

2/94

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Éducation Nationale
Ministère Délégué aux Universités et à la Recherche Scientifique

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
BIBLIOTHEQUE — المكتبة
Ecole Nationale Polytechnique

THESE

présentée à

l'Ecole Nationale Polytechnique - Alger -
Département de Génie chimique

pour obtenir le grade de Docteur d'Etat en Génie chimique

par

Stoyka CHARCHARI

*Contribution à la connaissance de l'huile essentielle de
deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L.
Aspects technologiques de l'extraction de cette huile
et de leur concrète*

Soutenue le 8 Juin 1994 devant la commission d'examen

| | | |
|---------------------|---------------------------------|-------------|
| M. C. E. CHITOUR | Professeur à l'ENP-Alger | Président |
| M. J.-M. BESSIERE | Professeur à l'INSC-Montpellier | Examinateur |
| M. M. H. GUERMOUCHE | Professeur à l'USTHB-Alger | Examinateur |
| M. B. Y. MEKLATI | Professeur à l'USTHB-Alger | Examinateur |
| M. R. BELABBES | Professeur à l'ENP-Alger | Rapporteur |
| M. A. KEEDDAD | Directeur de l'INA-Alger | Invité |

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Education Nationale
Ministère Délégué aux Universités et à la Recherche Scientifique



THESE

présentée à

l'Ecole Nationale Polytechnique - Alger -

Département de Génie chimique

pour obtenir le grade de Docteur d'Etat en Génie chimique

par

Stoyka CHARCHARI

*Contribution à la connaissance de l'huile essentielle de
deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L.
Aspects technologiques de l'extraction de cette huile
et de leur concrète*

Soutenue le 8 Juin 1994 devant la commission d'examen

| | | |
|---------------------|---------------------------------|------------|
| M. C. E. CHITOUR | Professeur à l'ENP-Alger | Président |
| M. J.-M. BESSIERE | Professeur à l'INSC-Montpellier | Examineur |
| M. M. H. GUERMOUCHE | Professeur à l'USTHB-Alger | Examineur |
| M. B. Y. MEKLATI | Professeur à l'USTHB-Alger | Examineur |
| M. R. BELABBES | Professeur à l'ENP-Alger | Rapporteur |
| M. A. KEEDDAD | Directeur de l'INA-Alger | Invité |

*A Hocine, Yacine et Lilya pour leur amour et leur patience,
A mes parents qui m'ont permis de mener à bien mes études,
dont ce travail constitue l'aboutissement,
A ma famille là-bas, dans mon pays d'origine,
A ma famille ici, dans mon pays d'adoption
en témoignage de ma profonde reconnaissance et de mon affection*

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de valorisation des ressources végétales régionales du département de Génie chimique de l'Ecole Nationale Polytechnique-Alger, sous la direction de Monsieur le Professeur R. Bélabbès.

Que Monsieur Bélabbès veuille bien trouver ici l'expression de ma profonde gratitude pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, pour m'avoir confié le sujet et en avoir dirigé la réalisation, en me faisant bénéficier de son expérience, de sa compétence et de sa rigueur scientifique.

A Monsieur C.E. Chitour, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique-Alger, qui a bien voulu me faire l'honneur de présider le jury de soutenance,

A Monsieur J.-M. Bessière, Professeur à l'Institut National Supérieur de Chimie de Montpellier,

A Monsieur M. H. Guermouche, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediène d'Alger,

A Monsieur A. Keddad, Professeur à l'Institut National Agronomique d'Alger,

A Monsieur B. Y. Meklati, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediène d'Alger,

qui ont bien voulu accepter de juger ce travail,

j'exprime mes respectueux remerciements.

Je remercie également Monsieur le Professeur J.-M. Razafintsalama qui m'a orienté dans la voie de la recherche en chimie végétale et n'a cessé de me prodiguer des marques d'intérêt et de bienveillance.

A Monsieur le Professeur J.-M. Bessière qui m'a communiqué son goût pour la chimie des terpènes et dont l'aide et les conseils m'ont permis de mener à bien l'analyse par CG-SM, j'exprime ma profonde reconnaissance.

Je remercie vivement Monsieur M. Boudjeniba et Mademoiselle F. Z. Benhassir du Département de Botanique de l'Institut National Agronomique d'Alger pour leur précieuse contribution à l'identification de la structure sécrétrice des deux plantes.

Mes remerciements s'adressent également à Monsieur le Professeur Belazzoug, au Docteur Benslimani et au Docteur Bacha du Laboratoire Central de l'hôpital Parnet qui m'ont fait profiter de leur expérience et de leurs conseils dans le domaine de la microbiologie.

Ce travail ne serait pas sans l'environnement dont j'ai bénéficié et j'associe à mes remerciements tous ceux qui m'ont aidé par leur compétence, leur savoir-faire et leur gentillesse, comme Mademoiselle C. Boutekedjiret, Mademoiselle A. Dahoun, Mademoiselle E.H. Benhabiles, Mademoiselle H. Benbouabdellah, Mademoiselle O. Merad, Mademoiselle S. Hamadi, Madame R. Derriche, Madame B. Kellou, Monsieur M. Bichari, Monsieur E.H. Benyoucef, Monsieur T. Ahmed-Zaïd, Monsieur H. Djouzi, Monsieur O. Hadjadj Aoul, Monsieur M. Samet, Monsieur A. Rouag et tant d'autres.

Contribution à la connaissance de l'huile essentielle de deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. Aspects technologiques de l'extraction de cette huile et de leur concrète

Résumé: Ce travail présente les résultats d'une recherche menée sur l'huile essentielle et la concrète de deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L., provenant de différentes régions d'Algérie. Les propriétés physico-chimiques et la composition de leur huile essentielle ont été évaluées. D'autre part, l'influence du lieu et de leur période de végétation, du mode et de la durée de leur stockage, ainsi que des conditions opératoires d'entraînement à la vapeur d'eau sur la composition de l'huile a été étudiée. L'optimisation des paramètres de ce procédé, effectuée par planification des expériences et par la méthode classique a permis d'atteindre les conditions optimales de fonctionnement d'une installation semi-pilote. Quant à l'extraction de la concrète à l'éther de pétrole, elle a été réalisée par différentes techniques. L'étude cinétique de ce système solide-liquide a permis d'établir des fonctions cinétique et standard et d'adapter un fonctionnement continu de ce procédé d'extraction par solvant. A cet effet, le dimensionnement d'un tel extracteur à vis convoyeuse, basé sur des concepts idéaux, est proposé.

Abstract: This work gathers the main results of the study of essential oil and concrete from two local Artemisia species: A. herba-alba Asso. and A. judaïca L. Physical properties and chemical composition of these oils have been investigated. Influence of various parameters such as origin, harvesting period, length and way of storage and operational conditions of steam distillation on essential oil composition has been studied. Optimisation of steam distillation parameters has permitted to reach the optimal functioning conditions of a semi-pilot plant. Various technics have been used to achieve petroleum ether extraction of the concrete. A model of the process kinetics has been established, which has been used to design a screw extractor.

ملخص:

هذا العمل هو نتيجة البحث المجرى على الزيت الاساسي والزيت المركز لنوعين من أنواع الشيح: الشيح العراقي والشيخ المتحصل عليها من مناطق متعددة في الجزائر. حددت الخصائص الفيزيوكيميائية والنوعية الكيميائية لهذه الزيوت. من جهة أخرى درس تأثير العوامل التالية: المنطقة الزراعية وزمان جني الشينة، كيفية ومدّة التخزين والشروط التجريبية لعملية الجرببخار الماء على نوعية الزيت. طريقتين تحليليتين: الأولى تخطيطية والثانية كلاسيكية ساعدت على تحديد الشروط القصوى لعملية الجرببخار الماء في جهاز شبه صناعي. كذلك أجريت تقنيات مختلفة لعملية استخلاص الزيت المركز للتينة بواسطة مذيب والدراسة الحركية لهذه العملية مكن من تحديد دالة حركية وأخرى معيارية وكذا هندسة جهاز الاستخلاص.

Sommaire

| | |
|---|-----|
| Introduction | 1 |
| Chapitre I: La matière végétale | 2 |
| Chapitre II: Travaux antérieurs | 5 |
| Chapitre III: Contribution à la connaissance de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 8 |
| Chapitre IV: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle à l'échelle semi-pilote | 48 |
| Chapitre V: Extraction des concrètes d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 78 |
| Conclusion | 151 |
| Bibliographie | 153 |
| Annexes | |

Symboles utilisés dans le texte

A: constante expérimentale

B: constante expérimentale

C: volume des eaux de condensation, l

C_e: concentration du soluté à l'équilibre, kg/kg

C_l(t): concentration du soluté dans la phase liquide à un instant t, kg/m³

C_l(0): concentration du soluté dans la phase liquide à l'instant t=0, kg/m³

C_l(x): concentration du soluté dans la phase liquide à une distance x, kg/m³

C_s(t): concentration du soluté dans la phase solide à un instant t, kg/kg

C̄_s(t): concentration moyenne du soluté dans la phase solide à un instant t, kg/kg

C_s(x): concentration du soluté dans la phase solide à une distance x, kg/kg

C₀: teneur initiale du soluté dans la phase solide, kg/kg

C₀₀: teneur initiale de la concrète dans *Artemisia herba-alba* Asso., g/kg

C₀₀: teneur initiale de la pipéritone dans *Artemisia judaïca* L., g/kg

C₁ à C₆: solutions de concrètes analysées par spectroscopie infra-rouge

Da: coefficient de diffusion moléculaire apparent, m²/mn

D_l: débit volumique de la phase liquide par unité de surface d'extracteur, m³/m²mn

D_M: débit massique de matière végétale par unité de surface d'extracteur, kg/m²mn

D_v: débit volumique de matière végétale par unité de surface d'extracteur, m³/m²mn

D_x, D_y et D_z: composantes du coefficient de diffusion moléculaire apparent **Da** selon les trois axes x, y et z du système orthonormé, m²/mn

E: évaporation de l'huile essentielle, g/h m²

G(t): rapport de concentrations du soluté:
$$\frac{C_0 - C_l(t)}{C_0 - C_l(0)}$$

H: taux d'humidité de la matière végétale, %

L: longueur de l'extracteur à vis convoyeuse, m

M: masse de matière végétale, kg

M̄: moyenne arithmétique

M_{inf} et M_{sup}: niveaux inférieur et supérieur du paramètre masse de matière végétale, kg

M_m: moyenne arithmétique des niveaux inférieur et supérieur du paramètre masse de matière végétale, kg

$$\Delta M: \frac{M_{\text{sup}} - M_{\text{inf}}}{2}$$

$M_i(x,y,z,s)$: transformée de Laplace de $\phi_i(x,y,z,s)$

$M_i^*(x,y,z,s)$: transformée de Laplace de $\phi_i^*(x,y,z,s)$

$M^*(s)$: transformée de Laplace de la fonction standard ϕ^*

N : interface

N : vitesse de rotation de la vis convoyeuse, tr/mn

$N(s)$: transformée de Laplace de $G(t)$

P : nombre de plateaux

P_c : poids du volume des eaux de condensation, kg

P_{inf} et P_{sup} : niveaux inférieur et supérieur du paramètre nombre de plateaux

P_m : moyenne arithmétique des niveaux inférieur et supérieur du paramètre nombre de plateaux

$$\Delta P: \frac{P_{\text{sup}} - P_{\text{inf}}}{2}$$

P_v : poids du volume des eaux de distillation, kg

Q : quantité de vapeur, kg

Q_{HE} : quantité de vapeur utile, kg/kg

Q_{THE} : quantité totale de vapeur rapportée à l'unité de masse d'huile essentielle, kg/kg

Q_{TMV} : quantité totale de vapeur rapportée à l'unité de masse de matière végétale, kg/kg

R : rendement en soluté, kg/kg

R_c : rendement en concrète, g/kg

R_e : rendement en soluté à l'équilibre, kg/kg

R_{HE} : rendement en huile essentielle, %

R_p : rendement en pipéritone, g/kg

S : hydrosolubilité de l'huile essentielle, mg/100 ml

S° : section de l'extracteur à vis convoyeuse, m²

S_a : déviation standard

S_r : déviation standard relative, %

T : température, °C

T_{eb} : température d'ébullition, °C

T_{IR} : transmission en infra-rouge, %

T_r : teneur relative d'un composé estimée par chromatographie en phase gazeuse, %

V : volume de la phase liquide, m³

V: volume des eaux de distillation, l

V_l: vitesse de déplacement linéaire de la matière végétale dans l'extracteur à vis
convoyeuse, m/s

W: volume de la cucurbite, l

X: concentration de cétone dosée par spectroscopie infra-rouge, mg/ml

\bar{X} : concentration moyenne de cétone dosée par spectroscopie infra-rouge, mg/ml

Y: surface de la bande d'absorption infra-rouge

Z: nombre de pas de vis

a: nombre nettement inférieur à 1

a₀ à a₁₂₃: coefficients de l'équation du modèle mathématique

b: constante expérimentale

d: diamètre de la vis convoyeuse, m

²⁰
d₂₀: densité

h_m: hydromodule, m³/kg

i: numéro d'ordre des particules du solide

k: coefficient de diffusion par convection, m/mn

k_p: coefficient de reproductibilité

l: pas de vis, m

m: masse du mélange de terpènes, g

m_e: masse du soluté à l'équilibre, kg

m_{HE}: masse de l'huile essentielle, g

m_l(0): masse du soluté dans la phase liquide à l'instant **t=0**, kg

m_l(t): masse du soluté dans la phase liquide à un instant **t**, kg

m_l(x): masse du soluté dans la phase liquide à une distance **x**, kg

m₀: masse du soluté dans la phase solide à l'instant **t=0**, kg

m_s(t): masse du soluté dans la phase solide à un instant **t**, kg

m_s(x): masse du soluté dans la phase solide à une distance **x**, kg

n: distance entre les extrémités d'une particule du solide, m

p: nombre de particules du solide

p₁: valeur maximale du résultat

p₂: valeur minimale du résultat

r: rapport des volumes occupés par la matière végétale compactée et non compactée

t: temps, mn

\bar{t} : temps relatif, t/t_e

t_e : temps d'équilibre, mn

t_s : critère de Student

t_s : temps de séjour, mn

v : vitesse de distillation, %

v_{inf} et v_{sup} : niveaux inférieur et supérieur du paramètre vitesse de distillation, %

v_m : moyenne arithmétique des niveaux inférieur et supérieur du paramètre vitesse de distillation, %

$$\Delta v: \frac{v_{sup} - v_{inf}}{2}$$

x_1 : variable réduite de masse de matière végétale

x_2 : variable réduite de vitesse de distillation

x_3 : variable réduite du nombre de plateaux

x, y et z : axes de l'espace orthonormé

y^* : rendement en huile essentielle exprimé par les variables réduites x_1, x_2 et x_3 , %

β : rapport de concentrations du soluté: $\frac{C_e}{C_0 - C_e}$

γ et γ^* : fonction cinétique

$\gamma(t)$: proportion de soluté non extrait de la phase solide à un instant t

$\gamma(x)$: proportion de soluté non extrait de la phase solide à une distance x

γ_e : proportion de soluté non extrait de la phase solide à l'équilibre

ϵ : fraction de la matière végétale ne contenant que du soluté

$\phi_i(x,y,z,t)$: rapport de concentrations du soluté $\frac{C_0 - C_s i(x,y,z,t)}{C_0 - C_l(0)}$

$\phi_i^*(x,y,z,t)$: rapport de concentrations du soluté $\frac{C_0 - C_s i(x,y,z,t)}{C_0 - C_l(0)}$, cas où $C_l(0) = \text{const}$

ϕ^* : fonction standard

η_0 : indice de réfraction

ρ : masse volumique de la matière végétale, kg/m^3

τ : taux d'extraction, %

v : nombre d'ondes, cm^{-1}

Abréviations utilisées dans le texte

- Af:** ville d'Aflou
AO: ville d'Ain Oussera
BBA: ville de Bordj Bou Arréridj
Bis: ville de Biskra
CC: constituant commun à l'ensemble des échantillons d'huile essentielle
CG-SM: chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse
CPC: coproculture
CPG: chromatographie en phase gazeuse
CTO: cathétérisme ombilical
Dj: ville de Djelfa
ECBU: examen cyto bactériologique des urines
ER: écart relatif, %
F: fistule
FCA: furoncle du conduit auditif
Gh: ville de Ghardaïa
Gr: grossissement de la prise de vue
HC: hémoculture
IC: intervalle de confiance. mg/ml
InA: ville d'In Aménas
IR: infra-rouge
Lgh: ville de Laghouat
PA: pus d'abcès
PG: prélèvement de la gorge
PO: pus d'oreille
PV: prélèvement vaginal
Sd: ville de Saïda
Tam: ville de Tamanrasset
Tb: ville de Tébessa

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
المكتبة — BIBLIOTHEQUE
Ecole Nationale Polytechnique

Introduction

Le monde végétal offre des ressources inépuisables et tout au long du développement des cultures humaines, l'Homme a entretenu avec son environnement végétal une relation très intime et d'importance vitale. Il a réellement vécu avec les plantes et sa vie en dépendait.

Nous ne connaissons, malheureusement, qu'une infime partie de ce monde et nous devons à chaque fois qu'il sera possible, le découvrir afin de valoriser cette richesse naturelle que sont les plantes.

L'Algérie recèle d'importantes potentialités en matière de plantes aromatiques et médicinales, favorisées par la diversité de son climat et la nature de ses sols. Le Sud du pays dispose de cultures aromatiques couvrant à perte de vue les régions steppiques, mais probablement par manque d'information sur le gain que procurent ces cultures spontanées, il y a un désintéressement pour leur valorisation.

Cependant, l'emploi empirique des plantes, comme arômes et remèdes, remonte à la plus haute antiquité, puisque les Egyptiens, les Perses et les Grecs savaient procéder à l'extraction des huiles essentielles et mettaient à profit leurs propriétés aromatisantes et médicinales.

