

NOTE TECHNIQUE

Étude de la purification d'huiles usagées de type «moteur» au moyen d'une argile montmorillonitique

F. Mohellebi¹, A. Bouchekhou¹, N. Harbi¹, R. Hadjoudj¹ et C. E. Chitour¹

¹ Laboratoire Valorisation des énergies fossiles, Département Génie chimique, École nationale polytechnique, 10, avenue Hassen Badi, El-Harrach, BP182, Alger - Algérie

Résumé — Les huiles usagées «moteur» constituent une catégorie importante de matériaux susceptibles d'être récupérés moyennant des traitements appropriés. Cette récupération est une nécessité pour protéger l'environnement et peut conduire à des gains substantiels.

Cet article étudie une nouvelle technique de régénération non polluante, la percolation, avec pour objectif majeur la suppression de l'emploi d'acide. De ce fait, nous avons étudié la possibilité d'utiliser la bentonite algérienne pour la purification complémentaire de l'huile moteur SAE 20 W50 usagée, déshydratée et débarrassée des hydrocarbures légers (l'essence).

Mots-clés : lubrifiants, huiles moteur, régénération.

Abstract — *Study of the Purification of Spent Motor Oils by a Montmorillonite Clay* — Used motor oils constitute an important category of materials that are susceptible to be recovered by using suitable treatments. This recuperation is a necessity to protect the environment and can drive to substantial gains.

This work consists in the survey of a no polluting new technique of regeneration no polluting, the percolation, with for major objective the suppression of the use of acid. Therefore, we have studied the possibility to use the Algerian bentonite for the complementary purification of used motors oil SAE 20 W50 dehydrated and rided of the light hydrocarbons.

Keywords: lubricants, motor oils, regeneration.

LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS UTILISÉS

<i>ASTM</i>	American Society of Testing Materials	ΔP	Perte de charge à l'intérieur du lit de bentonite (Pa)
<i>C</i>	Concentration instantanée en matières carbonneuses de l'effluent huileux (g/ml)	d_c	Diamètre de colonne (cm)
C_C	Carbone Conradson de l'huile (% p)	d_g	Diamètre moyen des grains du lit de bentonite (mm)
C_{C-fr}	Carbone Conradson de la fraction d'huile recueillie (% p)	d_p	Diamètre moyen des particules d'impuretés retenues par les lits (mm)
C_{CU}	Concentration en matières carbonneuses du cumul des fractions recueillies (g/ml)	D_{fr}	Masse volumique de la fraction d'huile recueillie (g/cm ³)
C_{fr}	Concentration en matières carbonneuses de la fraction d'huile recueillie (g/ml)	EDTA	Acide éthylène-diamine-tétracétique
C_{HU}	Concentration initiale en matières carbonneuses de l'huile usagée (g/ml)	<i>F</i>	Capacité de filtration du lit de bentonite
		F_0	Capacité de filtration du lit de bentonite de référence

H	Hauteur du lit de bentonite (cm)
H_0	Hauteur du lit de bentonite de référence (cm)
HN	Huile neuve
HU	Huile usagée
$HT0$	Huile traitée par de la bentonite naturelle contenue dans une colonne de 2,4 cm de diamètre
$HT1$	Huile traitée par de la bentonite activée thermiquement sous $T = 220^\circ\text{C}$ contenue dans une colonne de 2,4 cm de diamètre
$HT2$	Huile traitée par de la bentonite activée thermiquement sous $T = 220^\circ\text{C}$ contenue dans une colonne de 1,8 cm de diamètre
$HT3$	Huile traitée par de la bentonite activée thermiquement sous $T = 220^\circ\text{C}$ contenue dans une colonne de 1,2 cm de diamètre
$HT4$	Huile traitée par de la bentonite activée thermiquement sous $T = 220^\circ\text{C}$ contenue dans une colonne de 0,9 cm de diamètre
M	Masse d'impuretés retenues réellement par le lit (g)
M_f	Masse finale de bentonite purifiée (g)
M_i	Masse initiale de bentonite saturée (g)
M_m	Masse maximale d'impuretés à retenir (g)
N_p	Nombre de particules d'impuretés retenues par les lits
N_{p0}	Nombre de particules d'impuretés retenues par le lit de référence
Q_m	Débit moyen de l'huile (ml/h)
SAE	<i>Society of Automotive Engineers</i>
S_d	Section droite du lit (cm ²)
T	Transmission de l'effluent huileux (% T)
T_{CU}	Transmission du cumul des fractions recueillies (% T)
T_{fr}	Transmission de la fraction d'huile recueillie (% T)
T_{HU}	Transmission de l'huile usagée (% T)
t_0	Temps d'apparition de l'effluent (= 0) (h)
t_p	Temps de percolation à partir de l'entrée de la colonne (h)
t_r	Temps de rupture (h)
t_{re}	Temps de percolation à partir de la sortie de la colonne (h)
t_s	Temps de saturation du lit (h)
TAN	Total Acid Number (mg KOH/g)
TBN	Total Base Number (mg KOH/g)
U_s	Vitesse de circulation superficielle moyenne de l'huile (cm/h)
U_{s0}	Vitesse de circulation superficielle moyenne de l'huile dans le lit de Bentonite de référence (cm/h)

V_{ef}	Volume de l'effluent (ml)
V_{fr}	Volume de la fraction d'huile recueillie (ml)
V_R	Volume de percée correspondant à une certaine concentration de l'effluent (ml)
V_S	Volume de saturation (ml)
V_{SG}	Volume de saturation (le plus grand d'une série d'expériences) correspondant à une concentration de l'effluent égale à 95 % de la concentration en matières carbonneuses de l'influent huileux (ml).

Lettres grecques

ε	Porosité moyenne des lits
σ	Facteur de proportionnalité
ψ	Facteur de forme.

INTRODUCTION

La prise de conscience mondiale dans le domaine de l'écologie, illustrée par la Conférence de Rio en 1992, a incité de nombreux pays à mettre en place une politique de traitement des déchets. Protéger l'environnement, lutter contre le gaspillage de l'énergie et exploiter des ressources inutilisées, tel est le triple objectif de la récupération des déchets. Aujourd'hui, la conjoncture économique difficile commande de réduire le gaspillage de matières premières et d'énergie que représentent ces énormes quantités de déchets rejetés. Les huiles usagées « moteur » constituent une catégorie importante de matériaux récupérables. La priorité est donnée au recyclage, dont l'objectif est l'économie de matières premières ou la récupération d'énergie par la combustion de ces huiles usagées.

Nous nous sommes intéressés à l'huile usagée « moteur » qui constitue la proportion la plus importante des huiles collectées.

Les huiles lubrifiantes pour moteurs d'automobiles sont à base d'hydrocarbures extraits du pétrole et soigneusement raffinés, auxquels on ajoute divers additifs en teneur globale très variable, qui permettent d'atteindre les spécifications d'emploi des huiles finies. En service, l'huile est polluée par l'essence et les gaz de combustion qui apportent, entre autres, des dérivés de plomb. Cette huile s'oxyde partiellement. Néanmoins, cette détérioration du lubrifiant est un processus lent et la plus grande partie de la base hydrocarbonée de l'huile reste inaltérée. Elle peut être réutilisée à la confection de lubrifiants pour moteurs et de combustibles à condition d'être récupérée dans un état de pureté comparable à celui d'une base neuve.

Le présent objectif vise à la mise au point d'un procédé de régénération par percolation d'huiles lubrifiantes usagées peu ou non polluant [1, 2] en remplacement de la méthode

conventionnelle de régénération à l'acide sulfurique et à la terre activée. Nous avons étudié la possibilité d'utiliser une bentonite algérienne (Mostaganem) activée thermiquement comme argile purifiante.

1 ÉNONCÉ DE LA THÉORIE ET DES DÉFINITIONS

La façon la plus courante d'effectuer une opération d'adsorption-filtration consiste à faire passer le mélange fluide sur un lit fixe d'adsorbant. Lorsque le mélange est liquide, l'opération prend le nom de percolation. Procédé semi-continu et cyclique, chaque cycle comprenant une adsorption-filtration au cours de laquelle l'adsorbant est débarrassé de l'adsorbat.

Pour le traitement des données expérimentales, nous nous sommes inspirés de la méthode de la zone de transfert de matière [3]. Les différents paramètres caractérisant le système ainsi choisi sont le débit moyen d'huile Q_m (ml/h), la vitesse de circulation superficielle moyenne U_s (cm/h) de l'huile usagée et la capacité de filtration F du lit définis respectivement par les équations suivantes :

$$Q_m = \frac{\int_{t_0}^{t_s} \left(\frac{V_{ef}}{t_p} \right) \delta t}{t_s - t_p} \quad (1)$$

avec :

- Q_m débit moyen d'huile (ml/h) ;
- t_0 temps d'apparition de l'effluent (h) ;
- t_p temps de percolation à partir de l'entrée de la colonne (h) ;
- t_s temps de saturation du lit de bentonite (h) ;
- V_{ef} volume de l'effluent huileux (ml).

