres de solubilisation et sur les domaines d'existence des microémulsions notamment pour le système Winsor III.

Les résultats de la présente étude montrent que la transition de phase a lieu à partir de Winsor I vers Winsor III à Winsor II pour une teneur en sel faible à des valeurs élevées.

Ces systèmes formulés peuvent trouver de nombreuses applications, notamment dans la remédiation environnementale des sols pollués par les hydrocarbures.

## REFERENCES

[1] Scriban, R. : Biotechnologie : restauration par voie biologique des sols contaminés par les polluants organiques. 5èmes éditions. Ed Lavoisier, (1999).  
 [2] Paria, S.: Surfactant-enhanced remediation of organic contaminated soil and water, *Advan. Colloid Interface Sci*, 138, 24-58, (2008).

[3] Lee, M. H.; Kang, W. D.: Application of nonionic surfactant-enhanced in situ: flushing to a diesel-contaminated site, *Water Res.*, 39, 139-146, (2005).  
 [4] Pearl M., Pruijn M., Bovendeur J, The application of soil washing to the remediation of contaminated soils, *Land Contamination & Reclamation*, 14 (3), 713-726(2006).  
 [5] Pennell K.D., Abriola L.M., Weber W.J., Surfactant-enhanced solubilization of residual dodecane in soil columns : 1. Experimental Investigation. *Environ. Sci. Technol.* 27, 2332-2340(1993).  
 [6] Khalladi R., Benhabiles O., Bentahar F., Moulai-Mostefa N., Surfactant remediation of diesel fuel polluted soil. *J. hazard. Mater.* 164, 1179-1184, (2009).  
 [7] Bourrel M., Shechter R.S., Microemulsions and related systems : Formulation, solvency, and physical properties. *Surfactant Science Series*, Vol.30, Marcel Dekker Inc., New York and Basel (1988).  
 [8] Bera, A. ; Ojha, K. ; Mandal. ; A. ; Kumar, T. : "Interfacial tension and phase behavior of surfactant-brine-oil system" *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* 383 114-119(2011).  
 [9] Bera, A. ; Ojha, K. ; Kumar, T. ; Mandal. ; A. : "Phase Behavior and Physicochemical Properties of (Sodium DodecylSulfate + Brine + Propan-1-ol + Heptane) Microemulsions" *J. Chem. Eng. Data*, 57 (3) 1000-1006 (2012).  
 [10] Hoar, T. P.; Schulman, J. H.: Transparent Water-in-Oil Dispersions: the Oleopathic Hydro-Micelle. *Nature*. 152, 102-103, (1943).  
 [11] Schulman, J. H.; Stoeckenius, W.; Prince, L. M.: Mechanism of formation and structure of microemulsions by electron microscopy. *J. Phys. Chem.* 63, 1677-1680, (1959).  
 [12] Rahal S., Khalladi R., Moulai-Mostefa N., Solubilization of crude oil by extended and other anionic surfactants. *Arab. J. Sci. Eng.* 41, 1, 111-117 (2016).  
 [13] Rosen M.J., *Surfactants and interfacial phenomena*, 3rd ed., Wiley, New Jersey, (2004).