De nos jours, l'industrie des parfums et l'industrie pharmaceutique sont à la recherche de produits naturels. Cependant, la tendance vers une production élevée et variée pose le problème de la valorisation de nouvelles espèces végétales et de l'optimisation des procédés lors de leur extraction.

Dans cette optique, nous avons entamé l'étude de l'huile essentielle et de la concrète de deux espèces d'*Artemisia*: *Artemisia herba-alba* Aisso. et *Artemisia judaïca* L. Ces plantes aromatiques spontanées ont attiré notre attention, car elles sont très répandues en Algérie et communément utilisées en médecine traditionnelle. De plus, à notre connaissance, la composition de l'huile essentielle des peuplements locaux n'a pas été étudiée.

En entreprenant ce travail, nous avons voulu contribuer en premier lieu, à la connaissance des huiles essentielles de ces deux plantes, en évaluant notamment leurs compositions chimiques, leurs propriétés physico-chimiques et leurs activités antimicrobiennes.

En second lieu et dans l'hypothèse d'une éventuelle exploitation économique de ces plantes, nous nous sommes intéressés aux aspects technologiques des procédés classiques d'extraction de leurs huiles essentielles et de leurs concrètes, en l'occurrence, l'entraînement à la vapeur d'eau et l'extraction à l'éther de pétrole. Concernant l'entraînement à la vapeur d'eau, nous avons effectué une approche des conditions optimales d'extraction d'une installation semi-pilote, en prenant en considération des paramètres liés aussi bien au procédé, qu'aux particularités de la matière végétale. Quant à l'extraction à l'éther de pétrole, nous avons proposé le dimensionnement d'un extracteur à vis convoyeuse, sur la base des résultats de l'étude cinétique de l'extraction solide-liquide.

Chapitre I: La matière végétale

| | |
|---------------------------------|---|
| I.1. Classification botanique | 2 |
| I.2. Description botanique | 2 |
| I.3. Lieux de végétation | 3 |
| I.4. Utilisation traditionnelle | 3 |
| I.5. Matière végétale utilisée | 4 |

I.1. Classification botanique

La classification botanique (1) place *Artemisia herba-alba* Asso. et *Artemisia judaïca* L. dans:

- embranchement: Spermaphytes ou Phanérogames
- sous-embranchement: Angiospermes
- classe: Dicotylédones
- sous-classe: Gamopétales
- ordre: Astéales
- famille: Composées
- tribu: Anthémidées
- genre: *Artemisia*
- espèces: *Artemisia herba-alba* Asso.

Artemisia judaïca L.

La famille des Composées, dénommée récemment Asteracées (2), est la famille la plus vaste des Phanérogames avec près de 1000 genres et 15000 espèces. Elle est considérée par beaucoup d'auteurs comme la plus évoluée (3). Par ailleurs, elle est l'une des principales familles végétales rencontrées dans les paysages arides (4). Au point de vue biochimique, c'est une famille hétérogène dont les principes actifs sont très variés: huiles essentielles, lactones sesquiterpéniques, flavonoïdes, coumarines, tanins, saponosides, composés acétyléniques ou polyines (5).

Le genre *Artemisia*, appelé encore les Absinthes ou les Arnoises (6), tire son nom de l'*Artemisia maritima* Galica, plante dédiée à Artemis Ilithye pour son usage médical (7). D'autres auteurs pensent que *Artemisia* vient du nom de la femme de Mausole, roi de Carie, qui en faisait usage (8).

Artemisia herba-alba Asso. appartient à la section *Seriphidium* Bess. (9). Elle est connue en Algérie sous les noms de: Chih, Ifsi, Zezzare, Arnoise blanche, Semencontra de Barbarie (10).

Artemisia judaïca L. d'Algérie est la sous-espèce *Sahariensis* (10,11). Elle a été mentionnée par d'anciens auteurs arabes tels qu'Ibn El Bitar (12) et Dawood El Antaki (13) et plus tard par Kaiser (14). A deux reprises, elle a été décrite comme espèce nouvelle et les noms *Artemisia Maciverae* (15) et *Artemisia Marcelli* (16) lui ont été respectivement attribués. Localement, elle est appelée Saoura, Sah-Sind, Teherégéle, Bahet-Séran (10) ou encore Chih Iraqui et Chih Balady (17).

I.2. Description botanique

* *Artemisia herba-alba* Asso. est une plante ligneuse, se présentant sous forme de buissons blancs laineux de 30 à 80 cm de hauteur. Les feuilles sont alternées, très divisées et espacées. Les fleurs sont jaunes, groupées en capitules dont le réceptacle ne présente pas d'écaillés. Le fruit est un akène comprimé sans aigrette, ni couronne membraneuse au sommet. Sa période de floraison est située entre début Décembre et début Janvier.

* *Artemisia judaïca* L. est un sous-abrisseau, pouvant atteindre une hauteur de 70cm. Les feuilles, à lobes courts, larges et obtus, sont rapprochées et laineuses comme les rameaux. Les fleurs sont jaunes, en panicules denses très ramifiées. Les capitules sont plus gros que ceux de l'*Artemisia herba-alba* Asso.; de forme hémisphérique, de 3mm de diamètre, à involucre laineux, ils contiennent dix à vingt fleurs. Le réceptacle est glabre et très velu. Sa période de floraison est située entre mi-Février et mi-Mars (2,6,10).

Ces plantes doivent leur odeur caractéristique à l'huile essentielle qu'elles renferment. Celle-ci est emmagasinée, comme pour la plupart des *Artemisia*, dans des dépôts exogènes, faisant partie des organes sécréteurs, appelés glandes composites. Elles sont situées à la surface des feuilles et des fleurs et très peu sur les tiges (18). Ce sont des formations épidermiques, où les cellules vivantes sécrètent l'huile essentielle dans l'espace intercellulaire durant le cycle complet de la plante (19). Certains auteurs (20) signalent cependant, pour quelques *Artemisia*, la présence d'huile essentielle dans des glandes endogènes.

I.3. Lieux de végétation

Artemisia herba-alba Asso. et *Artemisia judaïca* L. sont des plantes spontanées, très communes en Afrique du Nord et au Moyen Orient. Elles affectionnent les climats secs et chauds et forment des peuplements importants dans les zones arides (21).

* *Artemisia herba-alba* Asso. est très répandue en Algérie. Abondante sur les Hauts Plateaux, plus rare au Sahara Septentrional, elle couvrait en 1948 près de six millions d'hectares (22), alors qu'en 1990, la superficie a été évaluée à trois millions d'hectares (23).

* *Artemisia judaïca* L. est répandue dans les lits sablonneux et sablonneux-limoneux des oueds de l'étage tropical. Elle monte parfois jusqu'à l'étage méditerranéen inférieur. En Algérie, on trouve des peuplements importants à Tadmayt dans le Hoggar, à Tefedest (Oued Gif Aman), dans la Haute vallée de l'Igharghar, à Tamanrasset (Oued Azemzi) et aux environs de Tébessa et d'In Aménas (24).

I.4. Utilisation traditionnelle

Artemisia herba-alba Asso. et *Artemisia judaïca* L. jouissent d'une large utilisation par la population autochtone, notamment, en infusion, en décoction, en inhalation ou pour parfumer le thé.

* *Artemisia herba-alba* Asso. est utilisée en médecine traditionnelle contre les refroidissements, les perturbations digestives, la faiblesse musculaire et contre le diabète sucré. On lui attribue aussi des effets vermifuge, antispasmodique, émollient, diurétique et cicatrisant (25,26,27).

* *Artemisia judaïca* L. est considérée comme très bon vermifuge. On l'utilise pour ses vertus comme tonique, stimulant, antispasmodique, stomachique, expectorant, diarrhéique et analeptique

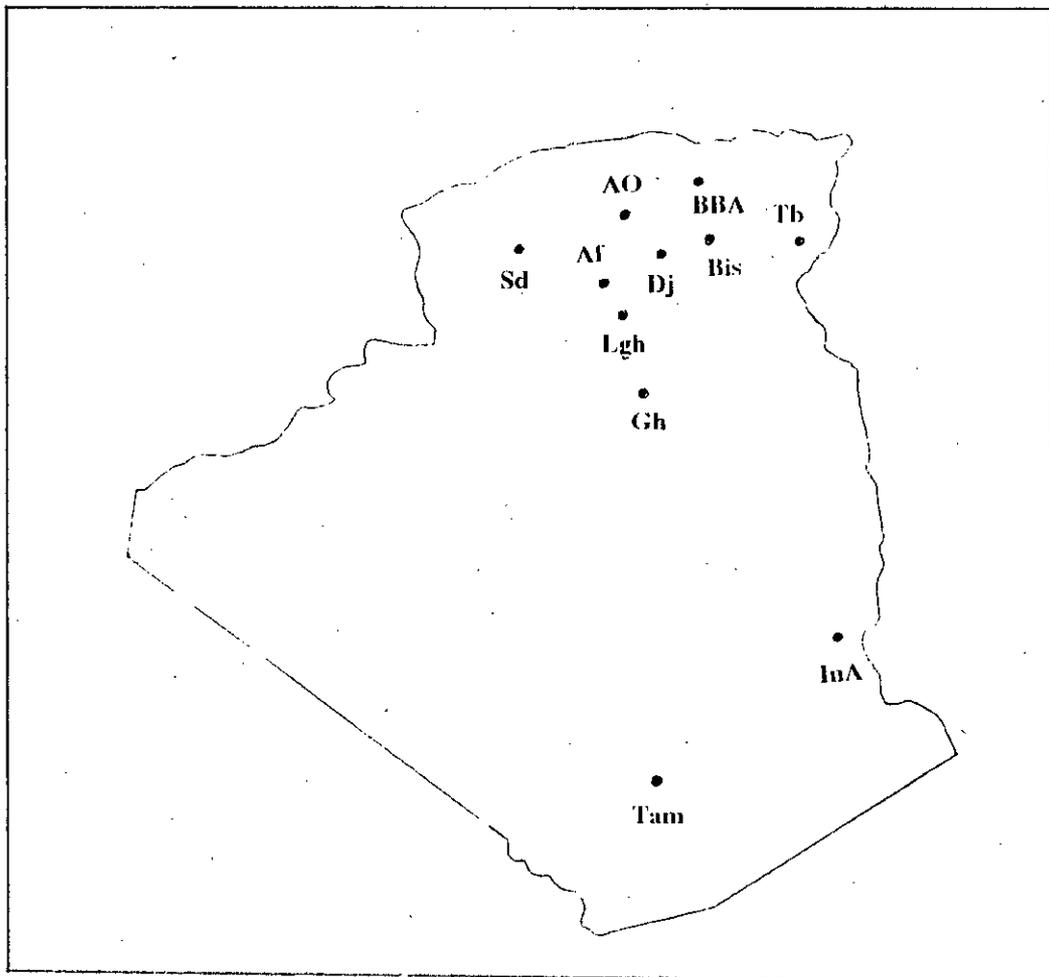
(2,28). Séchée, elle est utilisée comme condiment au Soudan, alors que les Touaregs la suspendent en petits sacs dans les figuiers pour avoir une bonne récolte (24).

I.5. Matière végétale utilisée

Nos travaux ont été effectués sur des lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. cueillie en période de floraison et provenant, comme le montre la carte de l'Algérie ci-après, des régions d'Aflou (Af), Ain Oussera (AO), Biskra (Bis), Djelfa (Dj), Ghardaïa (Gh), Laghouat (Lgh), Saïda (Sd) et Tébessa (Tb). Quant à la région de Bordj Bou Arréridj (Bibans) (BBA), les lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. ont été prélevés à différentes périodes de végétation.

La deuxième espèce étudiée, à savoir *Artemisia judaïca* L., a été cueillie aux environs de l'Oued Azemzi à 15km au Sud de la ville de Tamanrasset (Tam), et dans le Stah à 140km au Nord-Est d'In Aménas (InA).

Un échantillon représentatif de chacun de ces lots a été identifié à l'herbarium de l'Institut National Agronomique d'Alger.



Chapitre II

Travaux antérieurs

* Les travaux menés jusqu'à présent sur *Artemisia herba-alba* Asso. sont d'intérêt chimiotaxonomique. Ils concernent la composition de l'huile essentielle, l'isolation et l'élucidation de la structure des lactones sesquiterpéniques et des flavonoïdes qu'elle contient, en vue de la classification botanique.

Entreprise au début du siècle (29,30,31), l'étude de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. a été pendant longtemps abandonnée, puis elle a de nouveau éveillé l'intérêt des chercheurs.

Ainsi Cohen et coll. (32) publient, en 1972, les résultats d'une étude sur la composition de l'huile essentielle de la plante du Maroc. En 1979, Benjilali et Richard (33,34) étendent cette étude à une cinquantaine de peuplements et distinguent, selon les constituants majeurs de l'huile essentielle et leurs teneurs, huit types différents qu'ils appellent chémotypes:

- type à α -thuyone ($68 \pm 4\%$)
- type à β -thuyone ($58 \pm 15\%$)
- type à camphre ($> 52\%$)
- type à camphre ($43 \pm 9\%$) et cétones (filifolone et chrysanthénone)
- type à l'acétate de chrysanthényle (38 à 70%)
- type à α -thuyone ($31 \pm 3\%$) et à camphre ($38 \pm 3\%$)
- type à α -thuyone ($31 \pm 3\%$) et β -thuyone ($30 \pm 3\%$)
- type à davanone

En effectuant des études analytiques approfondies sur les mêmes échantillons, Seymour (35) identifie 25 nouveaux constituants. Il constate que la composition de l'huile essentielle est fortement influencée par la période de cueillette et par le lieu de végétation de la plante. D'autre part, il rapporte que parmi les huit chémotypes définis, il en est un qui présente un intérêt commercial; c'est celui, dont huile est constituée de ($31 \pm 3\%$) de α -thuyone et de ($38 \pm 3\%$) de camphre. Ce type d'huile, connu sous le nom d'essence de Marrakech, est le plus apprécié par les parfumeurs. Actuellement, le Maroc en est le principal producteur (36). Il est à noter, que l'extraction de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., au Maroc, s'effectue de façon artisanale (37).

Une étude similaire sur un autre peuplement d'*Artemisia herba-alba* Asso. du Maroc a permis à Hurabielle et coll. (38) de distinguer en outre, un type à chrysanthénone. Aussi, ont-ils proposé de considérer ce constituant comme un des critères chimiotaxonomiques de la tribu des Anthémidées.

Segal et coll. (39), étudiant la composition de l'huile essentielle de la plante du Moyen Orient, rapportent pour la première fois, la présence dans l'huile d'alcools monoterpéniques irréguliers et définissent deux nouveaux types d'*Artemisia herba-alba* Asso.: un type à cinéol-thuyone-camphre et un type aux dérivés du pinane (40,41). Des études récentes, effectuées par ces mêmes chercheurs sur l'huile essentielle de la plante d'Espagne (42), ont montré que cette dernière présente des différences appréciables par rapport à celle du Moyen Orient.

Dans le but de rechercher de nouveaux agents thérapeutiques, plusieurs chercheurs étudièrent les extraits d'*Artemisia herba-alba* Asso., obtenus au moyen de différents solvants. Ainsi Khafagy et coll. (43) isolent de l'extrait éthero-pétrolique de la plante d'Egypte, la santonine à laquelle on

attribue l'effet vermifuge.

Plus tard, Gomis et coll. (44) rapportent la présence, dans la plante d'Espagne, de santonine, de torrentine et de déhydro-reynosine, lactones sesquiterpéniques à structure eudesmane.

Aux Etats-Unis, Gordon et coll. (45-47) testent sans succès l'extrait alcoolique d'*Artemisia herba-alba* Asso. du Sinaï contre la leucémie. Ils isolent, cependant, trois lactones sesquiterpéniques à structure germacrane.

Segal et coll., étudiant l'extrait chloroformique de la plante du Moyen Orient, identifient des lactones sesquiterpéniques (48-50).

Des travaux menés par Marco (51-56), sur la plante d'Espagne, permettent l'identification de sept nouvelles lactones sesquiterpéniques.

Saleh et coll. (57), s'intéressant aux flavonoïdes de la plante d'Egypte, réussissent à isoler et identifier les structures moléculaires de onze flavonoïdes-glycosides.

L'utilisation d'*Artemisia herba-alba* Asso. en médecine traditionnelle a incité les chercheurs à isoler ses principes actifs et à évaluer leur effet antimicrobien.

Syed Khaquam (58), Al Yahya (59) et Sherif (60) publièrent des recueils qui traitent de l'utilisation des plantes du genre *Artemisia* respectivement au Pakistan, en Arabie Saoudite, en Afrique du Nord et au Moyen Orient, et dans lesquels ils soulignent l'intérêt pharmacologique d'*Artemisia herba-alba* Asso.

Yashphe et coll.(61) testèrent l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle et de l'extrait méthanolique de la plante du Moyen Orient. Ils rapportent que le santolina alcool contenu dans l'huile est responsable de son activité. Plus tard, ces auteurs publient les résultats d'une étude (62) sur l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle et de quelques-uns de ses constituants majoritaires. Ils constatent que les alcools, à l'exception du bornéol, sont à la base de cette activité. Par contre, les cétones y contribuent peu. En étudiant l'effet antispasmodique de l'huile essentielle, ils trouvent qu'il est cent à mille fois supérieur à l'effet bactéricide et concluent que ces deux effets sont à l'origine de l'utilisation et de l'appréciation d'*Artemisia herba-alba* Asso. en médecine traditionnelle.

Une étude similaire menée par Ross et coll. (63) aboutit aux mêmes conclusions. Les auteurs signalent en outre, l'activité fongicide de l'huile essentielle de la plante d'Egypte.

Benjlali et coll. (64,65), comparant le pouvoir antiseptique des huiles essentielles de thym, de romarin, d'eucalyptus et d'*Artemisia herba-alba* Asso. du Maroc, révèlent que les huiles de thym et d'*Artemisia herba-alba* Asso. sont les plus actives vis-à-vis des trente sept souches de moisissures testées.