L'évaluation des débits moyens d'huile (Q_m) est réalisée par le calcul de l'aire sous les courbes de débits instantanés en fonction du temps de percolation.

$$U_s = \frac{Q_m}{S_d \cdot \varepsilon} \quad (2)$$

avec :

- U_s vitesse de circulation superficielle moyenne de l'huile (cm/h) ;
- ε porosité moyenne du lit ;
- Q_m débit moyen d'huile (ml/h) ;
- S_d section droite du lit (cm²).

$$F = \frac{M}{M_m} = \frac{\int_{V_R}^{V_{SG}} \left(\frac{1-C}{C_{HU}} \right) \delta V}{V_{SG} - V_R} \quad (3)$$

avec :

- F capacité de filtration du lit ;
- C_{HU} concentration initiale en matières carbonneuses de l'huile usagée (g/ml) ;
- C concentration instantanée en matières carbonneuses de l'effluent huileux (g/ml) ;
- M masse d'impuretés retenues réellement par le lit (g) ;
- M_m masse maximale d'impuretés à retenir (g) ;
- V_R volume de percée correspondant à une certaine concentration de l'effluent huileux (ml) ;
- V_{SG} volume de saturation (le plus grand d'une série d'expériences) correspondant à une concentration égale à 95 % de la concentration initiale en matières carbonneuses de l'influent huileux (ml).

La concentration instantanée en matières carbonneuses C de l'huile a été définie comme suit :

$$C = C_C \cdot 10^{-2} \cdot D \quad (4)$$

avec :

- C_C carbone Conradson de l'huile (% p) ;
- D masse volumique de l'huile (g/ml).

La capacité de filtration mesure le rendement d'élimination de la bentonite. La connaissance de l'évolution du carbone Conradson (essai normalisé ASTM D189) en fonction du temps de percolation ou du volume d'effluent huileux nous permet, dans une première approximation, de déterminer les valeurs de la capacité de filtration relative.

Si l'analyse d'un effluent par petites fractions successives procure une description précise de son évolution, les propriétés du cumul sont d'un intérêt pratique plus immédiat. Celles des différentes fractions d'huile recueillies ont été déterminées par calcul.

En outre, pour mieux asseoir nos résultats expérimentaux, nous avons fait appel à la transmission T . La loi de Beer-Lambert étant une loi non additive, nous admettons, en première approximation, que le logarithme de la transmission est additif tel que :

$$\ln T_{CU} = \frac{\sum_{i=1}^{i=n} X_i \ln T_{fr}}{\sum_{i=1}^{i=n} X_i} \quad (5)$$

avec :

- $\ln T_{cu}$ logarithme népérien de la transmission du cumul des fractions d'huile recueillies (% T) ;
- $\ln T_{fr}$ logarithme népérien de la transmission de la fraction d'huile recueillie (% T) ;
- X_i rapport du volume de la fraction d'huile recueillie au volume total d'huile recueillie.

2 DESCRIPTION ET APPLICATION DE L'ÉQUIPEMENT

Les tests de traitement sur colonne analytique de différents diamètres ($d_c = 0,9, 1,2, 1,8$ et $2,4$ cm) consistent à percoler l'huile usagée SAE 20 W50 vidangée à 1000 km à travers des lits fixes de bentonite naturelle et de bentonite activée thermiquement sous une température $T = 220^\circ\text{C}$ et de recueillir l'effluent huileux sous forme de fractions successives.

Le choix de l'huile usagée vidangée à 1000 km nous a été dicté par l'étude portant sur l'influence de l'espacement des vidanges sur les caractéristiques physicochimiques de l'huile en service de même catégorie. Il s'avère comme nous le montre, plus loin, le tableau 4 que la détérioration du lubrifiant s'amorce à ce kilométrage.

En outre, il y a lieu de préciser que la température d'activation thermique de la bentonite $T = 220^\circ\text{C}$ choisie est le résultat de différents travaux portant sur la bentonite et sur ses différentes applications [4-6].

Pour des raisons de commodité, les lits sont surmontés d'une hauteur d'huile de 10 cm. L'alimentation se fait de façon séquentielle, le but étant de maintenir à chaque fois une hauteur d'huile surnageante de 10 cm pour tous les essais effectués. L'écoulement de l'huile se fait par gravité. Dans le cas des grandes colonnes, nous avons provoqué une pluie d'huile à l'aide d'un bûchner renversé afin que toute la surface libre du lit soit imprégnée.

Avant la percolation, par flash à $T = 150^\circ\text{C}$, nous avons déshydraté l'huile et nous l'avons débarrassée de l'essence. Pour éviter les passages préférentiels, la bentonite a été soigneusement tassée par couches successives au moyen d'un vibreur. Cette argile a été utilisée sous une fraction granulométrique de $450\ \mu\text{m}$ -1 mm. Le diamètre moyen des grains d'argile a été évalué à $692\ \mu\text{m}$. Nous avons travaillé à température ambiante de 20 - 22°C .

3 PRÉSENTATION DES DONNÉES ET DES RÉSULTATS

3.1 Étude de la bentonite

La bentonite est une dénomination de la montmorillonite. Cette dernière a été découverte dans les gisements argileux situés près de Montmorillon dans la Vienne (France).

Elle se rencontre dans la nature sous forme de mélanges très hétérogènes et en particulier dans les bentonites auxquelles elle confère des propriétés particulières. Les bentonites découvertes dès 1888 contiennent au moins 75 % de montmorillonite. Cette dernière provient en fait de la transformation naturelle de cendres volcaniques dont l'altération s'est produite il y a des millions d'années par lessivage acide ou alcalin [7, 8].

L'intérêt porté à cette argile à base de montmorillonite s'explique par les propriétés suivantes :

– une capacité de gonflement dans certains liquides et en

particulier dans l'eau, lui permettant de fixer 10 à 15 fois son volume d'eau [9],

– une capacité de fixation de cations comparable à celle de tous les échangeurs d'ions naturels.

Les bentonites sont couramment employées :

– en chromatographie, papeterie et sucrerie comme terres adsorbantes et décolorantes [10, 11] ;

– dans le traitement des vins, vinaigres et bières ;

– dans la fabrication des boues de forage ;

– en fonderie en mélange avec du sable ;

– dans l'industrie du pétrole comme catalyseurs de craquage ;

– dans la fabrication des graisses comme bentones ;

– en agriculture comme support de produits insecticides et fongicides.

Cette simple énumération indique d'une façon non exhaustive la variété des utilisations de ce matériau.

Un test préliminaire de purification (simple essai de décoloration) nous a permis de valider a priori l'utilisation de la bentonite prélevée sur le site dénommé Bloc 3 du gisement de M'Zila à Mostaganem. Des tests, où est appréciée l'éventuelle amélioration de diverses caractéristiques principales de l'huile, ont par la suite été effectués. L'heptane a été utilisé pour régénérer cette bentonite.

Cette argile présente une coloration brun clair et est douce au toucher. Pour améliorer sa capacité de sorption, nous avons fait subir à la bentonite un traitement physique (chauffage) et chimique (par attaque acide). Le choix de ces modes d'activation nous a été dicté par les résultats de travaux antérieurs [12-14] qui montrent ou laissent prévoir un accroissement considérable de la capacité de sorption des bentonites.

3.1.1 Activation de l'échantillon d'argile en laboratoire

Préparation de l'échantillon

La bentonite est déshydratée jusqu'à poids constant à l'étuve sous une température de 105 - 110°C . Ensuite, elle est broyée dans un mortier et par tamisage, nous recueillons la fraction $450\ \mu\text{m}$ -1 mm.

Mode opératoire de l'activation thermique

La bentonite ainsi préparée est introduite dans un four que l'on chauffe graduellement, à raison de $5^\circ\text{C}/\text{min}$, jusqu'à atteindre 220°C . Sous cette température, la bentonite subit un traitement thermique pendant 6 h [15].

Ce type d'activation est plus facile à mettre en œuvre en laboratoire. Le chauffage de la bentonite à une température $T = 105^\circ\text{C}$ permet l'élimination de l'eau de mouillage. Une augmentation de la température provoque le départ de l'eau de constitution et l'élimination des carbonates ; d'autre part, au-delà de $T = 900^\circ\text{C}$, la structure cristalline de la montmorillonite est détruite [15]. Nous assistons alors à une variation de la surface spécifique et par conséquent de la capacité de sorption. La température optimale d'activation se situe environ dans l'intervalle 120 - 500°C .

Mode opératoire de l'activation acide

Dans un réacteur de 500 cm³ muni d'un réfrigérant, d'un agitateur et d'un thermomètre, nous introduisons la bentonite ainsi préparée et séchée à 105-110°C puis la solution d'acide chlorhydrique à 5 % (l'utilisation de cet acide minéral à cette concentration est le résultat expérimental obtenu lors de travaux précédents [5]).

Le mélange est alors chauffé jusqu'à environ 98°C, température que nous maintenons constante durant tout le processus d'activation au moyen d'un bain-marie. L'agitation a été maintenue pendant toute la durée du traitement pour éviter qu'une attaque locale trop vive ne détruise les minéraux argileux. Le temps de contact, initialement fixé à 6 h [15], est déterminé à partir de l'instant où la température de la suspension atteint 98°C environ. La bentonite activée est, par la suite, filtrée sur bûchner, puis lavée avec de l'eau distillée jusqu'à ce que la totalité des anions (Cl⁻) introduits par ce traitement acide soit éliminée. Nous le vérifions par action d'une solution saturée de nitrate d'argent (AgNO₃) sur le filtrat. L'absence de précipité blanc de chlorure d'argent (AgCl) indique l'élimination des ions Cl⁻.

L'activation acide mène vers :

- l'élimination de certaines impuretés telles le calcaire, la dolomie ;
- le remplacement des cations en position échangeable (Ca⁺⁺, Mg⁺⁺, Na⁺, K⁺...) par des cations H⁺ ;
- l'élimination de l'eau et de certains cations métalliques (Li⁺, Ti⁺⁺⁺⁺...) ;
- la possibilité d'élimination des ions hydroxydes (OH⁻) du réseau de montmorillonite ;
- le changement du caractère des liaisons internes ;
- le remplacement de l'aluminium par l'hydrogène et passage de Al⁺⁺⁺, Fe⁺⁺ en solution ;
- l'apparition de défauts dans la structure cristalline ;
- l'augmentation du volume poreux ;
- l'augmentation de la surface spécifique.

Mais il arrive que cette activation acide ait un effet néfaste sur la capacité de sorption de certaines bentonites. Certains auteurs ont montré qu'une activation jusqu'à 5 % en acide diminue la capacité de sorption des bentonites de 15 % et, au fur et à mesure que cette concentration en acide augmente, cette sorption diminue [16].

3.1.2 Analyse chimique de la bentonite

L'analyse chimique qui a pour but de déterminer la teneur en SiO₂, Al₂O₃, CaO, Fe₂O₃... dans l'argile a donné les résultats suivants (tableau 1).

L'analyse chimique donne la composition globale des échantillons d'argile. La silice totale a été dosée par gravimétrie

TABLEAU 1

Composition chimique (% p) de la bentonite à l'état non activé et activé

Chemical composition (% p) of the bentonite in the activated and non-activated state

Composition chimique (% p)	État naturel	Activation thermique T = 220°C	Activation acide HCl 5 %
SiO ₂	66,00	67,59	72,00
Al ₂ O ₃	14,20	12,27	7,56
CaO	3,80	1,30	1,22
MgO	3,00	3,01	1,33
Fe ₂ O ₃	2,40	2,00	1,22
Na ₂ O	1,41	1,20	0,40
K ₂ O	1,30	0,75	0,59
TiO ₂	0,75	0,42	0,40
MnO	0,01	-	-
P ₂ O ₅	0,10	0,09	-
S	< 0,10	-	-
PAF*	7,01	8,70	13,00

* PAF : perte au feu.

après fusion au carbonate de sodium à 900°C et ce, pendant 10 à 15 min. Le calcium a été déterminé par « complexométrie » à l'EDTA après élimination du fer sous forme Fe(OH)₃ avec NH₄OH. Le sodium et le potassium ont été déterminés par spectrophotométrie à flamme, le titane par colorimétrie de l'ion pertitanique à l'eau oxygénée. Le phosphore a été dosé par colorimétrie du complexe phosphomolybdique. La perte au feu (PAF) a été obtenue par calcination de l'échantillon à 1000°C et ce, jusqu'à poids constant. Elle comprend :

- H₂O de la phase argileuse ;
- CO₂ provenant de la décomposition des carbonates ;
- CO₂ + H₂O provenant de la combustion des matières organiques.

Il ressort de l'examen des résultats regroupés au tableau 1 les observations suivantes.

- La valeur du rapport SiO₂/Al₂O₃ de la bentonite à l'état naturel est égal à 4,65. Cela peut s'expliquer par la forte teneur en SiO₂. Certains auteurs [17-19] présentent ce rapport comme étant l'indice caractéristique de la montmorillonite lorsque sa valeur varie entre 2 et 5,5.
- L'activation d'une manière générale entraîne :
 - une augmentation de la teneur en SiO₂ ;
 - une diminution de l'aluminium, du fer, du sodium, du magnésium, du potassium et une disparition totale de manganèse.

L'augmentation du pourcentage de silice est due à la disparition relative des autres composés de l'argile considérée.

La diminution du pourcentage en Fe_2O_3 peut s'expliquer par l'élimination des formes carbonates et hydroxydes de fer.

Le magnésium sous forme de MgO diminue mais ne disparaît pas. Cela peut être dû à la présence dans l'argile, en plus des carbonates de magnésium, d'autres formes de composés difficilement éliminés par les traitements choisis.

Nous remarquons aussi que la perte au feu dans l'argile activée augmente. Un tel résultat était prévisible car l'activation provoque une augmentation de la surface spécifique (tableau 2) ce qui entraîne une plus grande adsorption d'eau. La détermination de la surface spécifique des échantillons de bentonite a été réalisée par la méthode BET (Brunauer-Emmet-Teller) à l'aide d'un appareil, l'analyseur micrométrie, modèle 2100D.

TABLEAU 2

Variation de la surface spécifique avec la nature de l'activation de la bentonite

Variation of the specific surface with the nature of bentonite activation

État de l'argile	Bentonite à l'état naturel	Bentonite activée sous $T = 220^\circ\text{C}$	Bentonite activée avec HCl 5 %
Surface spécifique (m^2/g)	31,03	92,00	123,91

L'analyse granulométrique préalablement effectuée [20] a donné les résultats regroupés dans le tableau 3, avec X_I défini comme étant la fraction massique de produit recueilli entre deux tamis consécutifs.

TABLEAU 3

Valeur du rapport de la fraction retenue à la masse totale de la charge

Value of the ratio for the retained fraction to the total mass of the load

Classe (μm)	Masse (g)	Diamètre moyen (μm)	X_I
]1000-800]	43,4	900	0,410
]800-630]	28,5	715	0,270
]630-500]	18,6	565	0,176
]500-450]	15,1	475	0,143

Nous pouvons définir un diamètre d_g des grains de la sphère équivalente ayant la même surface que le grain d'argile par le biais de la relation (6) suivante :

$$d_g = \frac{\sum X_I}{\sum \frac{X_I}{d_I}} \quad (6)$$

avec d_g : le diamètre moyen du grain d'argile (μm).

3.2 Caractérisation physicochimique des échantillons d'huile

L'étude de la purification de l'huile vidangée à 1000 km, par percolation sur lit fixe de bentonite, se situe dans le cadre d'un vaste programme de recherche portant sur la régénération d'huile lubrifiante moteur SAE 20 W50. Les renseignements obtenus par des analyses physiques et chimiques d'un seul échantillon d'huile usagée sont, en général, peu concluants. Par contre, des analyses sur des échantillons prélevés périodiquement permettent de suivre l'évolution de l'altération et de déceler des anomalies ayant des origines mécaniques [21]. Il faut ajouter que la validité de ces analyses dépend essentiellement des soucis apportés au prélèvement des échantillons d'huile.

Ces derniers proviennent de différentes vidanges effectuées sur un moteur à essence de type Renault. Ce véhicule assure un service quotidien dans Alger et sa banlieue, ce qui impose au moteur et au lubrifiant des conditions d'utilisation très sévères : démarrage à froid, fonctionnement au ralenti, accélérations fréquentes, etc. Ce véhicule a un conducteur attitré et parcourt en moyenne 100 km chaque jour. La vitesse moyenne est de 50 km/h. La durée du service journalier est de 2 h et le véhicule est utilisé 6 jours par semaine.

Nous n'avons pas prélevé d'échantillons à froid car ceci fausserait les données concernant les concentrations métalliques, la teneur en suie, etc. Nous ne les avons pas non plus prélevés après réchauffement du moteur fonctionnant au ralenti car cela aurait entraîné une infiltration de carburant non brûlé et donné ainsi une indication erronée de la viscosité réelle de l'huile en cours de service. L'huile usagée ne provient pas des filtres. Pour obtenir des résultats exploitables, nous avons [22] :

- utilisé des flacons propres et secs que nous avons remplis aux trois quarts ;
- capté les échantillons d'huile sur moteur chaud après un certain temps de fonctionnement. Les vidanges ont été effectuées après avoir laissé s'écouler \pm un tiers de la quantité d'huile du carter ;
- pris le soin, en essuyant les flacons, de ne pas introduire de poussières par le goulot.

La série d'essais normalisés de type *ASTM* a été réalisée sur des huiles prélevées aux fréquences de vidange signalées dans le tableau 4.