De récents travaux, réalisés sur l'extrait aqueux d'*Artemisia herba-alba* Asso. d'Irak (66,68), font état de son effet hypoglycémique élevé, par contre les activités antiparasite et analgesique se sont avérées faibles.

* *Artemisia judaïca* L. est relativement peu étudiée. Les premiers travaux publiés la concernant ont été effectués par des chercheurs égyptiens (69). Plus tard Karawya et coll.

(28), étudiant la composition de l'huile essentielle obtenue par hydrodistillation, constatent une forte proportion (57%) de dérivés carbonylés dont 40% de pipéritone, 15% de camphre et 2% d'isoartémisia cétone. Dans un travail ultérieur (70), les mêmes auteurs complètent l'identification des constituants de l'huile en rapportant la présence de cinnamate d'éthyle, second constituant important après la pipéritone.

Saleh (71) étudia par CG-SM la composition de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L., cueillie dans le désert de l'Ouest égyptien, et identifia quinze constituants, parmi lesquels le cinnamate de méthyle, le benzoate d'éthyle et la davanone sont signalés, pour la première fois, dans l'huile de cette plante.

Très récemment, Fleisher et coll. (72) et Ravid et coll. (73), étudiant l'huile essentielle de la plante du Moyen Orient, rapportent que la pipéritone est le constituant majeur dans l'huile des peuplements du Sinaï. Dans l'huile de la plante du désert du Neguev, les auteurs signalent, pour la première fois, la présence en proportions élevées de monoterpènes irréguliers du groupe artemisyle, tels l'artémisia cétone et l'artémisia alcool.

L'intérêt des chercheurs s'est également porté sur d'autres produits, issus de l'extraction par solvant de la plante. Khafagy et Tosson (74) isolent la judaïcine, un des principes amers d'*Artemisia judaïca* L. Galal et coll. (75), examinant son action pharmaco-toxicologique sur le coeur, trouvent que la judaïcine provoque une prolongation de l'intervalle P-R et renforce les contractions cardiaques.

Zalkow et coll. (46) identifient quant à eux, dans l'extrait alcoolique de la plante, la pipéritone, les esters éthyliques des acides cinnamique et truxinique, ainsi que deux lactones sesquiterpéniques: la vulgarine et la tauremsine.

Plus tard, Metwally et coll. (76) rapportent la présence, dans l'extrait éthéro-pétrolique de la plante, de pipéritone, de cinnamate d'éthyle, d' α -pinène, de chrysanthénone, du camphre, de verbénone et d'hydropéroxyde d'hydroxy-davanone.

Les lactones sesquiterpéniques de la plante ont fait l'objet de travaux réalisés par Eid (77), Khafagy et coll. (78). Ces derniers mettent en évidence la structure eudesmane de ces composés.

Saleh et coll. (79), étudiant les flavonoïdes et les aglycones de l'*Artemisia judaïca* L. d'Égypte, élucident la structure moléculaire de dix sept flavonoïdes et dix aglycones.

Enfin, Abdalla et coll. (80) isolent la cirsimaritrine, une flavone, qui serait responsable de l'activité antispasmodique d'*Artemisia judaïca* L.

Chapitre III

Contribution à la connaissance de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L.

| | |
|---|----|
| III.1. Localisation des sites producteurs d'huile essentielle dans les deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. | 8 |
| III.2. Préparation des échantillons d'huile essentielle des deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. | 15 |
| III.3. Etude analytique des huiles essentielles d'Artemisia herba-alba Asso. et Artemisia judaïca L. | 17 |
| III.3.1. Conditions opératoires d'analyse des huiles essentielles des deux Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. par CPG et CG-SM | 17 |
| III.3.2. Composition chimique de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso., provenant de différentes régions d'Algérie | 19 |
| III.3.3. Composition chimique de l'huile essentielle d'Artemisia judaïca L., provenant de deux régions d'Algérie | 29 |
| III.3.4. Influence de la période de végétation sur la composition de l'huile essentielle des deux espèces d'Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. | 35 |
| III.4. Incidence de la température sur l'hydrosolubilité et l'évaporation de l'huile essentielle des deux Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. | 38 |
| III.4.1. Hydrosolubilité de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. | 38 |
| III.4.2. Evaporation de l'huile essentielle des deux Artemisia: A. herba-alba Asso. et A. judaïca L. | 41 |
| III.5. Evaluation de l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. | 43 |
| III.5.1. L'antibiogramme | 43 |
| III.5.2. Les microorganismes testés | 44 |
| III.5.3. Résultats | 45 |

La connaissance d'une huile essentielle comprend l'ensemble des données faisant référence à son origine, son mode d'extraction, sa composition chimique, ses propriétés physico-chimiques et son utilisation (81).

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord, certaines de ces données relatives à l'huile essentielle de nos deux espèces d'*Artemisia*, à savoir:

- la localisation des sites producteurs;
- les propriétés organoleptiques et certaines propriétés physico-chimiques;
- la composition chimique et la manière dont elle est affectée par le lieu et la période de végétation de la plante.

Plus loin dans notre étude, nous traiterons de l'influence des conditions opératoires d'extraction sur la composition de l'huile. Nous consacrerons, enfin, une partie aux propriétés bactéricides et fongicides de l'huile essentielle, qui pourraient ouvrir la voie à son utilisation éventuelle en pharmacie.

III.1. Localisation des sites producteurs d'huile essentielle dans les deux espèces d'*Artemisia*:

A. *herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

La localisation des sites producteurs d'huile essentielle dans les végétaux est nécessaire, afin d'appréhender les mécanismes mis en jeu lors de son extraction. Le processus de diffusion, qui contrôle l'extraction, y est étroitement lié.

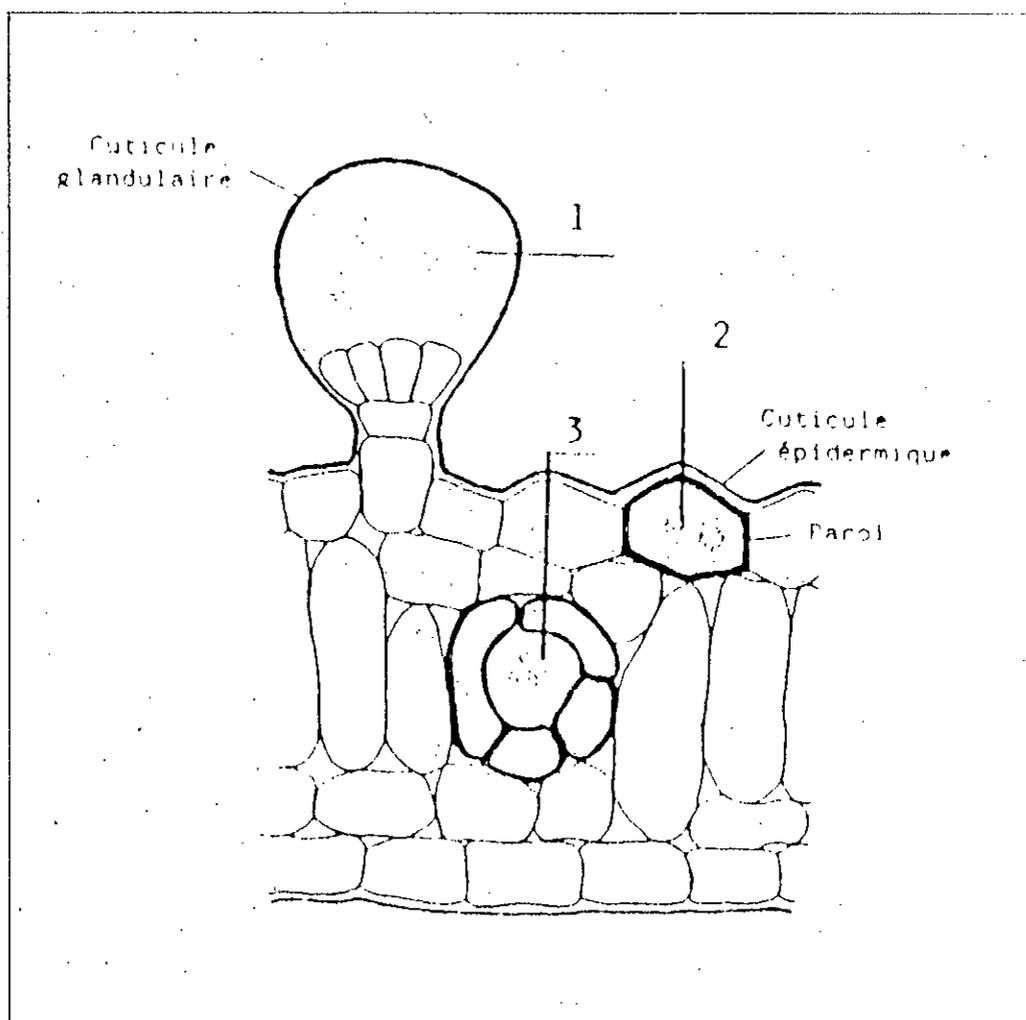
Les travaux effectués, à ce sujet, sont assez rares. Ils apportent seulement des renseignements anatomiques généraux concernant la classification des espèces par famille botanique. Or, chaque espèce végétale a sa propre structure sécrétrice et souvent, en réponse à des agressions du milieu environnant (température, humidité, nature du sol, etc.), l'organisme végétal réagit et subit des mutations, qui lui permettent de se protéger (82).

Ce comportement des plantes intéresse l'huile essentielle dans la mesure où celle-ci interviendrait dans la régulation de la température de l'organisme végétal. En effet, la faible conductivité thermique de ses émanations permet d'assurer un taux d'humidité convenable dans les tissus végétaux (83).

En tant que produits du métabolisme secondaire, on rencontre les huiles essentielles dans tous les organes des végétaux: fleur, feuille, tige, racine, fruit, etc.. Elles sont produites dans les cellules isolées ou dans les différents groupes cellulaires tels que poils, poches ou canaux sécréteurs, comme le montre la figure 1.

Aussi avons-nous pratiqué des observations microscopiques sur les feuilles, les tiges et les fleurs des deux espèces d'*Artemisia* concernées par nos travaux, afin de préciser la nature et la localisation de leur structure sécrétrice.

Ces observations microscopiques ont été effectuées sur du matériel végétal frais, en utilisant, selon le cas, respectivement une loupe binoculaire, modèle Zeiss, un microscope photonique,



- 1 et 2: sites exogènes;
- site 1: stockage extracellulaire;
- site 2: stockage intracellulaire;
3: site endogène

Figure 1: Localisation des sites producteurs d'huile essentielle dans les végétaux

modèle Leitz Wetzlar et un microscope électronique à balayage, modèle JSM-T330 Scanning Microscope. Le grossissement des prises de vue est précisé sur chacune des figures.

Sur les photographies des figures 2 et 3, prises, lors des observations à la loupe binoculaire des feuilles et des tiges de deux plantes, nous pouvons observer à la surface, des gouttes d'huile essentielle. Nous remarquons d'autre part, que la tige et la feuille sont recouvertes d'une couche de poils tecteurs (5). Ces poils tecteurs forment une auréole autour de la tige. Ils sont fixés par un pied polycellulaire sur l'épiderme du végétal et se ramifient en deux branches au sommet.

Quant aux figures 4 et 5 relatives aux observations de la feuille et de la fleur d'*Artemisia judaïca* L., sous microscope électronique à balayage, elles montrent une couche de poils tecteurs très dense sur la feuille, alors que sur la fleur, ces poils couvrent uniquement l'involucre.

En observant au microscope photonique, les coupes transversales de feuilles des deux plantes, nous avons remarqué des formations épidermiques situées à la racine des poils tecteurs. Nous les avons prélevées et avons constaté qu'elles sont constituées, comme le montrent les figures 6 et 7, d'un court pied et d'une tête à plusieurs étages superposés de cellules le tout enveloppé d'une membrane. Cette description correspond bien d'ailleurs à celle déjà rapportée par d'autres auteurs (5), concernant les glandes sécrétrices des plantes de la famille des Composées. Ces glandes, appelées poils sécréteurs, produisent l'huile essentielle qui s'accumule sous la membrane ou cuticule. Sous la pression de l'huile, la cuticule apparaît gonflée. Celle-ci peut être détruite sous l'effet de la chaleur, ou mécaniquement.

Enfin, sur la figure 8, en observant le parenchyme cortical de la feuille d'*Artemisia judaïca* L., nous remarquons, sur le fond de la structure cellulaire, des formations irrégulières, dont l'aspect rappelle les gouttes d'huile essentielle. En revanche, le parenchyme cortical de la feuille d'*Artemisia herba-alba* Asso. de la figure 9, ne comporte apparemment pas ce type de formations.

Cet aspect particulier du parenchyme d'*Artemisia judaïca* L. laisse soupçonner la présence de glandes à sécrétion interne, comme celles observées chez *Matricaria camomilla* qui appartient à la même famille (18). Ces glandes sont incrustées entre les cellules épidermiques et déversent l'huile essentielle sous l'épiderme, dans le suc intracellulaire. Ces glandes à sécrétion interne sont particulièrement actives et les végétaux qui en contiennent sont notamment riches en huile essentielle.

Les résultats de cette étude sont intéressants à plus d'un titre. En effet, ils laissent entrevoir une différence entre les deux espèces étudiées, en ce qui concerne la localisation de l'huile essentielle. En outre, la structure sécrétrice d'*Artemisia herba-alba* Asso. semble être exclusivement exogène; en revanche, celle d'*Artemisia judaïca* L. apparaît plus complexe, si l'on tient compte des observations précédentes.

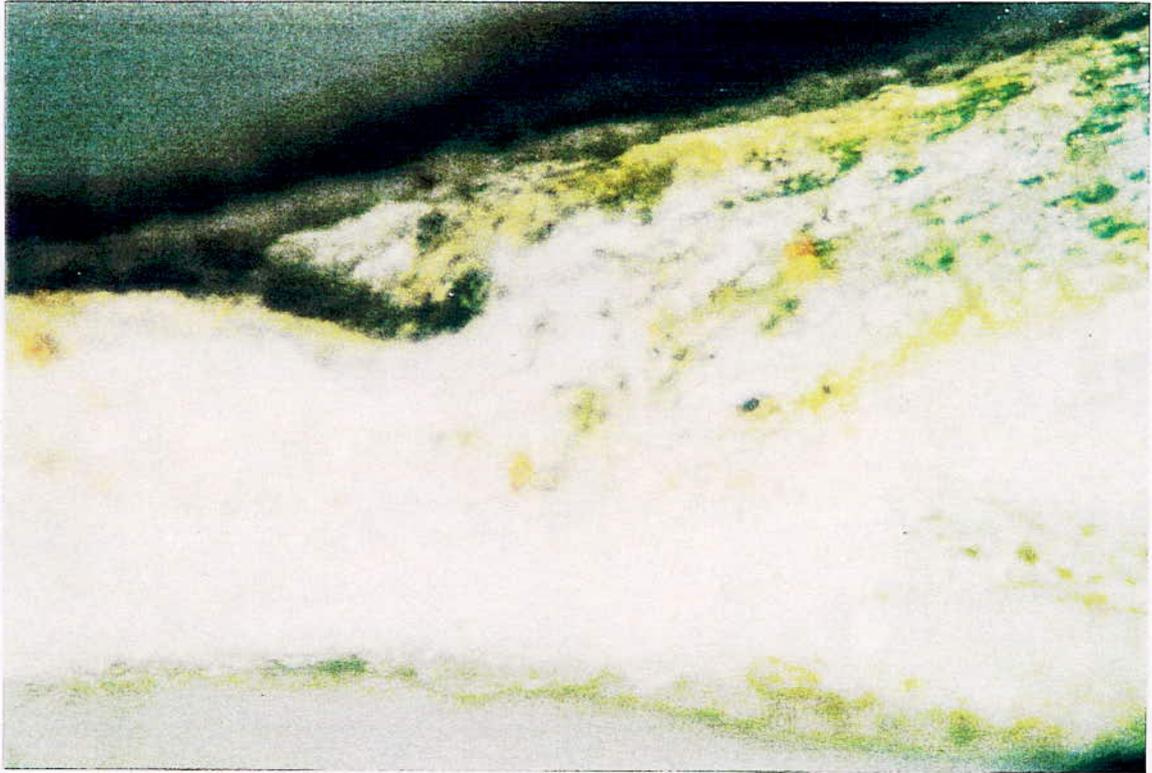


Figure 2: Feuille et tige d'*Artemisia herba-alba* Asso. (Gr: 50 X)