Interprétations des résultats d'analyse

- La viscosité : en cours de service, la viscosité d'une huile peut rester stable, augmenter ou diminuer. Entre 0 et 3000 km, la viscosité de l'huile usagée diminue (fig. 1). Cette diminution est principalement le fait de la dilution de l'huile par le carburant, une petite quantité ayant un effet sensible sur la chute de viscosité — la dilution passant de 0 à 2,5 (% V). Elle peut aussi provenir, mais pour une faible

TABLEAU 4

Évolution des caractéristiques physico-chimiques des huiles en service avec l'espacement des vidanges
Evolution of the physicochemical characteristics of the oils in use with the distances between oil changes

Espace- ment des vidan- ges (km)	Densité D ₄ ²⁰	Viscosité à 40°C (mm ² /s)	Visco- sité à 100°C (mm ² /s)	Indice de visco- sité (IV)	Point d'ani- line (°C)	Point éclair (VO) (°C)	TAN (mg KOH /g)	TBN (mg KOH /g)	Dilution (% V)	Teneur en eau (% V)	Carbone Conrad- son (% p)	Point d'écou- lement (°C)	Couleur (% T)	Indice de réfraction
0	0,8793	153,84	17,04	120	110	244	2,40	5,40	0,00	0,00	0,00	-22	99	1,485
50	0,8803	151,84	16,90	120	109	-	2,37	-	0,00	0,00	0,62	-23	98	-
106	0,8810	149,24	16,70	120	108	-	2,35	5,30	0,05	0,010	0,69	-23	95	1,485
158	0,8814	141,20	16,10	120	106	243	-	-	0,10	-	0,70	-	90	-
210	0,8825	139,00	15,95	120	104	242	2,33	5,15	-	0,012	0,75	-22	84	1,484
310	0,8845	133,20	15,50	121	103	241	2,32	5,00	0,34	-	-	-	-	-
410	0,8858	128,00	15,10	121	102	-	-	-	0,41	-	0,87	-22	75	-
502	0,8863	125,50	14,90	121	101	240	-	4,80	0,50	0,015	0,95	-21	53	1,483
600	0,8874	123,00	14,70	121	100	-	2,31	4,65	-	-	0,99	-23	50	-
702	0,8880	120,65	14,50	121	99	239	2,29	4,50	0,70	0,017	-	-22	-	1,483
800	0,8890	118,30	14,30	122	98	-	-	4,45	0,84	-	1,20	-	40	1,483
900	0,8898	113,50	13,90	122	97	238	2,27	4,40	0,92	-	-	-	30	-
1000	0,8901	92,25	12,00	122	96	236	2,25	4,29	2,20	0,20	1,472	-21	20	1,482
1100	0,8926	87,00	11,50	122	-	-	2,30	4,10	-	-	-	-	17	-
1500	0,8942	84,65	11,30	122	95	228	2,34	3,98	2,30	0,24	1,520	-20	14	1,483
3000	0,8951	80,24	11,00	125	94	226	2,55	3,69	2,50	0,30	1,900	-21	10	1,484
5000	0,8963	133,50	16,70	135	93	218	3,25	3,29	3,70	0,56	3,700	-22	9	1,485
7000	0,8982	153,50	20,16	152	91	213	5,25	2,98	4,28	3,00	4,300	-22	7	1,486
Normes ASTM	D1298	D445	D445	D2270	D611	D92	D664	D2896	D3828	D1744	D189	D97	D155	-

part, de la dégradation des additifs d'indice de viscosité utilisés à teneur élevée. Au total, la viscosité à 100°C d'une huile usagée pour la plupart des moteurs d'automobiles ne doit pas être inférieure à 16,3 mm²/s. À 1000 km, elle atteint déjà la valeur de 12 mm²/s.

Au-delà de 3000 km, nous assistons à une augmentation de la viscosité résultant de la présence de produits d'oxydation et de matières charbonneuses. En effet, la valeur du carbone Conradson passe du simple au double. Ce phénomène l'emporte sur les effets de la dilution sur ce paramètre qu'est la viscosité de l'huile en service.

- L'indice de viscosité : en cours d'usage, l'indice de viscosité varie mais ses variations sont moins significatives que celles de la viscosité. Nous constatons une élévation de l'indice de viscosité, conséquence d'une dilution par le carburant.
- Le point éclair : c'est un critère d'identification. Il ne fournit aucune indication quant au danger d'incendie que peut présenter un lubrifiant. Pour les huiles usagées, le point éclair diminue avec de faibles quantités d'essence. Chaque pourcentage de carburant abaisse le point éclair de 5 à 7°C.
- La densité : sa variation en cours d'usage est faible et ne présente pas beaucoup d'intérêt. C'est une caractéristique d'identification.
- Le carbone Conradson : il augmente du fait de la présence dans l'huile en service de résidus métalliques d'usure

(tableau 5) et de matières minérales provenant des poussières de l'air. C'est une caractéristique qui peut dénoter d'un mauvais fonctionnement du moteur et qui donne également les limites d'utilisation de l'huile en service. Au-dessus de 3 % en carbone Conradson, l'huile ne peut plus remplir son rôle et doit être éliminée. Dans notre cas, il s'agirait de l'huile vidangée à 5000 km.

- Le TAN et le TBN : l'huile neuve possède une valeur de l'acidité totale de 2,40 mg KOH/g. Cette présence est normale car le TAN est une mesure potentiométrique de tous les produits acides, organiques et minéraux, présents dans le lubrifiant. Jusqu'à 1000 km le TAN diminue du fait de la dégradation des additifs acides. Au-delà, le TAN augmente. Ceci est dû au fait qu'en ce point, l'additif est presque totalement consommé et la valeur du TAN obtenue est la conséquence de la dégradation de l'huile qui commence à avoir sa propre acidité (fig. 2). En outre, le soufre apporté par le combustible (teneur maximale 0,2 %) réagit avec l'oxygène de l'air au moment de la combustion pour former des gaz sulfureux. Bien que la plupart de ces gaz partent à l'échappement, une partie de ceux-ci vient au contact avec la vapeur d'eau, produite aussi au moment de la combustion, et forme des produits pouvant conduire à l'acide sulfurique [23]. Ce dernier est neutralisé par les produits basiques. En conséquence le TBN diminue, et il y a donc un équilibre entre le TAN et le TBN.

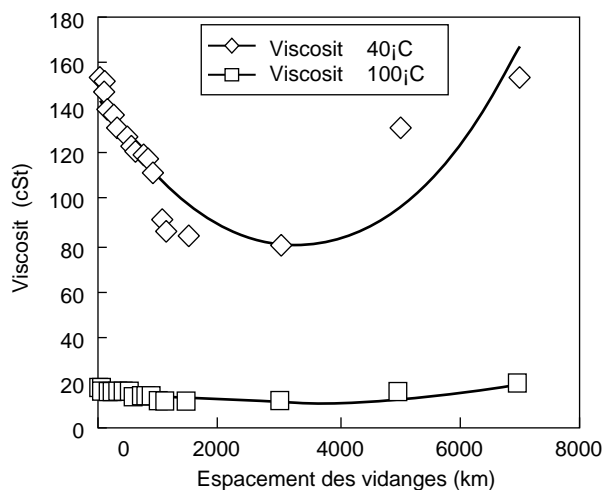


Figure 1

Variation de la viscosité en fonction de l'espacement des vidanges.

Variation in the viscosity as a function of the distance between the oil changes.

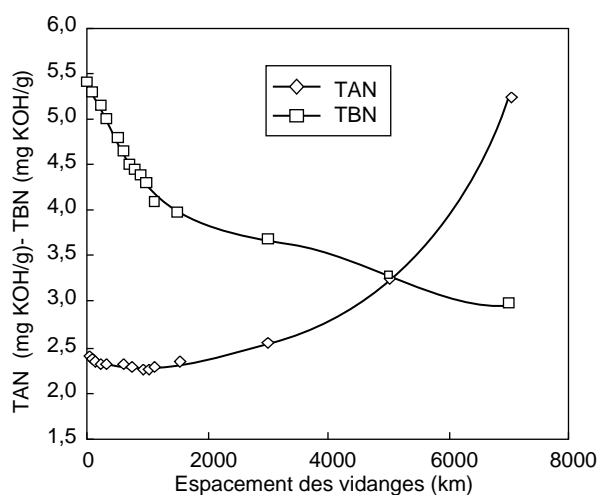


Figure 2

Variation du TAN et du TBN en fonction de l'espacement des vidanges.

Variation of the TAN and TBN as a function of the distance between the oil changes.

TABLEAU 5
Teneur en métaux en trace (ppm*)
Trace metal content (ppm*)

Métaux	Huile neuve 20 W50	Huile vidangée à 1000 km	Huile vidangée à 1500 km	Huile vidangée à 3000 km	Huile vidangée à 5000 km	Huile vidangée à 7000 km
Na	6	35	-	-	-	-
Si	0	14	16	17	20	26
B	0	1	-	-	-	-
Zn	805	824	953	1000	1420	1727
P	594	602	-	-	-	-
Ca	1500	1520	1654	1690	1724	1768
Mg	4	9	-	-	-	-
Fe	0	25	80	104	168	250
Cr	0	3	4	6	10	13
Mo	0	1	-	-	-	-
Al	0	4	9	10	23	46
Cu	0	4	14	39	57	141
Pb	0	110	114	147	210	435
Sn	0	0	3	4	8	9

* ppm : partie par million.

- La teneur en eau : au fur et à mesure de l'espace des vidanges, la teneur en eau augmente. Ceci constitue une anomalie d'autant plus indésirable que l'eau, même en faible quantité, peut causer de graves dégâts dans un lubrifiant moteur. Elle peut influencer sur la viscosité de l'huile en formant une émulsion. D'autre part, cette eau peut, bien souvent, réagir avec certains additifs du lubrifiant [24], en particulier ceux qui apportent la réserve d'alcalinité, pour les déstabiliser et les rendre plus ou moins insolubles. La limite admise est 0,2 % (valeur obtenue pour l'huile vidangée à 1000 km).
- La dilution : une dilution exagérée de l'huile en service par l'essence peut avoir de sérieuses conséquences sur le graissage et la sécurité de fonctionnement des moteurs, par suite de la chute de la viscosité, du point d'inflammation et de la qualité d'ensemble de l'huile. C'est donc une caractéristique intéressante à suivre en cours de service. Le tableau 4 montre une augmentation de ce paramètre, augmentation qui devient importante à partir de 1000 km. En général, une huile devrait être vidangée lorsque sa teneur en diluant dépasse 5 % [21].

Pour affiner cette caractérisation, nous avons procédé à la détermination de la teneur en métaux en trace (métaux d'additivation et d'usure) [25]. Nous avons utilisé une torche à

plasma ICP Système avec logiciel de traitement de données. Les résultats sont donnés dans le tableau 5.

Nous retrouvons dans l'huile des traces infimes (mesurées en ppm) des différents métaux entrant dans la composition des différentes pièces du moteur : Al, Cr, Cu, Sn, Fe... (métaux d'usure). L'augmentation de la teneur en fer est due, le plus souvent, à une usure des cylindres et des segments. Elle est à associer avec la teneur en chrome dans le cas de segments chromés, avec la teneur en silice dans le cas de filtres à air inefficaces, encrassés ou mal montés. En plus des éléments métalliques provenant des additifs présents en teneurs relativement importantes dans l'huile neuve (Zn, P, Ca), l'huile en service contient un métal lourd, le plomb. La dilution en service du lubrifiant par le carburant (tableau 4) explique bien les traces de plomb dans cet échantillon.

3.3 Variation de la viscosité de l'huile en service en fonction de la température

Il nous a paru intéressant d'étudier la variation de la viscosité de l'huile en service en fonction de la température (tableau 6). Cette propriété est directement liée à la cohérence du film lubrifiant ; une rupture de ce film (viscosité faible) peut

TABLEAU 6
Variation de la viscosité avec la température
Variation in viscosity with the temperature

T (°C)	20°	40°	60°	80°	100°	150°	250°
Huile neuve 20 W50	282,00	153,84	80,50	60,00	17,04	8,30	2,40
Huile vidangée à 1000 km	204,00	92,25	70,00	53,00	12,00	6,20	2,02
Huile vidangée à 1500 km	186,01	84,65	63,81	37,05	11,30	5,25	1,62
Huile vidangée à 3000 km	132,50	80,24	51,70	21,60	11,00	4,83	1,05
Huile vidangée à 5000 km	213,30	133,50	73,33	57,05	16,70	6,72	2,21
Huile vidangée à 7000 km	243,00	153,50	75,24	58,25	20,16	7,09	2,35

créer des points chauds pouvant provoquer une usure des organes moteurs. Les caractéristiques du lubrifiant associées à ses propriétés d'écoulement et de fluidité sont importantes pour le rendement mécanique du moteur, directement lié au glissement des pièces en mouvement. Cependant, il est nécessaire de ne pas descendre en dessous d'une certaine valeur sous peine d'obtenir une rupture du film lubrifiant.

L'examen des résultats du tableau 6 montre que la viscosité de l'huile usagée varie plus rapidement que celle de l'huile neuve. Les risques de rupture du film lubrifiant sont alors plus grands avec l'huile en service. Nous constatons que l'écart entre les valeurs de viscosité des 6 échantillons d'huile diminue avec l'augmentation de température. À température élevée, les huiles en service ont des viscosités voisines, mais la lubrification n'est assurée convenablement que par l'huile neuve ; la viscosité à elle seule, à une certaine température, ne permet pas de juger de la cohérence du film lubrifiant. En fait, il semble que l'apport de toutes les propriétés entraîne un meilleur comportement global de l'huile.

3.4 Régénération de l'huile usagée par percolation sur une bentonite algérienne

La connaissance des déficits concernant les différentes propriétés de l'huile usagée vidangée à 1000 km nous a permis de procéder à des expériences de régénération. Les tests de percolation cités ci-après ont été effectués dans les conditions opératoires mises en évidence dans le tableau 7.

Il est à noter que la référence est l'huile traitée à vitesse de circulation U_s , la plus petite notée $U_{s0} = 1,20$ cm/h.

TABLEAU 7
Conditions opératoires de percolation
Percolation operating conditions

Type de traitement	S_d (cm ²)	ϵ_m	Q_m (ml/h)	Hauteur de lit : H (cm)	U_s (cm/h)
HT0	4,52	0,344	15,84	9,5	10,17
HT1	4,52	0,344	8,36	9,5	5,37
HT2	2,54	0,327	1,00	21,0	1,20
HT3	1,13	0,304	0,79	40,0	2,30
HT4	0,50	0,289	0,69	100,0	4,76

3.4.1 Influence de l'activation de la bentonite sur la percolation

Test de percolation avec la bentonite naturelle (HT0)

Ce test a été effectué dans une colonne de diamètre $d_c = 2,4$ cm remplie de bentonite naturelle déshydratée jusqu'à poids constant sous une température de 105-110°C. Les fractions d'huile traitée sont recueillies en fonction du temps de percolation. La teneur en matières carbonneuses en suspension dans l'huile usagée (C_{HU}) a été évaluée par le biais de l'équation (4). Elle est égale à $C_{HU} \approx 1,91 \cdot 10^{-2}$ g/ml.

Les analyses physicochimiques effectuées sur ces fractions d'huile ont donné les résultats présentés dans le tableau 8 et schématisés dans les figures 3, 4 et 5.

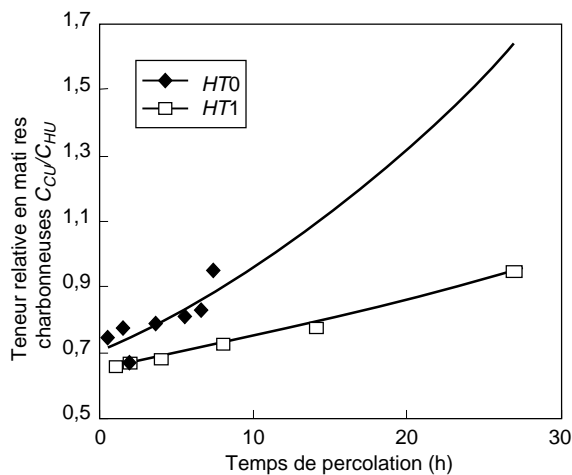


Figure 3

Variation de la teneur relative en matières charbonneuses C_{CU}/C_{HU} en fonction du temps de percolation.

Variation of the relative content of coal material C_{CU}/C_{HU} as a function of the percolation time.

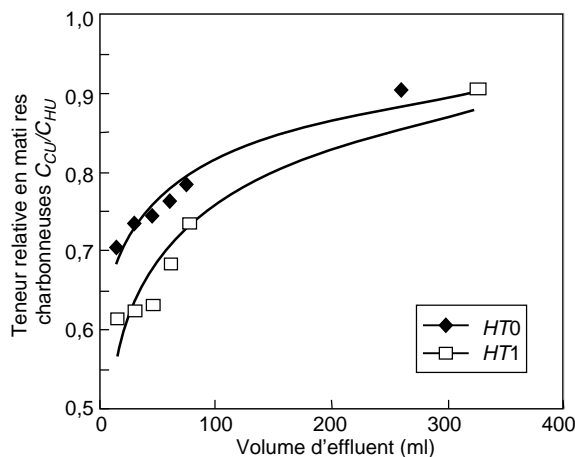


Figure 4

Variation de la teneur relative en matières charbonneuses C_{CU}/C_{HU} en fonction du volume d'effluent.

Variation of the relative content of coal material C_{CU}/C_{HU} as a function of the volume of effluent.