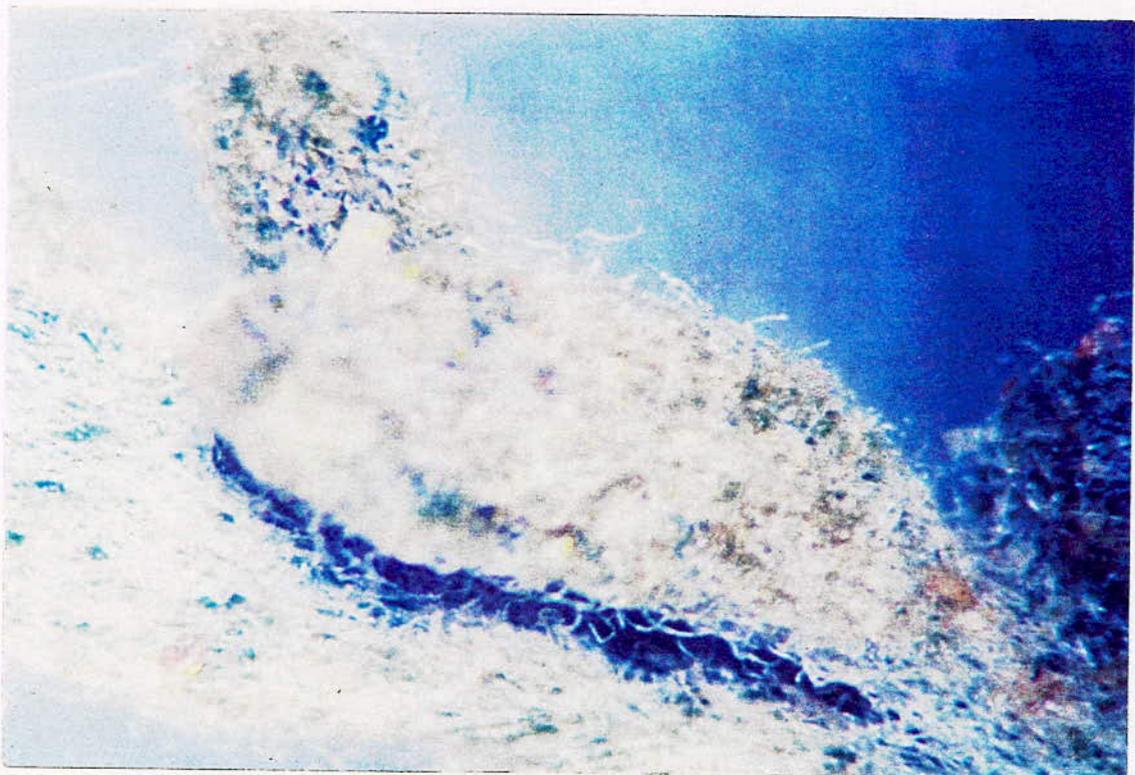


Figure 3: Feuille et tige d'*Artemisia judaica* L. (Gr: 10 X)

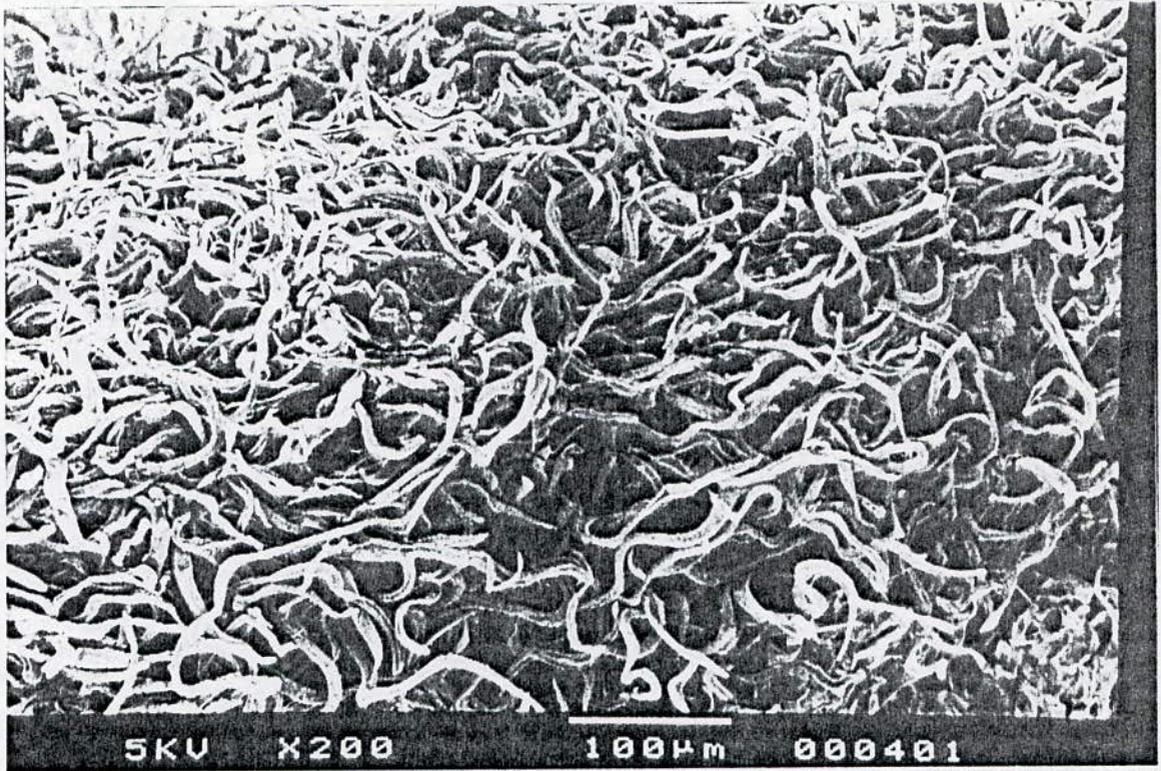


Figure 4: Surface de la feuille d'*Artemisia judaica* L. (Gr: 200X)

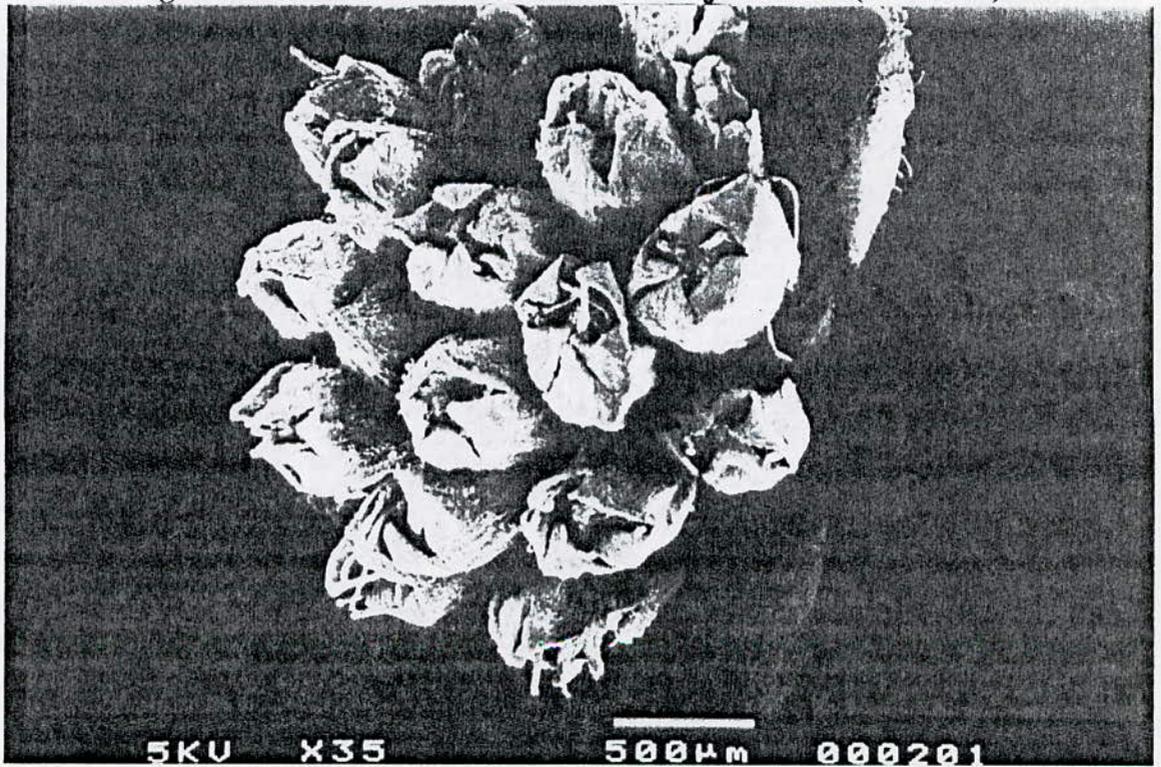


Figure 5: Fleur d'*Artemisia judaica* L. (Gr: 35X)

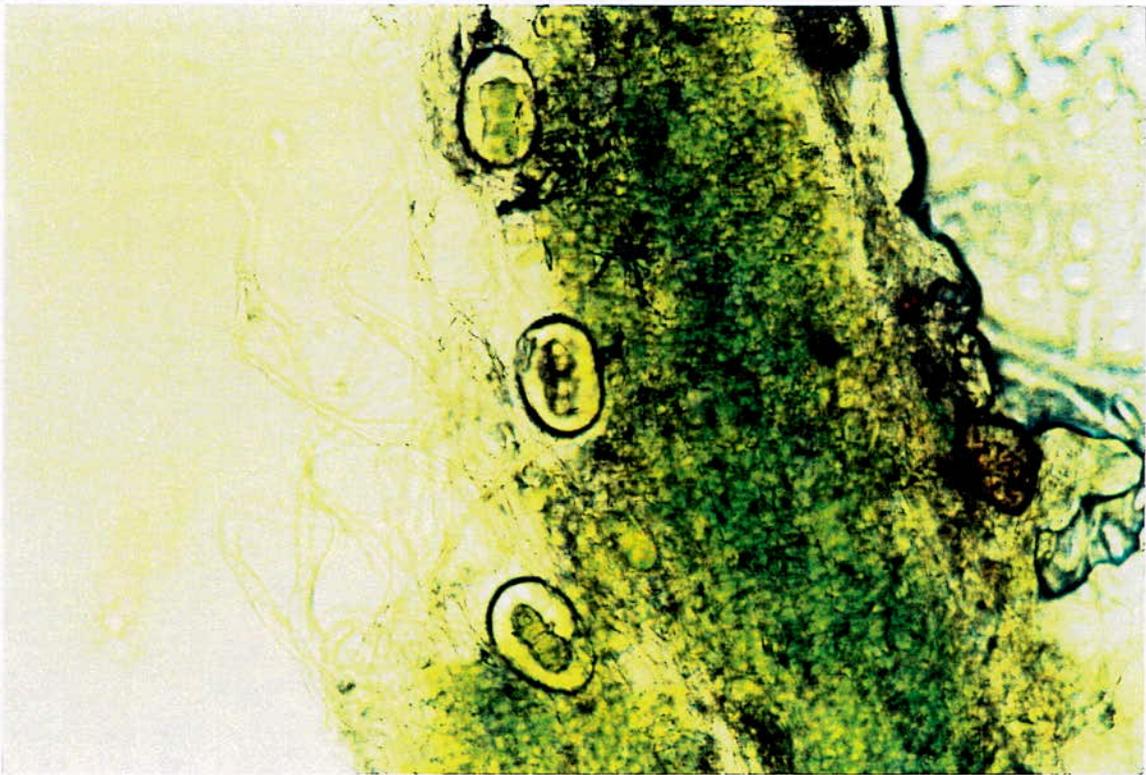


Figure 6: Vue de l'épiderme de la feuille d'*Artemisia herba-alba* Asso. (Gr: 80 X)

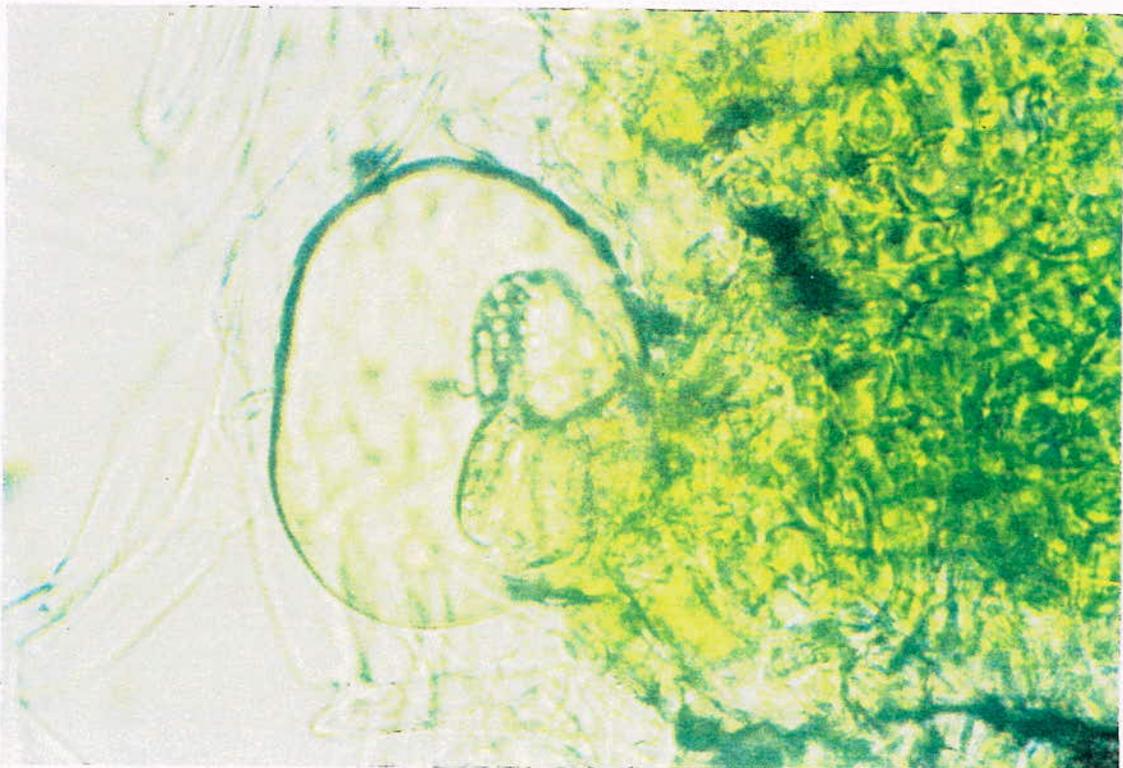


Figure 7: Glande sécrétrice d'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. (Gr: 160X)

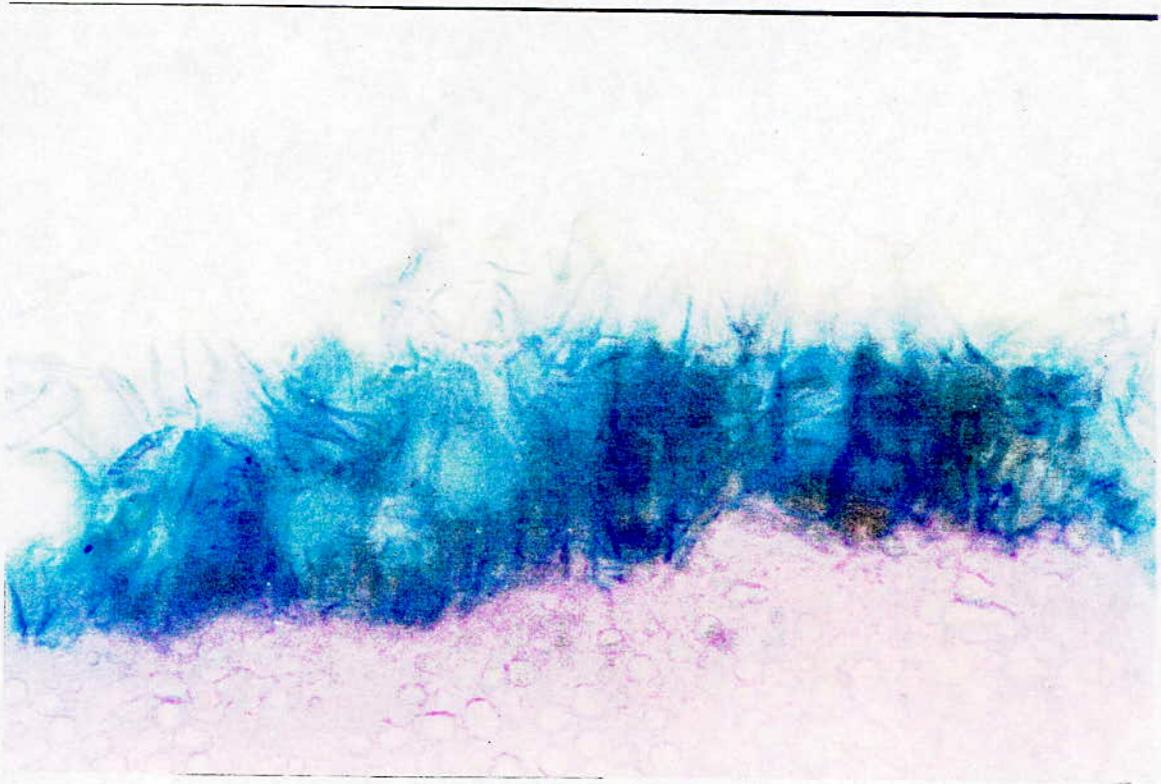


Figure 8: Coupe transversale de la feuille d'*Artemisia judaica* L. (Gr: 80 X)

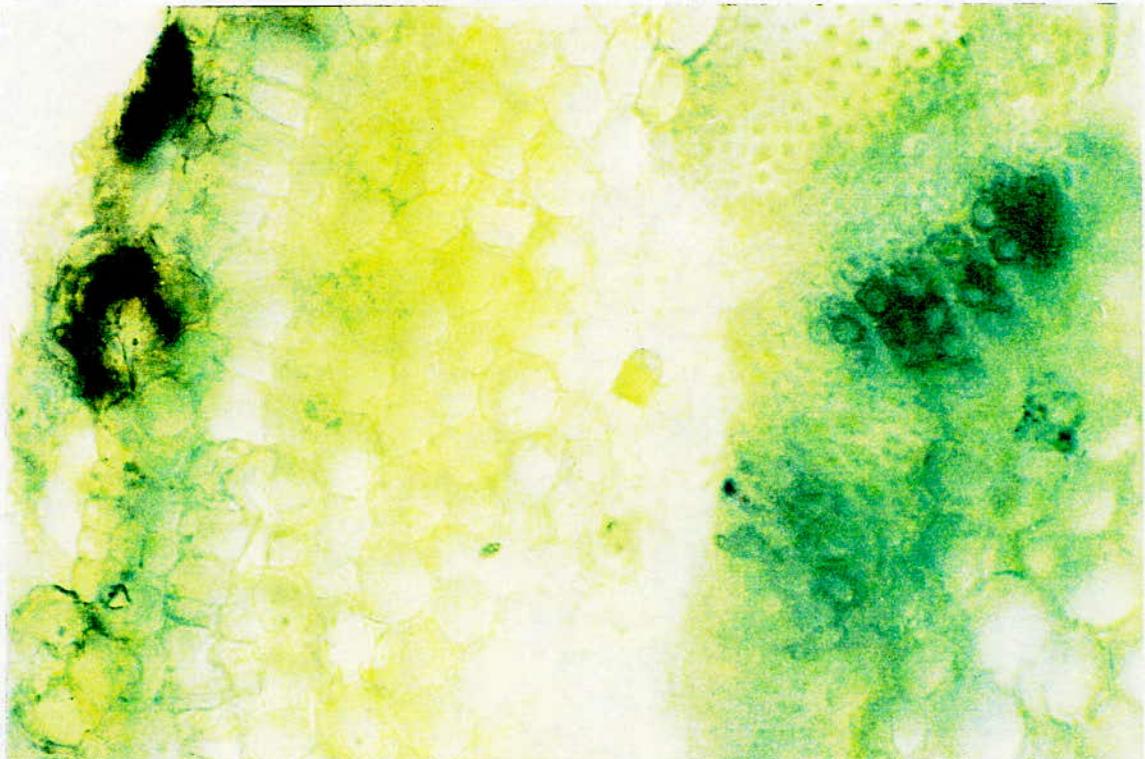
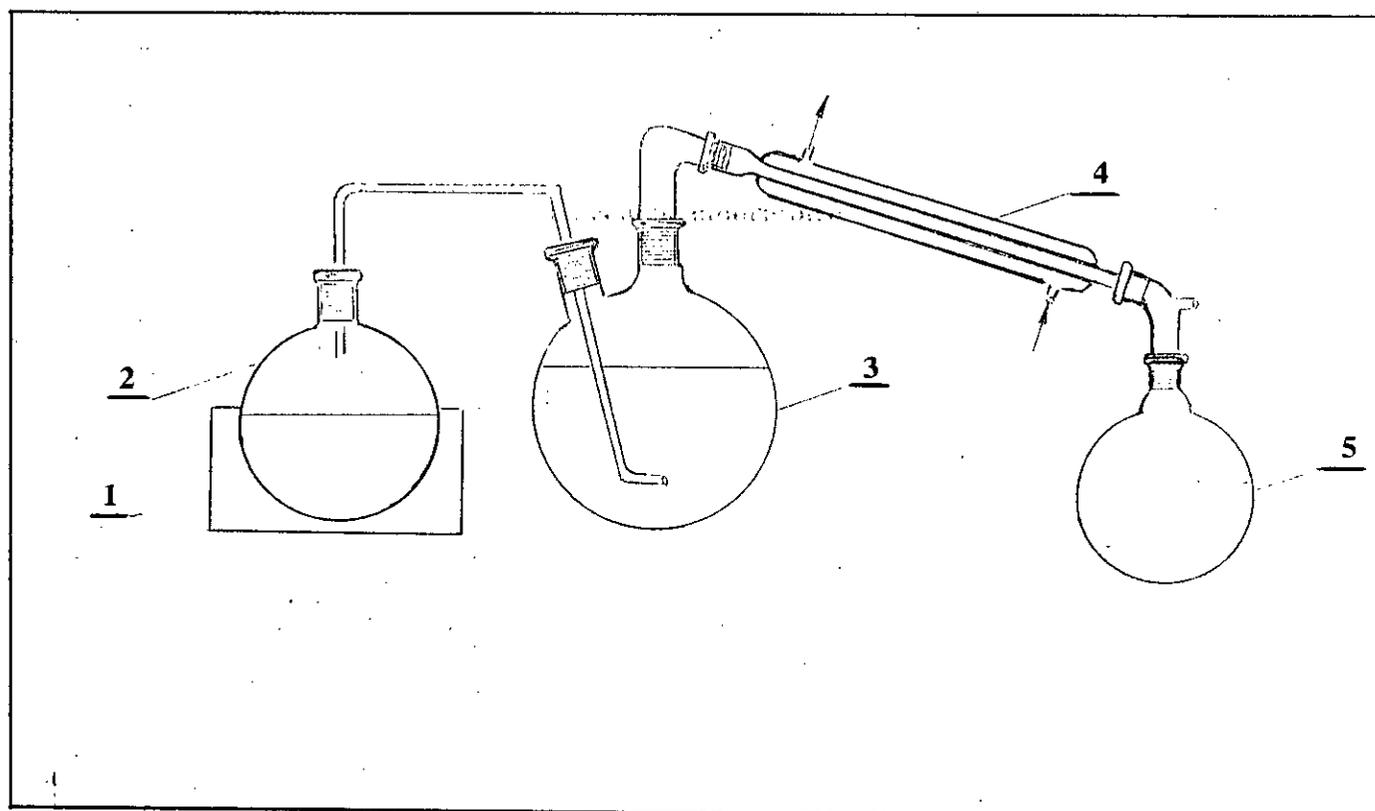


Figure 9: Coupe transversale de la feuille d'*Artemisia herba-alba* Asso. (Gr: 25 X)

III.2. Préparation des échantillons d'huile essentielle des deux espèces d'*Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

La récupération d'échantillons d'huile essentielle par entraînement à la vapeur d'eau a été effectuée à l'échelle laboratoire. Le dispositif expérimental utilisé est schématisé sur la figure 10. Il est constitué d'un ballon à deux cols, d'une capacité de 1 litre, contenant la matière végétale et relié d'une part, à un ballon dans lequel est produite la vapeur d'eau et d'autre part, à un réfrigérant. La matière végétale, constituée des parties aériennes de la plante, est traversée par le flux de vapeur d'eau. Le mélange des vapeurs d'huile essentielle et d'eau est refroidi et condensé dans le réfrigérant, puis recueilli dans un ballon de recette. L'huile essentielle est séparée des eaux de condensation par décantation, après relargage au chlorure de sodium. Les eaux de condensation sont ensuite traitées à l'éther diéthylique et l'huile récupérée est additionnée à la précédente.



1: chauffe ballon 2: ballon générateur de vapeur 3: ballon contenant la matière végétale
4: réfrigérant 5: ballon de recette

Figure 10: Schéma du dispositif expérimental de l'entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle laboratoire

Nous avons ainsi procédé à la récupération d'échantillons d'huile essentielle de plusieurs lots des deux espèces d'*Artemisia*, récoltées dans différentes régions d'Algérie. Le rendement en huile a été estimé par le rapport suivant:

$$R_{HE} = \frac{m_{HE}}{M} \cdot 100 \quad [1]$$

où R_{HE} désigne le rendement en huile, exprimé en %, m_{HE} la masse d'huile essentielle, en grammes et M la masse de la matière végétale, en grammes.

La densité et l'indice de réfraction ont été déterminés par les méthodes normalisées (84). Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau III.1.

Tableau III.1: Rendement et propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., provenant de différentes régions d'Algérie

| Espèce | Région | Rendement R_{HE} % | Densité d_{20}^{20} | Indice de réfraction η_D^{20} |
|-----------------------------------|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------------|
| <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | Aflou (Af) | 0,35 | 0,9442 | 1,4623 |
| | Ain Oussera (AO) | 0,21 | 0,9458 | 1,4680 |
| | Biskra (Bis) | 0,44 | 0,9439 | 1,4615 |
| | Bordj Bou Arréridj (BBA) | 0,15 | 0,9415 | 1,4718 |
| | Djelfa (Dj) | 0,79 | 0,9446 | 1,4714 |
| | Ghardaia (Gh) | 1,04 | 0,9528 | 1,4580 |
| | Laghouat (Lgh) | 0,75 | 0,9533 | 1,4603 |
| | Saïda (Sd) | 0,52 | 0,9447 | 1,4717 |
| | Tébessa (Tb) | 0,48 | 0,9441 | 1,4626 |
| <i>Artemisia judaïca</i> L. | In Aménas (InA) | 1,17 | 0,9604 | 1,4806 |
| | Tamanrasset (Tam) | 1,42 | 0,9609 | 1,4846 |

L'examen de ce tableau montre que, de manière générale, les rendements en huile varient considérablement d'un peuplement à un autre. Ils sont nettement plus élevés pour *Artemisia judaïca* L. Par ailleurs, l'indice de réfraction des huiles est proche des valeurs de référence à savoir: 1,4555 à 1,4758 pour *Artemisia herba-alba* Asso. (41) et 1,4680 pour *Artemisia judaïca* L. (69). En revanche, la densité de nos échantillons est supérieure aux valeurs de référence qui sont de 0,8432 à

0,9170 pour *Artemisia herba-alba* Asso. et de 0,9121 pour *Artemisia judaïca* L. D'un point de vue organoleptique, nous avons constaté que tous les échantillons restituent l'odeur caractéristique de la plante, dont ils sont issus. La couleur des échantillons d'huile d'*Artemisia herba-alba* Asso. est jaune clair et celle d'*Artemisia judaïca* L. est jaune foncé.

III.3. Etude analytique des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et *Artemisia judaïca* L.

Depuis l'avènement des techniques de séparation et d'analyse instrumentale très performantes: la chromatographie en phase gazeuse CPG et la chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse CG-SM, les huiles essentielles livrent peu à peu leurs secrets. Nous savons maintenant que ces mélanges fort complexes sont constitués de composés appartenant le plus souvent à la classe des terpènes: hydrocarbures, aldéhydes, cétones, alcools, éthers, esters et acides. Les séries aliphatique et aromatique y sont également représentées.

Les premières études menées sur les huiles essentielles avaient pour but l'identification des constituants majoritaires. Actuellement, les études s'orientent de plus en plus vers la recherche des constituants mineurs, mais olfactivement intéressants ou présentant une activité pharmacologique particulière (81,85).

La composition chimique des huiles essentielles varie au sein d'un même genre, mais aussi d'une espèce à une autre. Les conditions climatologiques et géologiques: pluviométrie, hygrométrie, température, altitude, ensoleillement et nature du sol, affectent souvent la biosynthèse des produits volatils. Par conséquent, différentes races chimiques ou chémotypes ont été définis sur la base de la composition chimique de l'huile essentielle (82).

Il en est de même des variations ontogéniques (période de récolte ou âge du végétal) qui affectent aussi la composition de l'huile essentielle. Celle-ci subit des modifications d'ordre quantitatif et qualitatif au cours de la croissance du végétal (81).

Aussi, dans ce qui suit, nous présenterons les résultats de l'étude de la composition chimique des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., menée par CPG et CG-SM et mettant en évidence les variations plus ou moins importantes observées, en fonction du lieu et de la période de végétation de ces deux plantes.

III.3.1. Conditions opératoires d'analyse des huiles essentielles des deux *Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L. par CPG et CG-SM

Les analyses qualitatives et quantitatives ont été effectuées à l'aide d'un chromatographe Pye Unicam, série 304 Philips, équipé d'un détecteur à ionisation de flamme et relié à un intégrateur-enregistreur PU 4840 Computing Integrator Philips. Deux colonnes capillaires ont été utilisées: l'une de polyéthylène glycol 20M (PEG 20M), l'autre de polydiméthylsiloxane (OV 101).

Les coefficients de réponse du détecteur à ionisation de flamme ont été supposés égaux pour tous les composés.

L'analyse qualitative a été complétée par CG-SM en utilisant un instrument Hewlett Packard, composé d'un chromatographe HP 5890, série II, d'un détecteur de masse HP 5971A et d'un ordinateur HP 9153, série 300.

L'identification des divers constituants a été menée en comparant successivement leurs grandeurs de rétention et leurs spectres de masse à ceux d'étalons authentiques et ceux cités dans la littérature (86-111).

Pour certains échantillons d'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et plus précisément ceux de Bordj Bou Arréridj, de Biskra et de Ghardaïa nous avons procédé à une séparation chromatographique préalable sur colonne de gel de silice G60 Merck. L'élution a été effectuée au n-pentane, puis en utilisant des mélanges n-pentane-éther diéthylique, de plus en plus riches en éther. Les fractions récupérées ont été analysées par CG-SM.

Quelques constituants de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. de Tamanrasset ont été isolés par chromatographie sur couche mince de gel de silice G_{F254} Merck. L'élution a été effectuée avec un mélange de n-hexane-acétate d'éthyle pris dans le rapport volumique 9:1. L'observation des plaques sous lumière ultra-violette de longueur d'onde 254 nm a permis de localiser des taches. Ces dernières ont été prélevées, puis éluées à l'éther diéthylique et enfin analysés par CPG.

Les conditions opératoires générales d'analyse par CPG et par CG-SM sont regroupées dans le tableau III.2 suivant.

Tableau III.2: Conditions opératoires générales d'analyse de l'huile essentielle par CPG et CG-SM

| Colonne | CPG | | CG-SM |
|--------------------------------------|----------------------------------|---|----------------------------------|
| | PEG 20M Silice fondue | OV 101 Silice fondue gainée d'aluminium | PEG 20M Silice fondue |
| * Phase stationnaire | | | |
| * Nature | | | |
| * Longueur, m | 25 | 25 | 25 |
| * Diamètre, mm | | | |
| intérieur. | 0,32 | 0,22 | 0,22 |
| extérieur | 0,45 | 0,33 | 0,33 |
| * Epaisseur du film, µm | 0,21 | 0,25 | 0,25 |
| Température, °C | | | |
| * Injecteur | 200 | 200 | 200 |
| * Détecteur | | | |
| FID | 300 | 300 | - |
| SM (IE 70 eV) | - | - | 250 |
| * Colonne | | | |
| <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | 70-200 à 4°C/mn | 50 (2 mn), 50-220 à 3°C/mn | 60 (3 mn), 60-200 à 3°C/mn |
| <i>Artemisia judaïca</i> L. | 60 (3 mn), 60-200 à 4°C/mn | 60 (3 mn), 60-250 à 3°C/mn | 60 (3 mn), 60-200 à 3°C/mn |
| Gaz vecteur | Azote | Azote | Helium |
| * Pression d'entrée, psi | 7 | 15 | 12 |
| * Débit, ml/mn | 2 | 2 | 2 |
| Volume injecté, µl | 0,1 | 0,1 | Fuite 1/50 |

III.3.2. Composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., provenant de différentes régions d'Algérie

L'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. récupérée de divers lots de plante récoltés en période de floraison (Décembre 1988), dans différentes régions d'Algérie, neuf au total, a été analysée par CPG. En outre, les huiles récupérées des lots en provenance de Bordj Bou Arréridj (BBA), Biskra (Bis), Djelfa (Dj), Ghardaïa (Gh), Ain Ousséra (AO) et Saïda (Sd) ont subi des analyses par CG-SM.

Dans le tableau III.3 ci-dessous, nous présentons l'ensemble des composés identifiés dans les neuf échantillons étudiés.

Tableau III.3: Composés identifiés dans l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. de différentes régions d'Algérie

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e | Origine |
|--|-------------------|--------------------------|---------|
| Hydrocarbures mono- et sesquiterpéniques et aromatiques | | | |
| α -pinène | 136 | 93,91,77 | CC |
| camphène | 136 | 93,121,79 | CC |
| β -pinène | 136 | 93,67,41 | CC |
| sabinène | 136 | 93,77,91 | BBA,Dj |
| terpinolène | 136 | 93,121,136,79 | BBA |
| α -terpinène | 136 | 93,121,136,77 | CC |
| p-cymène | 134 | 119,134,91 | CC |
| triméthylbenzène | 120 | 105,120,119 | CC |
| α -élémane | 204 | 121,93,161 | BBA |
| α -cubébène | 204 | 161,119,105 | BBA |
| δ -cadinène | 204 | 161,105,119 | CC |
| β -caryophyllène | 204 | 69,41,133 | BBA |
| α -guaïène | 204 | 161,204,134 | Dj, Sd |
| β -bourbonène | 204 | 81,80,123,161 | AO |
| CC: constituant commun à l'ensemble des échantillons | | | |

Tableau III.3 (suite)

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e | Origine |
|---------------------------------|-------------------|--------------------------|-----------------|
| Alcools, phénols, éthers | | | |
| α -terpinéol | 154 | 59,93,136,121 | CC |
| terpinèn-4-ol | 154 | 71,93,111 | CC |
| trans-pino carvéol | 152 | 92,91,70 | Sd, BBA, Dj |
| chrysanthénol | 152 | 81,109,91 | CC |
| thuyanol | 154 | 93,43,121 | CC |
| bornéol | 154 | 95,110,41 | CC |
| cis-verbénol* | 154 | 94,109,91 | Sd, Dj |
| trans-verbénol* | 154 | 109,91,119,94 | Sd, Dj |
| sabinol | 152 | 92,91,81 | Sd |
| p-cyménol | 150 | 135,150,107 | CC |
| santolina alcool | 154 | 59,81,96 | Dj, Gh, Sd, Bis |
| lyratol | 152 | 82,67,71,41 | Dj,Sd |
| β -eudesmol* | 222 | 59,149,164 | BBA |
| spathuléol* | 220 | 43,41,91,205 | CC |
| thymol | 150 | 135,150,91 | Gh |
| eugénol | 164 | 164,141,104 | Dj |
| cinéol-1,8 | 154 | 43,93,69 | CC |
| Dérivés carbonylés | | | |
| α -thuyone | 152 | 81,41,67,110 | CC |
| β -thuyone | 152 | 81,41,67,110 | CC |
| chrysanthénone | 150 | 107,91,150 | CC |
| camphre | 152 | 95,81,109,152 | CC |
| pipéritone | 152 | 82,110,41 | CC |

*composé non encore signalé dans l'huile essentielle de cette espèce

Tableau III.3 (suite)

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e | Origine |
|---|-------------------|--------------------------|------------------------------|
| pipériténone | 150 | 150,82,107 | BBA, Dj |
| verbénone | 150 | 107,135,150 | BBA |
| carvone | 150 | 82,135,150,54 | CC |
| cumin aldéhyde | 148 | 148,133,105 | CC |
| arbusculone* | 154 | 111,43,55 | Sd |
| davanone | 236 | 111,93,69 | Gh, Sd |
| Esters | | | |
| acétate de terpényle | 196 | 43,121,136,93 | CC |
| acétate de terpinén-4-yle | 196 | 43,71,111,93 | CC |
| acétate de chrysanthényle | 196 | 43,119,109,91 | CC |
| acétate de bornyle | 196 | 43,95,93,121 | CC |
| acétate de santonyl | 196 | 43,95,59,138 | Lgh, Bis, Dj |
| propionate de chrysanthényle* | 208 | 57,85,119,134 | BBA, Sd, Dj |
| butyrate de chrysanthényle* | 222 | 43,71,91,119 | Sd, BBA, Dj |
| iso-butyrate de chrysanthényle* | 222 | 43,71,91,134 | Sd, Dj, Bis, BBA, Lgh |
| tiglate de chrysanthényle* | 234 | 83,55,119,134 | CC |
| cinnamate de méthyle | 162 | 131,103,162 | Bis |
| Z et E cinnamate d'éthyle | 176 | 131,103,176 | Gh |
| Acides et lactones | | | |
| acide laurique* | 200 | 73,87,143 | AO |
| γ-décalactone* | 170 | 85,41,56,109 | Dj, BBA, Lgh |
| téréolactone* | 112 | 97,69,112 | Gh |
| CC: constituant commun à l'ensemble des échantillons | | | |
| *composé non encore signalé dans l'huile essentielle de cette espèce | | | |

Sur le plan qualitatif, nous relevons la prédominance et la diversité des monoterpènes bicycliques et de leurs dérivés oxygénés, appartenant aux groupes du:

- pinane: α -pinène, β -pinène, trans-pinocarvéol, cis-verbénol, trans-verbénol, verbénone, chrysanthénone, chrysanthénol et ses esters: acétate, propionate, butyrate, isobutyrate et tiglate;

- camphane: camphène, camphre, bornéol, acétate de bornyle;
- thuyane: sabinène, sabinol, α -thuyone, β -thuyone, cis-thuyanol et trans-thuyanol.