Test de percolation avec la bentonite activée thermiquement (HT1)

Nous avons choisi de travailler dans les conditions opératoires du tableau 7. L'analyse des échantillons d'huile a donné les résultats présentés dans le tableau 9 et les figures 3, 4 et 5.

Il ressort de l'examen de tous ces résultats, qu'à toutes choses égales (diamètre de colonne, hauteur de lit de bentonite, niveau d'huile au-dessus des lits de bentonite), à temps de percolation constant, la bentonite activée thermiquement donne de meilleurs résultats. La teneur en

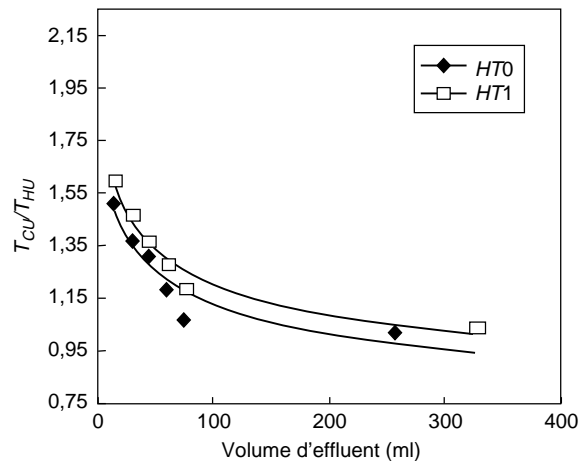


Figure 5

Variation de la transmission T_{CU}/T_{HU} en fonction du volume d'effluent.

Variation of the transmission T_{CU}/T_{HU} as a function of the volume of effluent.

matières charbonneuses restante dans l'huile est plus faible. Cependant, il est nécessaire de travailler dans les faibles temps pendant lesquels les performances de HT1 sont supérieures à celle de HT0. À des temps plus élevés, supérieurs à 20 h, les performances des deux bentonites se rejoignent. Pour profiter du pouvoir de sorption de la bentonite (teneur en SiO₂ élevée dans ce cas précis d'activation), nous préconisons pour les essais à venir, l'emploi de la bentonite activée thermiquement sous $T = 220^{\circ}\text{C}$.

Notons que cet essai de percolation a été repris dans sa totalité avec, comme adsorbant, une bentonite activée avec HCl 5 %. Les résultats obtenus alors n'étant pas plus performants que les précédents (cas de HT1), nous persisterons donc dans l'utilisation de la bentonite activée sous $T = 220^{\circ}\text{C}$.

3.4.2 Optimisation des paramètres hydrodynamiques des différents lits de bentonite

La nature de l'activation de l'argile étant maintenant définie, nous avons, à ce stade de manipulation, tenté de voir l'influence de la hauteur du lit de terre sur les paramètres hydrodynamiques. Pour ce faire, nous avons choisi de travailler sur des colonnes de diamètres 1,8, 1,2 et 0,9 cm (la colonne de 2,4 cm ayant donné les résultats présentés dans le tableau 9). De cette série d'expériences, nous avons obtenu respectivement les résultats regroupés dans les tableaux 10, 11 et 12.

Sur la base de tous ces résultats d'analyse des différentes fractions d'huiles obtenues, nous avons pu déterminer la capacité de filtration relative des lits (F/F_0) pour une valeur de volume de rupture égale par exemple à 5 ml et pour des valeurs (U_s/U_{s0}) données (tableau 13). À l'examen de ce tableau, nous remarquons que la capacité de filtration relative F/F_0 diminue avec l'augmentation du rapport (U_s/U_{s0}).

TABLEAU 8

Percolation de l'huile usagée à travers un lit fixe de bentonite naturelle ($d_c = 2,4$ cm) : HTO
(masse de bentonite égale à 50 g)

*Used-oil percolation through a fixed layer of natural bentonite ($d_c = 2.4$ cm): HTO
(bentonite mass equal to 50 g)*

V_{ef} (ml)	V_{fr} (ml)	t_p (h)	t_{re} (h)	T_{fr} (%)	$\ln T_{fr}$	T_{CU} (%)	$\ln T_{CU}$	C_{c-fr} (% p)	D_{fr} (g/cm ³)	C_{fr} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU}/C_{HU}	T_{fr}/T_{HU}	T_{CU}/T_{HU}
15	15	1,0	0,6	30	-1,20	30	-1,20	1,60	0,8873	1,42	1,42	0,75	1,50	1,51
30	15	2,0	1,6	25	-1,39	27	-1,31	1,73	0,8876	1,54	1,48	0,78	1,25	1,37
45	15	4,0	3,6	24	-1,43	26	-1,34	1,77	0,8886	1,57	1,51	0,79	1,20	1,31
60	15	6,0	5,6	17	-1,77	24	-1,43	1,83	0,8896	1,63	1,54	0,81	0,85	1,18
75	15	7,0	6,6	15	-1,90	21	-1,56	1,92	0,8898	1,71	1,57	0,83	0,75	1,07
259	184	7,8	7,4	20	-1,61	20	-1,61	2,14	0,8901	1,90	1,81	0,95	1,00	1,02

TABLEAU 9

Percolation de l'huile usagée à travers un lit fixe de bentonite activée thermiquement ($d_c = 2,4$ cm) : HT1
(masse de bentonite égale à 50 g)

*Used-oil percolation through a fixed layer of thermally activated bentonite ($d_c = 2.4$ cm): HT1
(bentonite mass equal to 50 g)*

V_{ef} (ml)	V_{fr} (ml)	t_p (h)	t_{re} (h)	T_{fr} (%)	$\ln T_{fr}$	T_{CU} (%)	$\ln T_{CU}$	C_{c-fr} (% p)	D_{fr} (g/cm ³)	C_{fr} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU}/C_{HU}	T_{fr}/T_{HU}	T_{CU}/T_{HU}
15	15	2,0	1,0	32	-1,14	32	-1,14	1,42	0,8847	1,26	1,26	0,66	1,60	1,60
30	15	3,0	2,0	27	-1,31	29	-1,24	1,45	0,8857	1,28	1,27	0,67	1,35	1,47
45	15	5,0	4,0	24	-1,43	27	-1,31	1,53	0,8880	1,36	1,30	0,68	1,20	1,37
60	15	9,0	8,0	21	-1,56	26	-1,34	1,84	0,8885	1,63	1,38	0,73	1,05	1,28
75	15	15,0	14,0	17	-1,77	24	-1,43	2,14	0,8901	1,90	1,49	0,78	0,85	1,18
326	251	28,0	26,9	20	-1,61	21	-1,56	2,14	0,8901	1,90	1,81	0,95	1,00	1,04

TABLEAU 10

Percolation de l'huile usagée à travers un lit fixe de bentonite activée thermiquement ($d_c = 1,8$ cm) : HT2
(masse de bentonite égale à 50 g)

*Used-oil percolation through a fixed layer of thermally activated bentonite ($d_c = 1.8$ cm): HT2
(bentonite mass equal to 50 g)*

V_{ef} (ml)	V_{fr} (ml)	t_p (h)	t_{re} (h)	T_{fr} (%)	$\ln T_{fr}$	T_{CU} (%)	$\ln T_{CU}$	C_{c-fr} (% p)	D_{fr} (g/cm ³)	C_{fr} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU}/C_0	T_{fr}/T_0	T_{CU}/T_0
15	15	4,0	2,6	33	-1,11	33	-1,11	1,39	0,8839	1,23	1,23	0,65	1,65	1,65
30	15	7,0	5,6	28	-1,27	30	-1,19	1,44	0,8849	1,27	1,25	0,66	1,40	1,52
45	15	25,0	23,6	25	-1,39	28	-1,26	1,65	0,8857	1,46	1,32	0,69	1,25	1,42
60	15	47,0	45,6	23	-1,47	27	-1,31	1,74	0,8863	1,54	1,38	0,72	1,15	1,35
75	15	70,0	68,6	20	-1,61	25	-1,39	1,96	0,8876	1,74	1,45	0,76	1,00	1,27
355	280	-	497,9	20	-1,61	21	-1,56	2,14	0,8901	1,90	1,81	0,95	1,00	1,05

TABLEAU 11

Percolation de l'huile usagée à travers un lit fixe de bentonite activée thermiquement ($d_c = 1,2$ cm) : HT3
(masse de bentonite égale à 50 g)

*Used-oil percolation through a fixed layer of thermally activated bentonite ($d_c = 1.2$ cm): HT3
(bentonite mass equal to 50 g)*

V_{ef} (ml)	V_{fr} (ml)	t_p (h)	t_{re} (h)	T_{fr} (%)	$\ln T_{fr}$	T_{CU} (%)	$\ln T_{CU}$	C_{c-fr} (% p)	D_{fr} (g/cm ³)	C_{fr} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU}/C_0	T_{fr}/T_0	T_{CU}/T_0
15	15	48,0	12,1	34	-1,08	34	-1,08	0,82	0,8829	0,72	0,72	0,38	1,70	1,70
30	15	70,0	34,1	29	-1,24	31	-1,16	0,97	0,8844	0,86	0,79	0,42	1,45	1,57
45	15	94,0	58,1	26	-1,35	29	-1,22	1,59	0,8851	1,41	1,00	0,52	1,30	1,47
60	15	-	84,1	25	-1,39	28	-1,26	1,98	0,8868	1,76	1,19	0,62	1,25	1,41
75	15	-	110,1	20	-1,61	26	-1,33	2,11	0,8873	1,87	1,32	0,69	1,00	1,32
456	381	-	309,8	20	-1,61	21	-1,56	2,14	0,8901	1,90	1,81	0,95	1,00	1,05

TABLEAU 12

Percolation de l'huile usagée à travers un lit fixe de bentonite activée thermiquement ($d_c = 0,9$ cm) : HT4
(masse de bentonite égale à 50 g)

*Used-oil percolation through a fixed layer of thermally activated bentonite ($d_c = 0.9$ cm): HT4
(bentonite mass equal to 50 g)*

V_{ef} (ml)	V_{fr} (ml)	t_p (h)	t_{re} (h)	T_{fr} (%)	$\ln T_{fr}$	T_{CU} (%)	$\ln T_{CU}$	C_{c-fr} (% p)	D_{fr} (g/cm ³)	C_{fr} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU} (10 ⁻² g/cm ³)	C_{CU}/C_0	T_{fr}/T_0	T_{CU}/T_0
15	15	96,0	45,8	49	-0,71	49	-0,71	0,77	0,8820	0,68	0,68	0,36	2,45	2,46
30	15	-	93,8	44	-0,82	46	-0,78	0,97	0,8840	0,86	0,77	0,40	2,20	2,32
45	15	-	125,8	41	-0,89	45	-0,80	1,59	0,8852	1,41	0,98	0,52	2,05	2,23
60	15	-	165,8	35	-1,05	42	-0,87	1,78	0,8862	1,58	1,13	0,59	1,75	2,10
75	15	-	213,8	22	-1,51	37	-0,99	2,14	0,8872	1,90	1,28	0,67	1,10	1,84
405	335	-	294,4	20	-1,61	22	-1,51	2,14	0,8901	1,90	1,81	0,95	1,00	1,10

TABLEAU 13

Résultats de calcul de la capacité de filtration des lits de 50 g de bentonite pour $V_r = 5$ ml

Results of the filtration capacity calculation for the 50 g bentonite layers for $V_r = 5$ ml

Type de traitement	V_S (ml)	U_S (cm/h)	Hauteur de lit : H (cm)	$(U_S/U_{S0})^{3/2}$	F (10 ⁴)	$U_S H/U_{S0} H_0$	F/F_0 (%)	N/N_0 (%)
HT0	259	10,17	9,5	24,67	806	3,83	61,06	2,48
HT1	326	5,37	9,5	9,47	1103	2,02	83,56	8,82
HT2	355	1,20	21,0	1,00	1320	1,00	100,00	100,00
HT3	456	2,30	40,0	2,65	2064	3,65	156,36	59,00
HT4	405	4,76	100,0	7,90	2003	18,90	151,74	19,23

L'huile usagée étant un mélange complexe et les facteurs affectant la cinétique de purification difficiles à déterminer, nous pouvons dire que les deux phénomènes de filtration et d'adsorption peuvent avoir lieu. Nous ne disposons d'aucune preuve de type de liaison adsorbat (impuretés)-adsorbant (bentonite). En ce qui concerne les impuretés (adsorbat), elles peuvent être déposées dans des régions privilégiées de la surface ou entre les feuillettes de la bentonite qui, sous l'action de l'activation thermique, ont été restructurés. Nous n'avons pas voulu changer totalement la structure de la bentonite en travaillant à des températures supérieures à 220°C, car à cette température, l'eau de constitution commence à diminuer. En fait, le mécanisme de rétention des impuretés doit être plus complexe que cela (adsorption ou filtration). Il est possible que les deux phénomènes aient lieu concomitamment et leur rapport de force variera en fonction de la nature de l'impureté déposée ou retenue. Compte tenu de cela et des remarques suscitées dans le tableau 13, nous supposons la prédominance, à ce stade de manipulation, de la filtration sur l'adsorption. Les particules d'impureté retenues par le lit filtrant ont alors un diamètre moyen d_p donné par l'équation mathématique suivante [26] :

$$d_p = \sigma \sqrt{U_s d_g} \quad (7)$$

avec :

- σ facteur de proportionnalité $\sigma = 0,0095$ pour une argile présentant une teneur en $\text{SiO}_2 \geq 60\%$ [26]. Le tableau 1 donne une teneur en SiO_2 égale à 67,59 % ;
- d_g diamètre moyen des grains de lit de bentonite (mm) ;
- d_p diamètre moyen des particules d'impuretés retenues par le lit de bentonite (mm) ;
- U_s vitesse de circulation superficielle moyenne de l'huile (m/h).

En partant de l'équation (3) qui donne l'expression de la capacité de filtration F , à savoir :

$$F = \frac{M}{M_m} = \frac{N_p \cdot \rho_p V_p}{N_{pm} \cdot \rho_{pm} V_{pm}} = \frac{N_p \cdot \rho_p V_{p \text{ sphere}} \Psi}{N_{pm} \cdot \rho_{pm} V_{pm \text{ sphere}} \Psi_m}$$

avec :

- M masse de particules d'impureté retenue réellement par le lit de bentonite (g) ;
- M_m masse maximale de particules d'impureté à retenir (g) ;
- N_p nombre de particules d'impureté réellement retenues par le lit de bentonite ;
- N_{pm} nombre maximal de particules d'impureté à retenir ;
- Ψ facteur de forme des particules d'impureté ;
- ρ masse volumique (g/cm^3) ;
- $V_{\text{sphère}}$ volume de la sphère équivalente (cm^3).

Par ailleurs, en faisant l'hypothèse que les lits présentent tous le même facteur de proportionnalité σ et que la masse volumique des particules et le facteur de forme des particules Ψ sont identiques, nous obtenons alors les équations suivantes :

$$F = \frac{N_p \cdot d_p^3}{N_{pm} d_{pm}^3} ; \text{ par analogie, } F_0 = \frac{N_{p0} \cdot d_{p0}^3}{N_{pm} d_{pm}^3}$$

avec F_0 : capacité de filtration du lit de référence.

En tenant compte de l'équation (7) qui donne l'expression de d_p , nous obtenons alors l'équation (8) ci-dessous :

$$F/F_0 = \frac{N_p \cdot (U_s)^{3/2}}{N_{p0} \cdot (U_{s0})^{3/2}} \quad (8)$$

Cette équation confirme notre hypothèse de départ à savoir, que la purification est due probablement à la filtration.

En outre, compte tenu de la très faible vitesse de circulation de l'huile ($\ll 10$ cm/h), nous avons supposé que le régime d'écoulement de l'huile à travers les lits de bentonite est laminaire et que la perte de charge suit l'équation de Blake-Kozeny :

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{150 \cdot (1 \pm \epsilon)^2 \cdot \eta \cdot U_s}{(d_g \Psi)^2 \cdot \epsilon^3} \quad (9)$$

avec :

- ΔP perte de charge à l'intérieur du lit de bentonite (Pa) ;
- H hauteur du lit de bentonite (m) ;
- η viscosité dynamique de l'huile (Pa/s) ;
- d_g diamètre des grains du lit de bentonite (m) ;
- Ψ facteur de forme (facteur de sphéricité) ;
- ϵ porosité moyenne du lit de bentonite ;
- U_s vitesse de circulation de l'huile (m/s).

Elle est donc proportionnelle au produit de la hauteur du lit H par la vitesse de circulation de l'huile U_s à savoir ($U_s \cdot H$). Les valeurs de la perte de charge relative ainsi obtenues sont regroupées dans le tableau 13.

Le type de traitement HT3 semblerait être le mieux approprié pour traiter une huile de moteur vidangée à 1000 km par écoulement par gravité à des vitesses de circulation très faibles. Les particules d'impureté retenues alors ont un diamètre d_p , calculé par le biais de l'équation (7), égal à 1,2 μm . Il restera néanmoins à déterminer la vitesse de circulation optimale de l'huile à travers un lit de bentonite activée thermiquement de 40 cm de hauteur et ce, pour évaluer l'influence de la charge argileuse sur cette vitesse.

3.5 Caractérisation des espèces retenues par la bentonite activée thermiquement

Afin de débarrasser la bentonite des produits résiduels qui l'imprègnent, nous avons pris un échantillon de bentonite saturée provenant des tests de percolation HT1 et HT3. Nous avons traité ces échantillons avec de l'heptane froid sous agitation continue jusqu'à éclaircissement total de ce dernier. Ces échantillons d'argile sont ensuite séchés à une température de 110°C jusqu'à poids constant.