Les terpènes monocycliques sont représentés par l' α -terpinène, le terpinolène, l' α -terpinéol, le terpinèn-4-ol et leurs acétates respectifs, le cinéol-1,8, la pipéritone, la pipériténone et la carvone.

Les sesquiterpènes et leurs dérivés sont relativement peu abondants. Nous avons pu identifier l' α -copaène, le β -caryophyllène, le δ -cadinène, l' α -guaïène, le β -bourbonène, le β -eudesmol, le spathulénol et la davanone.

Les hydrocarbures aromatiques et leurs dérivés sont représentés par le p-cymène, le triméthylbenzène, le thymol, l'eugénol, le cumin aldéhyde, le Z-cinnamate d'éthyle et le E-cinnamate d'éthyle.

Dans les huiles essentielles en provenance de Biskra, Djelfa, Laghouat, Saïda et Ghardaïa, nous avons relevé la présence de dérivés de monoterpènes irréguliers, dont la structure ne correspond pas à l'enchaînement isoprénique. Il s'agit du santolina alcool et de son acétate, du lyratol et de l'arbusculoné.

Tous ces résultats appellent un certain nombre de remarques. En effet,

- dans tous les échantillons on retrouve les constituants caractéristiques de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., déjà identifiés dans les huiles en provenance du Maroc et du Moyen Orient. Parmi les composés identifiés dans nos échantillons, dix, repérés par un astérisque, n'ont jamais été signalés dans l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso.

- tous les échantillons d'huile contiennent de la chrysanthénone, cétone monoterpénique identifiée pour la première fois, dans l'huile du genre *Artemisia* en 1981, par Hurabielle et coll.(38);

- certains de nos échantillons contiennent à l'état de traces des dérivés de terpènes irréguliers.

La présence systématique de chrysanthénone peut être considérée, à notre avis, comme une particularité de l'huile essentielle des peuplements algériens.

La biogénèse de ce composé a fait l'objet de nombreuses hypothèses. Parmi elles, nous évoquerons celle, émise par Greger (112), qui fait état de l'existence d'un précurseur commun de la chrysanthénone et des terpènes irréguliers: l'acide chrysanthémique. Ce dernier est lui-même formé par union particulière de deux unités isopréniques de pyrophosphate de diméthyl-allyle. Dans ces conditions, l'acide chrysanthémique conduit:

- au groupe artémisyle, avec l'artémisia cétone, l'yomogi alcool et l'iso-artémisia cétone. Ces composés n'ont pas été décelés dans nos échantillons, mais ils ont été repérés par Segal et coll. dans l'huile d'un peuplement du Moyen Orient (40);

- au groupe santolinyle, avec le santolina alcool et le lyratol, présents, dans certains de nos échantillons à l'état de traces;

- au groupe lavandulyle, auquel appartient la chrysanthénone.

Cette hypothèse de formation de la chrysanthénone à partir de l'acide chrysanthémique paraît séduisante. Décrite à l'état naturel dans deux huiles essentielles du genre *Chrysanthémum*, appartenant à la tribu des Anthémidées, elle s'inscrit bien dans le cadre de la biogénèse particulière

de certains monoterpènes de cette tribu. Cependant, cette hypothèse est fortement controversée. D'une part, Epstein et Poulter (113) estiment que le groupe lavandulyle, bien qu'ayant le même départ biogénétique, ne passerait pas par l'intermédiaire de l'acide chrysanthémique. D'autre part, selon Newman (114), la chrysanthénone serait formée à partir de l' α -pinène par l'intermédiaire de la verbénone.

Notons, à ce sujet, que dans l'huile essentielle de la plante de Bordj Bou Arréridj, apparemment exempte de monoterpènes irréguliers, nous avons rapporté la présence simultanée d' α -pinène, de verbénone et de chrysanthénone. De ce fait, il nous est difficile d'opter pour l'une ou l'autre des hypothèses avancées. Toutefois, nos résultats corroborent les conclusions de Hurabielle et coll. (38), dans le sens, où la chrysanthénone pourrait être retenue comme critère chimio-taxonomique de la tribu des Anthémidées.

En dépit des nombreux constituants communs, tous les échantillons d'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. analysés, montrent, sur le plan quantitatif, des différences appréciables. En effet, l'allure de chromatogrammes des figures 11 à 14 témoigne de leur composition différente, que l'on doit attribuer à l'influence des conditions environnantes dans lesquelles évolue la plante.

Le tableau III.4 regroupe à cet effet, les teneurs des principaux constituants majoritaires des huiles analysées, provenant des différentes régions d'Algérie.

Tableau III.4: Constituants majoritaires de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., provenant de différentes régions d'Algérie

| Région | Composés majoritaires (%)* |
|--------------------------|--|
| Aflou (Af) | α -thuyone (23,5); camphre (15,3); chrysanthénone (16,2) |
| Ain Oussera (AO) | tiglate de chrysanthényle (33,6); spathuléol (21,3) |
| Biskra (Bis) | α -thuyone (31,5); chrysanthénone (21,3); camphre (10,4) |
| Bordj Bou Arréridj (BBA) | α -thuyone (25,6); chrysanthénone (16,4); β -thuyone (15,6); camphre (14,2) |
| Djelfa (Dj) | camphre (31,1); chrysanthénone (16,4) |
| Ghardaïa (Gh) | α -thuyone (66,7); β -thuyone (22,3) |
| Laghouat (Lgh) | α -thuyone (47,1); camphre (17,3); β -thuyone (10,6) |
| Saïda (Sd) | chrysanthénone (23,9); camphre (15,2) |
| Tébessa (Tb) | chrysanthénone (25,2); camphre (19,2); α -thuyone (17,9) |

* teneur relative, déterminée par CPG sur colonne PEG 20M

L'examen de ce tableau montre que les cétones monoterpéniques: camphre, chrysanthénone, α -thuyone et β -thuyone, prédominent dans l'ensemble des échantillons, excepté celui d'Ain Oussera. Leur proportion varie d'un échantillon à un autre, de sorte que l'on peut répartir les huiles étudiées en quatre catégories, caractérisées par leurs composés majeurs:

- l'huile de Ghardaïa peut être classée dans le type à α -thuyone, décrit par Benjilali et coll. (33);
- la composition moyenne des échantillons en provenance d'Aflou, Laghouat, Biskra et Bordj Bou Arréridj permet de les situer à mi-chemin entre les types à α -thuyone-camphre et à chrysanthénone, rapportés respectivement par Benjilali et coll. (33) et Hurabielle et coll. (38);
- la chrysanthénone et le camphre prédominent dans les huiles de Djelfa, Saïda et Tébessa;
- la composition de l'huile essentielle de la plante d'Ain Oussera est très différente des autres et tout à fait inhabituelle, car jusqu'à présent, la présence de tiglate de chrysanthényle et du spathuléol n'a pas été signalée dans l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso.

Nous avons présenté les chromatogrammes types de ces quatre catégories auxquelles appartiennent les peuplements étudiés:

- type à α -thuyone (figure 11);
- type à α -thuyone-camphre-chrysanthénone (figure 12);
- type à chrysanthénone-camphre (figure 13);
- type à tiglate de chrysanthényle-spathuléol (figure 14).

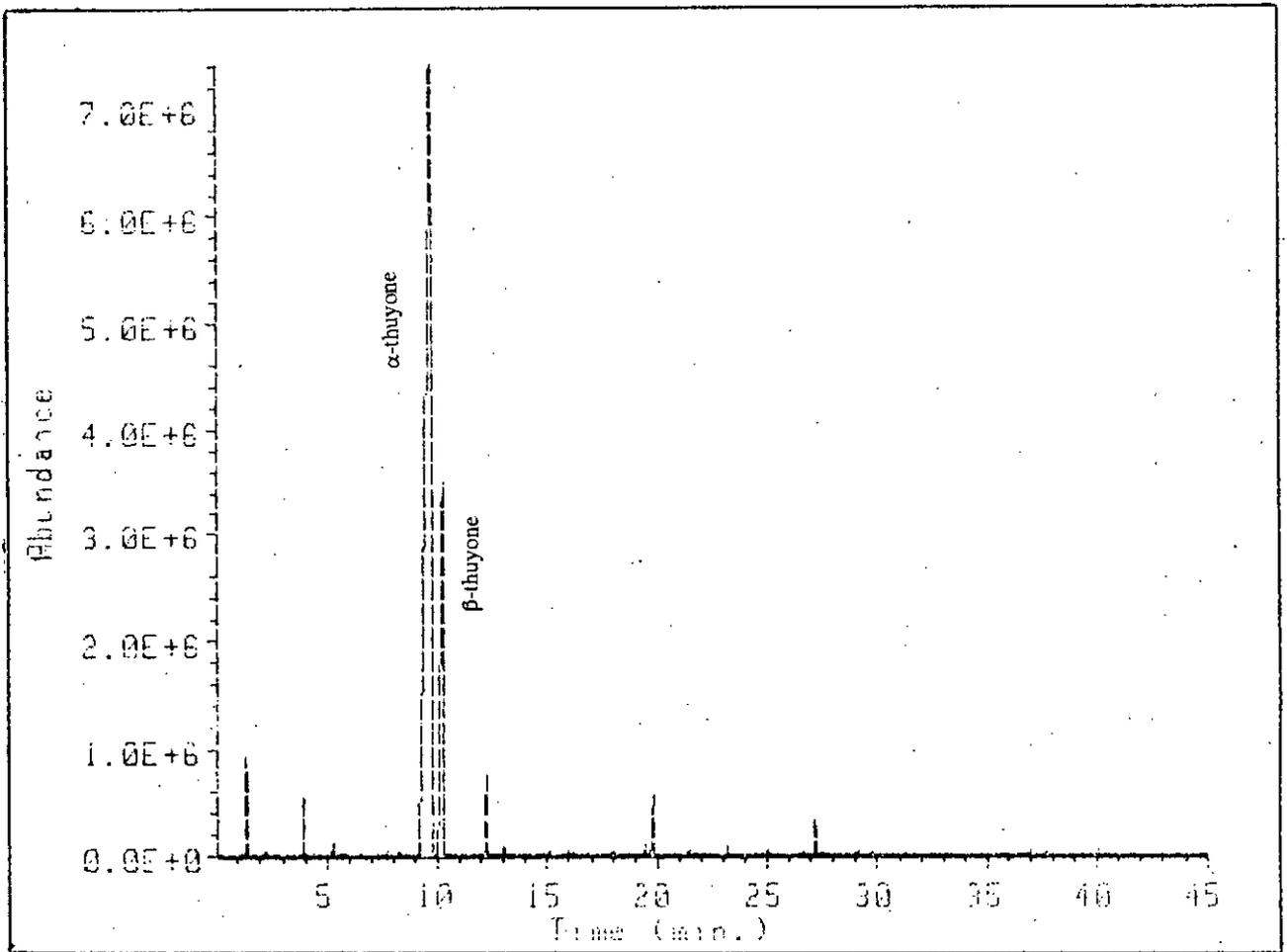


Figure 11: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. de la région de Ghardaïa. Type à α -thuyone

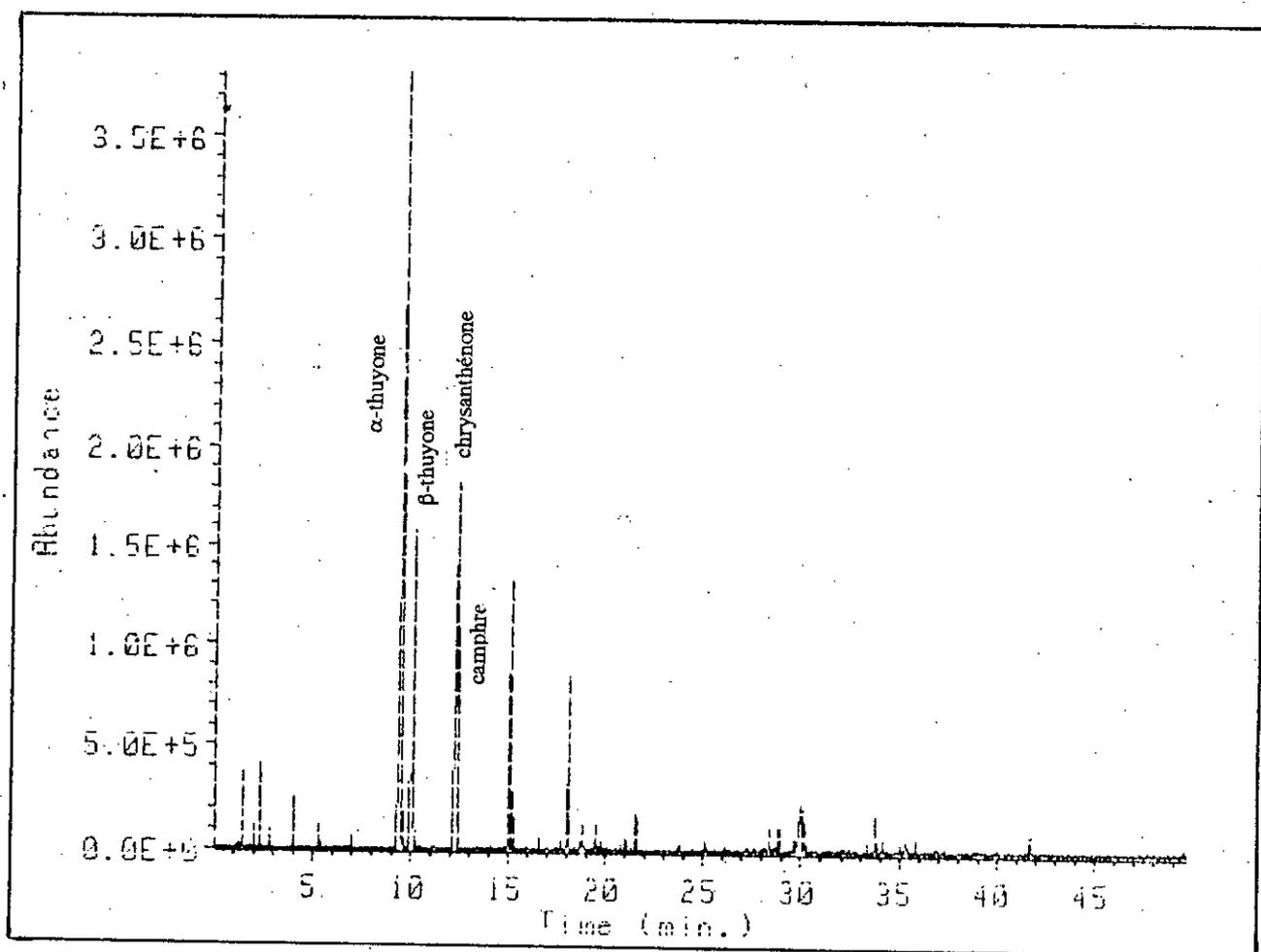


Figure 12: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. de la région de Biskra. Type à α -thuyone-camphre-chrysanthénone

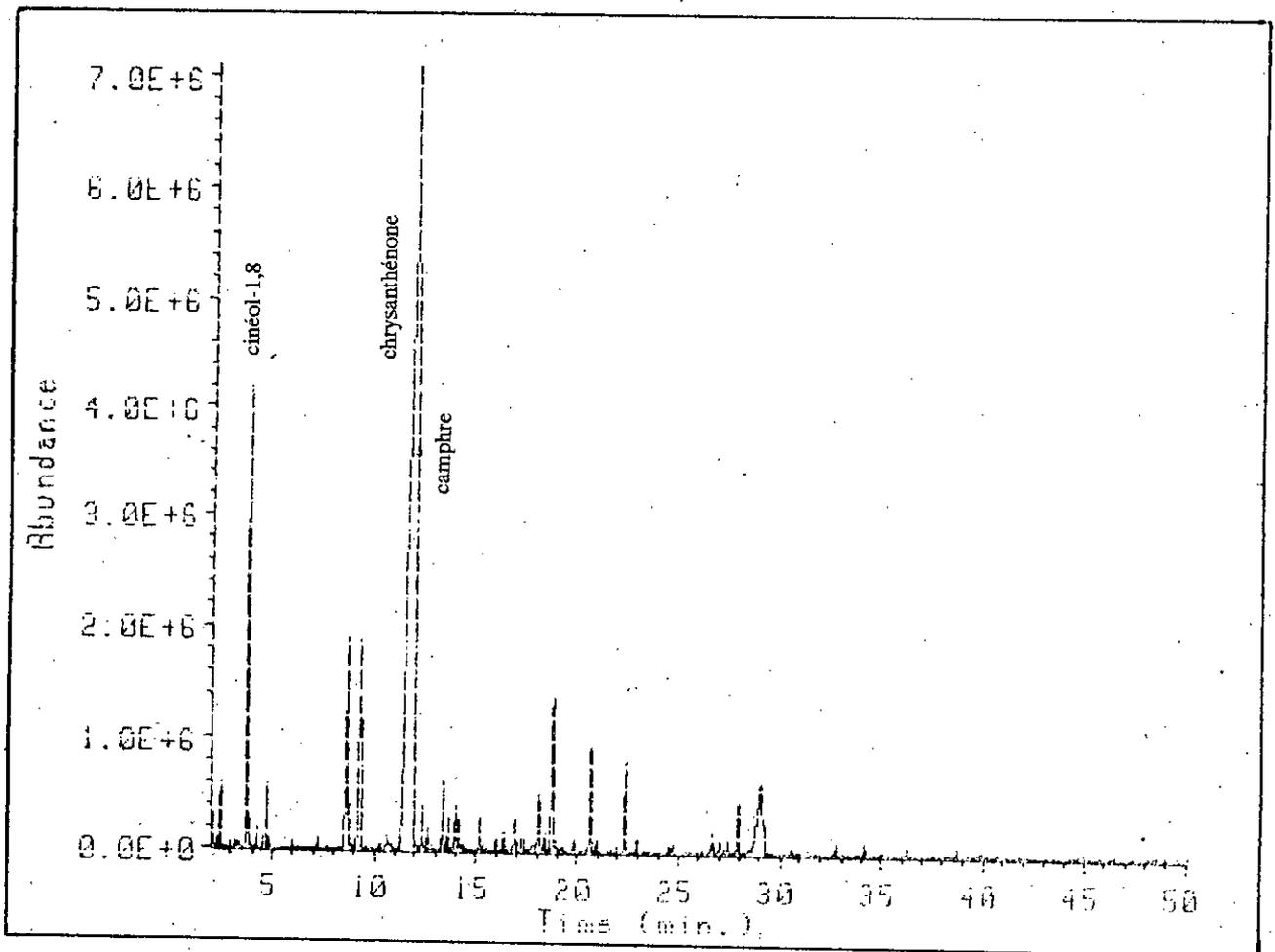


Figure 13: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. de la région de Djelfa. Type à chrysanthénone-camphre

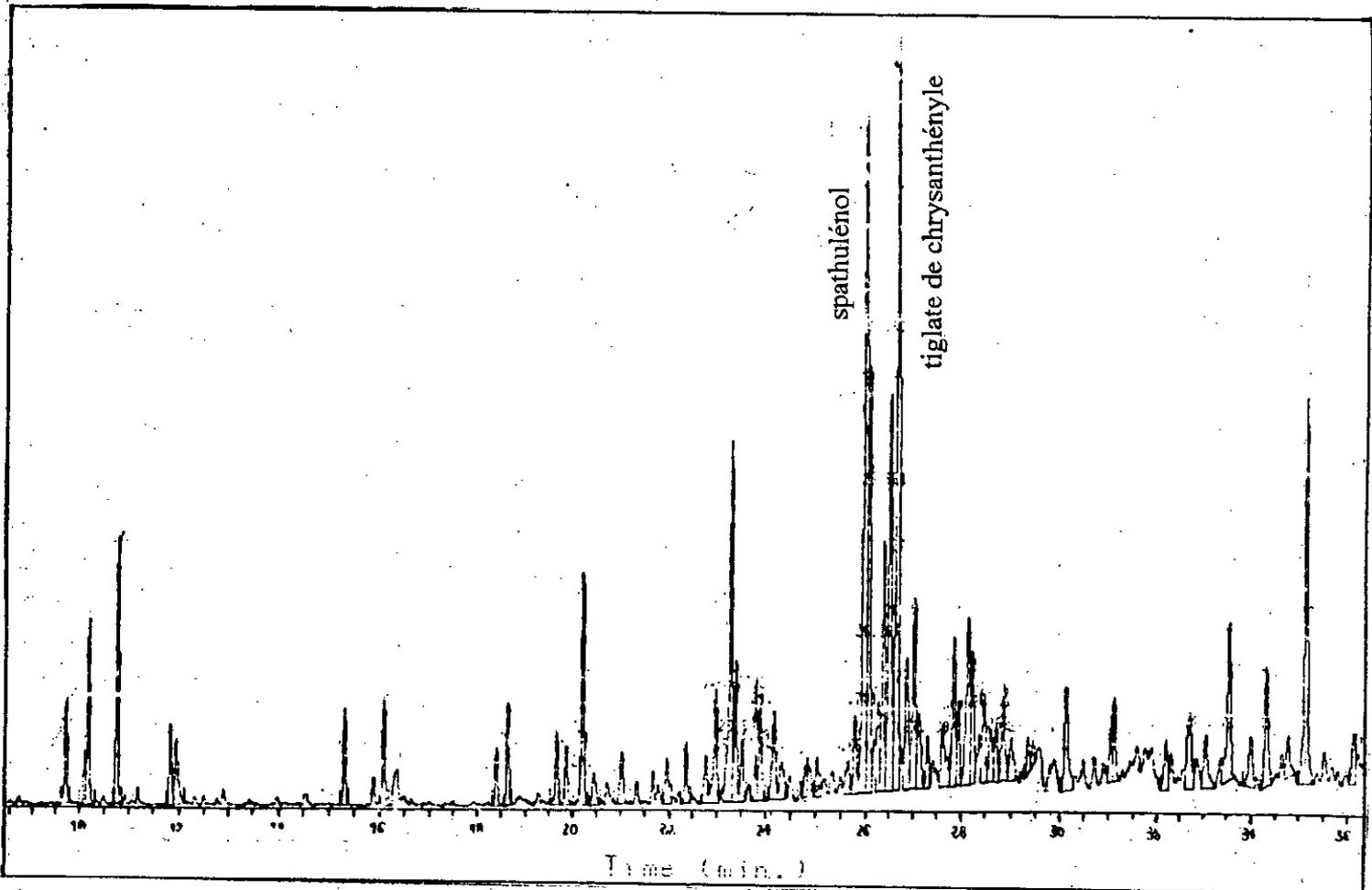


Figure 14: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. de la région d'Ain Oussera. Type à tiglate de chrysanthényle-spathulénol

Les résultats de cette étude confirment donc l'hypothèse avancée par Benjilali et coll., qui font état de plusieurs comportements d'*Artemisia herba-alba* Asso., dictés par le milieu écologique.

En effet, les peuplements que nous avons étudiés évoluent dans des conditions assez différentes. A titre d'exemple, citons le cas des moyennes de températures relevées dans quelques unes des régions de croissance d'*Artemisia herba-alba* Asso.: Djelfa: 13,1°C; Laghouat: 17,2°C; Ghardaïa: 21,0°C. Quant à la pluviométrie annuelle, celle-ci varie de 400 à 1200 mm dans les Hauts plateaux et elle est inférieure à 100 mm dans l'Atlas Saharien (82).

Il semble que les températures plus clémentes et la pluviométrie plus élevée, relevées dans les Hauts plateaux, favorisent la formation d'une huile moins riche en thuyones. A notre avis, la composition inhabituelle de l'huile essentielle d'Aïn Oussera est à attribuer à un microclimat particulier, caractéristique de la nappe dans laquelle évolue la plante.

III.3.3. Composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L., provenant de deux régions d'Algérie

Divers lots d'*Artemisia judaïca* L. fleurie, en provenance de Tamanrasset et d'In Aménas, ont été étudiés. Leur huile essentielle a été récupérée par entraînement à la vapeur d'eau et analysée par CPG. En outre, l'analyse qualitative des échantillons de Tamanrasset a été complétée par CG-SM. Aussi, dans le tableau III.5 ci-dessous, sont présentés les composés identifiés dans cette huile.

Tableau III.5: Composés identifiés dans l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. de la région de Tamanrasset

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e |
|--|-------------------|--------------------------|
| Hydrocarbures mono-, sesquiterpéniques et aromatiques | | |
| α-pinène | 136 | 93,91,77 |
| camphène | 136 | 93,121,79 |
| β-pinène | 136 | 93,67,41 |
| limonène | 136 | 68,93,121,136 |
| myrcène | 136 | 41,93,69 |
| terpinolène | 136 | 93,121,136,79 |
| α-terpinène | 136 | 93,121,136,77 |
| α-phellandrène | 136 | 93,91,77 |
| p-cymène | 134 | 119,134,91 |
| mésitilène* | 120 | 105,120,119 |

Tableau III.5 (suite)

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e |
|--|-------------------|--------------------------|
| triméthyl-1,2,3-benzène* | 120 | 105,120,103 |
| γ -élémente* | 204 | 121,93,161 |
| α -copaène | 204 | 161,119,105 |
| δ -cadinène | 204 | 161,105,119 |
| D-germacrène | 204 | 161,105,119 |
| Alcools, phénols, éthers | | |
| α -terpinéol | 154 | 59,93,136,121 |
| terpinène-4-ol | 154 | 71,93,111 |
| chrysanthénol | 152 | 81,109,91 |
| p-cyménol | 150 | 135,150,107 |
| santolina alcool | 154 | 59,81,96 |
| β -eudesmol* | 222 | 59,149,164 |
| spathuléol* | 220 | 43,41,91,205 |
| thymol | 150 | 135,150,91 |
| éthényl-dihydro-5-méthyl-5-furanone* | 126 | 111,67,55,43 |
| triméthyl-3,7,9-cis-oxydo-8,11-dodécatetraène-1,5,7,9-ol-3 | 234 | 163,43,121 |
| Dérivés carbonylés | | |
| pipéritone | 152 | 82,110,41 |
| chrysanthénone | 150 | 107,91,150 |
| camphre | 152 | 95,81,109,152 |
| verbénone | 150 | 107,135,80 |
| artémisia cétone | 150 | 83,55,84 |
| davanone | 236 | 111,93,69 |
| hydroxy-davanone | 237 | 113,93,111,43 |
| cumin aldéhyde | 148 | 148,133,105 |

Tableau III.5 (suite)

| Nom du composé identifié | Masse moléculaire | Principaux fragments m/e |
|----------------------------|-------------------|--------------------------|
| Esters | | |
| iso-valérate d'éthyle | 130 | 103,85,57 |
| iso-valérate de butyle* | 156 | 103,85,57,74 |
| cinnamate de méthyle | 162 | 131,103,162 |
| Z- et E-cinnamate d'éthyle | 176 | 131,103,176 |
| acétate de terpényle | 196 | 43,71,111,93 |
| acétate de chrysanthényle | 196 | 43,119,109,91 |
| tiglate de chrysanthényle* | 234 | 83,55,119 |
| Acides et lactones | | |
| acide iso-géranique* | 168 | 168,109,67,93 |
| acide caprique* | 172 | 79,60,129 |
| acide palmitique | 256 | 73,60,129 |
| γ -décalactone* | 170 | 85,41,56,128 |
| téréolactone* | 112 | 97,69,112 |

*composé non encore signalé dans l'huile essentielle de cette espèce

Du point de vue qualitatif, la composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. rappelle celle d'*Artemisia herba-alba* Asso., car on y retrouve plusieurs constituants communs, appartenant aux séries des monoterpènes mono- et bicycliques, des sesquiterpènes et des hydrocarbures aromatiques. Comme dans l'huile d'*Artemisia herba-alba* Asso., nous remarquons la présence simultanée de chrysanthénone, de verbénone, d' α -pinène et de monoterpènes irréguliers.

Toutefois, il est à relever quelques différences significatives dans la composition des huiles de ces deux espèces.

En effet, dans l'huile d'*Artemisia judaïca* L., nous n'avons pas repéré de monoterpènes bicycliques du groupe du thuyane, en l'occurrence, l' α -thuyone et la β -thuyone, qui comptent parmi les constituants majoritaires de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. Par contre, l'on a identifié quelques composés, appartenant à la série alicyclique, tels le myrcène et les acides isogéranique, caprique et palmitique.

Il est à noter également, que les trois groupes de terpènes irréguliers sont représentés dans l'huile d'*Artemisia judaïca* L.:

- le groupe santonilyle, avec le santolina alcool;
- le groupe artémisyle, avec l'artémisia cétone;
- le groupe lavandulyle, avec la chrysanthénone.

Par ailleurs, dans l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. nous avons relevé la présence de plusieurs composés de structure furannique, dont le spectre de masse est caractérisé par le pic de base à la masse m/e 111. Parmi ces composés, nous avons pu identifier la davanone, l'hydroxy-davanone, le triméthyl-3,7,9-cis-oxydo-8,11-dodécatétraène-1,5,7,9-ol-3 et le dihydro-éthényl-5-méthyl-5-furanone.

Enfin, dans le tableau III.5, les composés repérés par un astérisque sont, pour la première fois, signalés dans l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L.

L'analyse par CPG, sur colonne capillaire PEG 20M, de l'huile essentielle des deux peuplements de Tamanrasset et d'In Aménas, nous a permis d'accéder aux teneurs relatives de leurs constituants majoritaires réunies dans le tableau III.6 ci-dessous.

Tableau III.6: Teneurs relatives en % des constituants majoritaires de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. de deux régions d'Algérie

| Constituants | Région de Tamanrasset | Région d'In Aménas |
|----------------------------|-----------------------|--------------------|
| Pipéritone | 53,5 | 45,2 |
| Chrysanthénone | 9,8 | traces |
| Acétate de chrysanthényle | 7,4 | 10,0 |
| Chrysanthénol | 3,6 | 5,9 |
| Davanone | 3,6 | traces |
| Z- et E-cinnamate d'éthyle | 1,8 | 12,7 |

Nous remarquons également sur les figures 15 et 16, que si la pipéritone prédomine dans les deux échantillons d'huile, des différences, concernant la teneur des autres constituants majoritaires, sont à la base de l'allure différente de ces deux chromatogrammes. Seule donc, l'évaluation quantitative nous permet de les distinguer.

Aussi, l'huile essentielle de la plante de Tamanrasset contient 53,5% de pipéritone, 9,8% de chrysanthénone et 7,4% d'acétate de chrysanthényle, et celle d'In Aménas 45,2% de pipéritone, 12,7% de Z- et E-cinnamate d'éthyle et 10,0% d'acétate de chrysanthényle.

Notons, à ce sujet que, jusqu'en 1990 seul le type à pipéritone-cinnamate d'éthyle-camphre, pour l'huile d'*Artemisia judaïca* L. était connu.

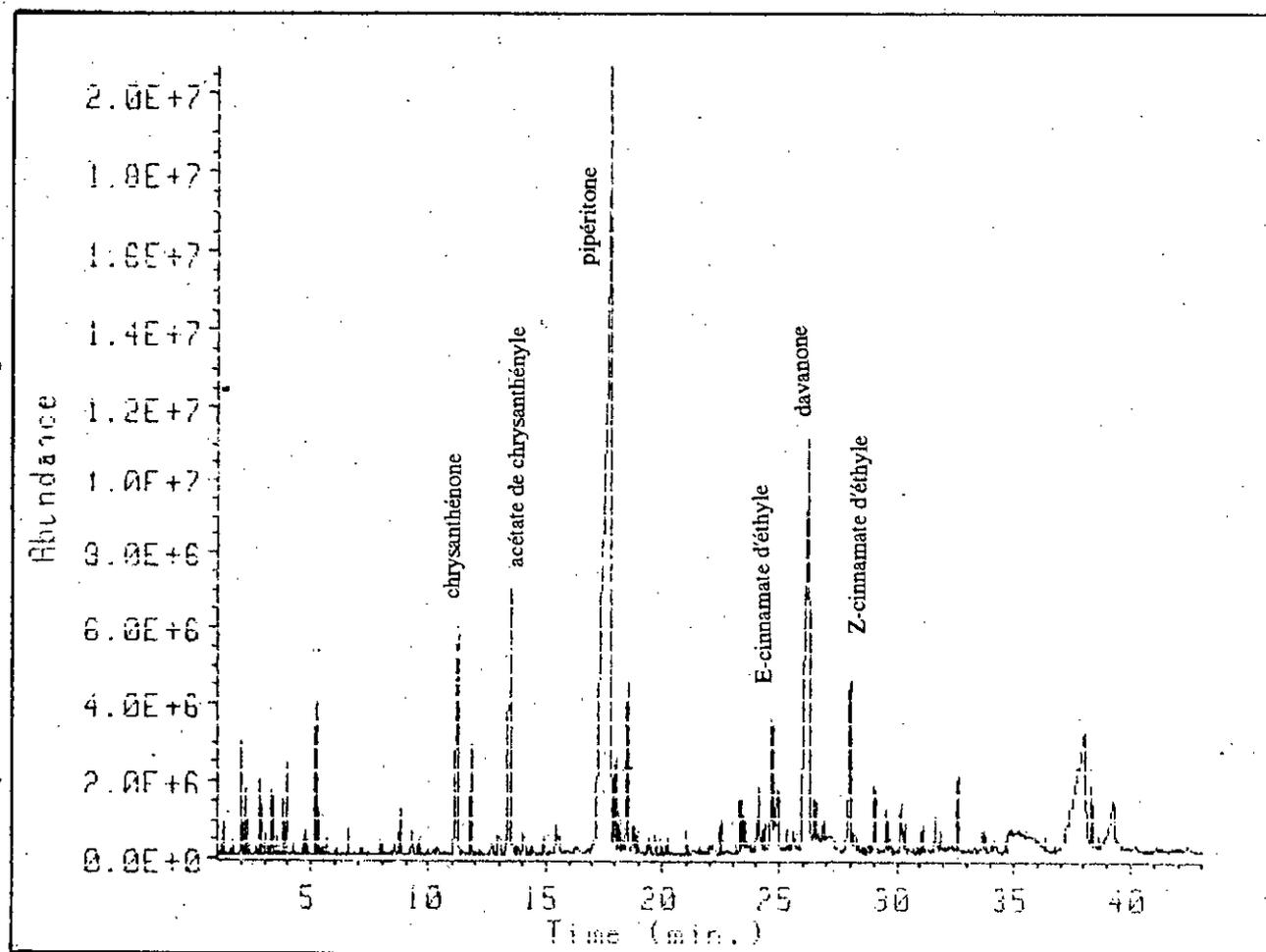


Figure 15: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia judaica* L. de la région de Tamanrasset. Type à pipéritone-chrysanthénone-acétate de chrysanthénylyle