Les masses des prises d'essai avant et après ce traitement ainsi que les volumes d'heptane nécessaires sont donnés dans le tableau 14.

TABLEAU 14

Conditions opératoires du traitement à l'heptane à froid
Operating conditions for the cold heptane treatment

d_c (cm)	2,4	1,2
M_i (g)	9,84	10,83
M_f (g)	8,08	08,61
$(M_i - M_f)$ (g)	1,76	02,22
$V_{heptane}$ (ml)	42	65

Nous constatons que la plus grande quantité des produits d'imprégnation se trouve dans l'échantillon de bentonite retiré de la colonne de diamètre $d_c = 1,2$ cm. Ceci confirme les résultats trouvés précédemment.

Pour évaluer l'influence de la température sur le phénomène de désorption, nous avons réitéré la manipulation, mais en utilisant cette fois-ci de l'heptane en ébullition. Dans le but d'estimer qualitativement les substances adsorbées par la bentonite, l'heptane recueilli lors de ce dernier test a été analysé par chromatographie en phase gazeuse couplée à une spectrométrie de masse (CGMS). Cette analyse a été effectuée sous les conditions opératoires suivantes :

- type d'appareil : Hewlett Packard D5890 ;
- colonne HP de 25 m de longueur et de diamètre intérieur de 0,20 mm ;
- gaz vecteur He, pression 30 psi ;
- détecteur : MSD HP5971 ;
- température de la colonne : 220°C ;
- température de l'injecteur : 250°C ;
- température du détecteur : 280°C ;
- volume du mélange injecté : 0,1 μ l.

Le tableau 15 regroupe les composés identifiés par CGMS.

Nous constatons que la bentonite a adsorbé différents types d'hydrocarbures (des hydrocarbures halogénés, azotés et sulfonés), des alcools et des acides. Ces produits résultent

du craquage des longues chaînes hydrocarbonées et de la dégradation des additifs antioxydants, des additifs détergents, etc.

TABLEAU 15

Identification des produits adsorbés par la bentonite
Identification of the products absorbed by the bentonite

Composés identifiés
(O) $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4\text{OH}$, $\text{HCO}_2\text{CH}_2\text{C}_6\text{H}_5$
(m-) $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4\text{NH}_2$
(α) $\text{C}_9\text{H}_{15}\text{CHO}$
$\text{C}_4\text{H}_3\text{OCO}_2\text{H}$
$\text{C}_9\text{H}_{15}\text{CH}_2\text{OH}$
(m-) $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4\text{NO}_2$
(p) $\text{ClC}_6\text{H}_4\text{NH}_2$
(m) $\text{CH}_3\text{OC}_6\text{H}_4\text{NH}_2$
$\text{C}_6\text{H}_5\text{SO}_2\text{Cl}$
(n) $\text{C}_6\text{H}_5\text{CO}_2\text{C}_4\text{H}_9$
$\text{HOC}_6\text{H}_4\text{CO}_2\text{C}_3\text{H}_{11}$, (m) $(\text{CH}_3)_2\text{NC}_6\text{H}_4\text{OH}$
$(\text{C}_6\text{H}_5)_2\text{CH}_2$
$\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_2\text{CO}_2\text{H}$
(α) $\text{C}_{10}\text{H}_7\text{Br}$
(α) (1, 2) $\text{ClC}_6\text{H}_3(\text{NO}_2)_2$
$(\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_2)_2\text{CO}$
(p) $\text{NO}_2\text{C}_6\text{H}_4\text{NH}_2$
$\text{C}_6\text{H}_4(\text{CH}(\text{N}))\text{C}_6\text{H}_4$
(4, 4') $\text{BrC}_6\text{H}_4\text{C}_6\text{H}_4\text{Br}$
$\text{C}_{18}\text{H}_{18}$

CONCLUSION

Une méthode de travail s'est dégagée de notre approche, que ce soit pour la détermination de la porosité et de l'uniformité des lits, que pour l'utilisation du carbone Conradson, de la masse volumique et de la transmission pour remonter à la teneur en particules solides présentes dans l'huile usagée. L'étude que nous avons menée sur les lits de bentonite (uniformité, porosité, dimension des grains, facteur de forme, nature de la terre, etc.) et sur la charge huileuse (nature des particules d'impureté en suspension, leurs dimensions, vitesse de circulation, etc.) nous a permis de dimensionner un appareil pilote de 18 plateaux de 20 cm de diamètre, chaque plateau pouvant contenir 1,5 kg de bentonite. Plusieurs paramètres ont été étudiés et optimisés. Nous citerons l'espacement des plateaux, la température de percolation, la

granulométrie, le degré de tassage, etc. L'objectif est d'aboutir à un appareil de purification pouvant être utilisé dans des stations-service qui procèdent à des vidanges régulières, la charge de bentonite étant changée après chaque saturation. La dépollution de cette argile, si elle devait s'avérer nécessaire, ne pourrait se faire que par combustion malgré son coût prohibitif.

RÉFÉRENCES

- 1 Audibert, F. (1978) Procédés de régénération des lubrifiants usagés. *Revue de l'Institut français du pétrole*, Éditions Technip, Paris.
- 2 Avrillon, R. (1978) Étude de la purification de produits lourds pétroliers au moyen de résines adsorbantes. *Revue de l'Institut français du pétrole*, Éditions Technip, Paris.
- 3 Whuitier, P. (1972) *Le pétrole, raffinage et génie chimique*, Édition Technip, 1 et 2.
- 4 Mohellebi, F. (1983) Contribution à l'étude de la bentonite de Mostaganem et échange des cations Cu^{++} et Zn^{++} . *Thèse de magister*, École nationale polytechnique, Alger.
- 5 Guendouzi, T. (1991) Contribution à l'étude et à la régénération des huiles usagées moteur. *Thèse de magister*, École nationale polytechnique, Alger.
- 6 Labbaci, A. (1991) Contribution à l'étude et à la régénération des huiles minérales isolantes. *Thèse de magister*, École nationale polytechnique, Alger.
- 7 Allen, V.T. (1946) *Econ. Geol.*, **41**, 424.
- 8 Edelman, C.H. (1947) Verre. *Silic. Ind. Belg.*, **12**, 3.
- 9 Boutaric, A. et Fabrys, S. (1946) *Bull. Soc. Chim. Biol.*, **27**, 621.
- 10 Meunier, P. et Vinet, A. (1943) *Bull. Soc. Chim. Biol.*, **25**, 327.
- 11 Larroca, J. et Buriage, H.M. (1945) *J. Amer. Pharm., Assoc. Scient. Éd.*, **34**, 302.
- 12 Madirov, N.K. (1973) *Bases théoriques de l'activation et mécanisme de l'action des sorbants naturels dans le processus de décoloration des huiles végétales*, Moscou, 339.
- 13 Makki, M.B., Flicoteaux, C. (1976) Activation des argiles. *Bul. de la Soc. Chim. de Fr.*, 1-2, 15-22.
- 14 Tarasevich, V.I., Ovcharenko, F.D. (1975) *Adsorption sur les minéraux argileux*, Kiev, 329.
- 15 Ovcharenko, F.D. (1961) Propriétés hydrophiles des argiles et minéraux argileux. *AN, USSR*, Kiev.
- 16 *Brevet ex-USSR*, n° 499887, 23-03-46.
- 17 Glaeser, R. (1953) Complexes organo-argileux et rôle des cations échangeables. *Thèse*, 113, Paris.
- 18 Kirk-Othmer (1964) Bentonite. *Encyclopedia of Chemical Technology*, **3**, 2^e édition, 339-360.
- 19 Caillère, S. et Hénin, S. (1963) *Minéralogie des argiles*, Édition Masson, 355, Paris.
- 20 Allen, V.T. (1989) Granulométrie. *Techniques de l'Ingénieur*, 104.
- 21 Schilling, A. (1962) Les huiles pour moteurs et le graissage des moteurs. *Publications de l'IFP*, collection *Science et technique du pétrole*, II, **3**, Paris.
- 22 Verlinden, A. (1993) *Contrôle des lubrifiants en service, Alpha Maintenance Systems*, États généraux de la lubrification, Louvain-la-Neuve, Bruxelles.
- 23 Méthodes rapides d'analyse des huiles usagées. (1971). Publications IFP, Collection *Colloques et Séminaires*, Association française des techniciens du pétrole et Société des ingénieurs de l'automobile, Édition Technip, Paris.
- 24 Société des lubrifiants Elf-Aquitaine, *Séminaire Lub Marine*, 28 et 29 Mai 1988, Alger, Algérie.
- 25 Pinta, M. (1962) *Recherche et dosage des éléments en trace, spectrométrie d'absorption*, Éditions Dunod, Paris.
- 26 Mukhlyonov, I.P. (1979) *Chemical Technology*, Édition Mir, **1**.

Manuscrit définitif reçu en avril 1999