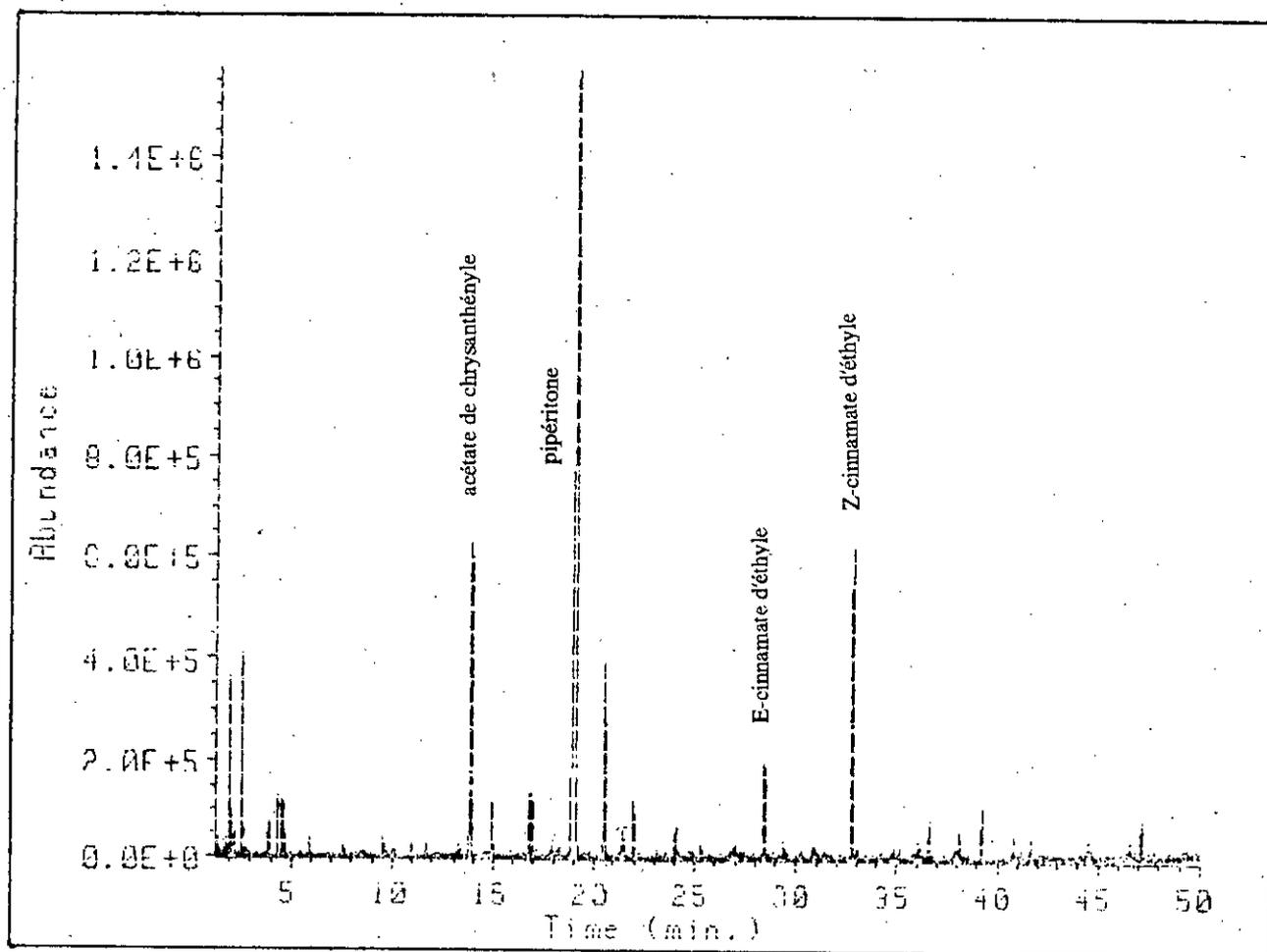


Figure 16: Chromatogramme de l'huile essentielle d'*Artemisia judaica* L. de la région d'In Aménas. Type à pipéritone-cinnamate d'éthyle-acétate de chrysanthényle

Il concernait la plante évoluant dans différentes régions d'Égypte (28,69,70,71). Il a fallu attendre 1990-1992, pour que des travaux publiés sur la composition de l'huile essentielle de la plante du désert du Neguev (71, 72), révèlent l'existence de deux autres types:

- un type à artémisia cétone (21%) - Z- et E-cinnamate d'éthyle (21%) - pipéritone (15%),
- un type à pipéritone (18%) - artémisia cétone (15%) - camphre (10%).

Nous voyons que la composition quantitative de nos échantillons est différente et ne permet pas de les rattacher aux types décrits précédemment. Il s'agit donc, de toute évidence, de deux nouveaux types d'*Artemisia judaïca* L. La particularité des peuplements algériens se traduit, en plus de leur richesse en pipéritone, (45-53,5%), par la présence de chrysanthénone et d'acétate de chrysanthényle. Ces derniers ont été signalés, en faibles proportions, dans les autres types (69-72).

A la lumière de ces faits, il s'avère que la composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. est sujette à des variations, dictées par le milieu écologique, au même titre que celle d'*Artemisia herba-alba* Asso.

Par ailleurs, la diversité des types, rapportée pour *Artemisia herba-alba* Asso. et tout récemment constatée chez *Artemisia judaïca* L., intrigue les chercheurs. L'hypothèse de la considérer comme conséquence des variations du patrimoine génétique, qui reste à démontrer, a été avancée (33).

III.3.4. Influence de la période de végétation sur la composition de l'huile essentielle des deux espèces d'*Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

Les études concernant l'influence de la période de végétation sur la composition de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. sont rares et assez contradictoires.

Benjilali et coll. (33), étudiant la composition de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. prélevée d'une même nappe, à différentes périodes de l'année (entre Juin et Décembre), n'observent aucune variation saisonnière de la composition.

Segal et coll. (41) rapportent, par contre, des variations appréciables de la composition et du rendement en huile, au cours du cycle végétatif de l'*Artemisia herba-alba* Asso. du Moyen Orient. Des observations similaires sont également constatées pour les huiles essentielles d'autres espèces d'*Artemisia* (115-117).

Notre étude a porté sur un peuplement de chacune des deux espèces. Pour des raisons d'approvisionnement en plante, nous avons choisi respectivement, le peuplement d'*Artemisia herba-alba* Asso., situé dans la région des Portes de fer (Bibans), près de la ville de Bordj Bou Arréridj sur les Hauts Plateaux, et le peuplement d'*Artemisia judaïca* L., situé aux environs de la ville de Tamanrasset.

Divers lots de ces deux plantes ont été récoltés pendant des périodes précises de leur cycle végétal, à savoir lors de la formation des boutons floraux et lors de leurs floraison et fructification. Ces divers stades végétatifs n'interviennent pas aux mêmes moments de l'année pour les deux espèces, du fait de leur évolution dans des conditions climatiques très différentes. C'est ainsi que

les prélèvements d'*Artemisia herba-alba* Asso. ont été effectués respectivement avant formation des boutons floraux (Mai 1988), en début de la formation de ces boutons floraux (Juin 1988), en pleine période précédant la floraison (Octobre 1988), en période de floraison (Décembre 1988) et enfin, en période de fructification (Janvier 1989).

Quant aux différents lots d'*Artemisia judaïca* L., ils ont été cueillis en pleine formation de boutons floraux (Janvier 1990), en période de floraison (fin Février 1990) et pendant la fructification (Avril 1990).

Leur huile essentielle a été récupérée par entraînement à la vapeur d'eau du matériel végétal frais puis analysée par CPG sur colonne capillaire PEG 20M, dans les conditions opératoires déjà citées.

* La composition en constituants majeurs des différents échantillons d'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et les rendements R_{HE} obtenus sont réunis dans le tableau III.7.

Tableau III.7: Variation du rendement et de la teneur relative, en %, des constituants majoritaires de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. en fonction de sa période de végétation

| Constituants | Période | | | | |
|----------------------------------|---------|--------|--------|--------|--------|
| | Mai88 | Juin88 | Oct.88 | Déc.88 | Jan.89 |
| Camphène* | 3,7 | 3,0 | 2,7 | 1,8 | 1,8 |
| Cinéol-1,8 | 5,7 | 5,6 | 5,1 | 1,7 | 1,5 |
| α -thuyone | 5,0 | 14,5 | 27,6 | 25,6 | 3,7 |
| β -thuyone | 5,5 | 10,7 | 13,2 | 15,6 | 4,1 |
| Chrysanthénone | 54,5 | 29,5 | 15,6 | 16,4 | 5,4 |
| Camphre | 15,9 | 13,6 | 12,0 | 14,2 | 6,0 |
| Bornéol | 0,7 | 1,1 | 1,2 | 1,5 | 0,4 |
| Thuyanol | 0,6 | 1,4 | 1,5 | 3,1 | 3,2 |
| Acétate de chrysanthényle | 1,8 | 0,2 | 0,2 | 0,3 | 42,4 |
| Acétate de bornyle | 0,1 | 0,1 | 0,1 | 0,3 | 8,1 |
| Acétate de terpényle | 1,2 | 1,0 | 0,5 | 1,1 | 2,4 |
| Rendement en huile, R_{HE} , % | 0,27 | 0,66 | 0,20 | 0,15 | 0,10 |

Des différences significatives dans la composition quantitative des lots étudiés sont à noter. En effet, les cétones monoterpéniques: camphre, thuyone et chrysanthénone, prédominent dans

l'huile issue des plantes du début de la formation des boutons floraux jusqu'à leur floraison. Au terme du cycle végétal, leur proportion diminue considérablement et les esters, en l'occurrence les acétates de chrysanthényle et de bornyle, deviennent prépondérants dans l'huile.

D'autre part, l'on remarque une variation considérable de la teneur en chrysanthénone. En effet, elle constitue 54,5% de l'huile en début de formation des boutons floraux et ne représente plus que le dixième, soit 5,4%, dans l'huile extraite de la plante en période de fructification. Cette évolution surprenante de la teneur en chrysanthénone nous a incité à poursuivre cette étude sur le même peuplement durant les années 1989, 1990 et 1991. L'analyse de l'huile essentielle a confirmé les variations déjà observées. Cette même tendance a été également constatée pour l'huile essentielle de la plante du peuplement de Ghardaïa. La teneur en chrysanthénone passe de 6,3%, en période de formation des boutons floraux, à l'état de traces, dans l'huile de la plante arrivée en fin de floraison. En dépit de la variabilité individuelle importante reconnue chez *Artemisia herba-alba* Asso., il a été montré (33,34) que les peuplements isolés sont relativement homogènes. Dès lors, il y a tout lieu de penser que les variations de la composition observées sont reliées au cycle biologique de la plante.

Enfin, dans l'hypothèse d'une exploitation économique de ce peuplement d'*Artemisia herba-alba* Asso. de Bibans, il est donc recommandé d'effectuer la récolte courant Juin, afin d'obtenir une huile essentielle avec un taux limité en thuyones (en particulier la β -thuyone, connue pour sa toxicité) et avec un meilleur rendement.

* L'examen des résultats obtenus pour *Artemisia judaïca* L. et reportés dans le tableau III.8, montre que la période de végétation de la plante a relativement peu d'incidence sur la composition de l'huile essentielle.

Tableau III.8: Variation du rendement et de la teneur relative, en %, des constituants majoritaires de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. en fonction de sa période de végétation

| Constituants | Janvier 90 | Période Février 90 | Avril 90 |
|------------------------------------|------------|-----------------------|----------|
| Limonène | 2,8 | 1,5 | 1,1 |
| Chrysanthénone | 13,1 | 9,8 | 5,0 |
| Camphre | 0,6 | 1,6 | 0,5 |
| Pipéritone | 53,4 | 53,5 | 69,9 |
| Davanone | 4,0 | 3,4 | 0,1 |
| Z-chrysanthénol | 2,0 | 3,6 | 0,1 |
| Acétate de chrysanthényle | 2,3 | 7,4 | 2,3 |
| Z- et E-cinnamate d'éthyle | 3,5 | 1,8 | 1,8 |
| Rendement de l'huile, R_{HE} , % | 0,65 | 1,42 | 0,26 |

Toutefois, l'on notera la même diminution de la teneur en chrysanthénone au cours de la croissance de la plante, comme celle déjà constatée chez *Artemisia herba-alba* Asso. Le rendement en huile, par contre, est fortement influencé; il est maximal pour la plante fleurie, comme c'est le cas de la plupart des plantes à fleurs. Par conséquent, dans l'hypothèse d'une valorisation économique l'on conseillera plutôt une récolte d'*Artemisia judaïca* L. en période de floraison.

III.4. Incidence de la température sur l'hydrosolubilité et l'évaporation de l'huile essentielle des deux *Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

La température affecte la plupart des propriétés physico-chimiques des huiles essentielles. L'incidence de ce paramètre sur l'hydrosolubilité et l'évaporation de l'huile mérite une attention particulière, lors de la mise en oeuvre de son entraînement à la vapeur d'eau. Ces propriétés interviennent en effet, au cours de la séparation et de la récupération de l'huile des eaux de distillation. Par conséquent, la connaissance de leur évolution en fonction de la température permettra le choix judicieux de l'un des paramètres de ce procédé qu'est la température du distillat.

III.4.1. Hydrosolubilité de l'huile essentielle d'*Artemisia herba alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

Appliqué aux huiles essentielles, le terme d'hydrosolubilité *S* désigne aussi bien la solubilité colloïdale de l'huile que la solubilité moléculaire de ses constituants. De manière générale, l'augmentation de température favorise la solubilité moléculaire; en revanche, elle provoque une diminution de la solubilité colloïdale.

Des travaux (118-120), menés sur l'étude de la variation de l'hydrosolubilité en fonction de la température, font état de trois cas de comportement différents des huiles essentielles:

- l'hydrosolubilité *S* est constante dans un intervalle assez large de températures; citons le cas de l'huile de *Foeniculum officinale*;
- l'hydrosolubilité *S* passe par une valeur minimale lorsque la température augmente (cas des huiles de menthe et de lavande);
- l'hydrosolubilité *S* présente une valeur maximale lorsque la température augmente (cas de l'huile essentielle de cannelle).

La détermination expérimentale de l'hydrosolubilité d'une huile essentielle consiste à mesurer sa concentration dans l'eau, à l'issue d'un contact intime suffisamment long entre les deux phases, à une température constante. Elle est exprimée en milligrammes d'huile dans 100 millilitres d'eau (mg/100 ml).

Nous avons procédé à la détermination de l'hydrosolubilité des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., en adoptant le protocole expérimental proposé par Gueorguiev (120). Les mesures de concentrations d'huile solubilisée dans l'eau ont été effectuées successivement à 20°, 30°, 40° et 50°C. Pour chacune de ces températures, les essais ont été répétés trois fois. Les valeurs moyennes d'hydrosolubilité *S* de nos deux huiles sont présentées dans le

tableau III.9 ci-dessous.

Tableau III.9: Variation de l'hydrosolubilité S des huiles essentielles d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. en fonction de la température T

| Température T, °C | Hydrosolubilité S, mg/100ml | |
|-------------------|-----------------------------|---------------|
| | A. herba-alba Asso. | A. judaïca L. |
| 20 | 106,7 | 72,9 |
| 30 | 25,3 | 60,3 |
| 40 | 8,7 | 95,7 |
| 50 | 34,7 | 160,7 |

Nous constatons que chacune de nos deux huiles présente une valeur minimale d'hydrosolubilité correspondant à une température donnée. Ceci traduit le fait qu'à cette température, la concentration micellaire de l'huile approche sa valeur critique. Au-delà de cette dernière, l'hydrosolubilité de l'huile résulterait de la seule solubilité moléculaire de ses constituants qui augmente avec la température.

Le traitement mathématique de ces résultats a permis d'établir des équations exprimant la variation de l'hydrosolubilité S en fonction de la température T. Parmi celles-ci, l'équation polynômiale du second degré en T semble représenter correctement cette variation.

Pour l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso., l'équation s'écrit:

$$S = 0,268T^2 - 21,121T + 420,610 \quad [2]$$

Celle de l'huile essentielle d'Artemisia judaïca L. est donnée par:

$$S = 0,194T^2 - 10,592T + 206,220 \quad [3]$$

Les expressions [2] et [3] sont les équations des paraboles représentées sur la figure 17, donnant un minimum de solubilité respectivement à une température de 39,4°C, pour l'huile d'Artemisia herba-alba Asso. et à une température de 29,3°C, pour l'huile d'Artemisia judaïca L. Les branches de gauche traduisent la diminution de la solubilité colloïdale de l'huile, alors que celles de droite décrivent l'augmentation de la solubilité moléculaire de l'ensemble des constituants de l'huile.

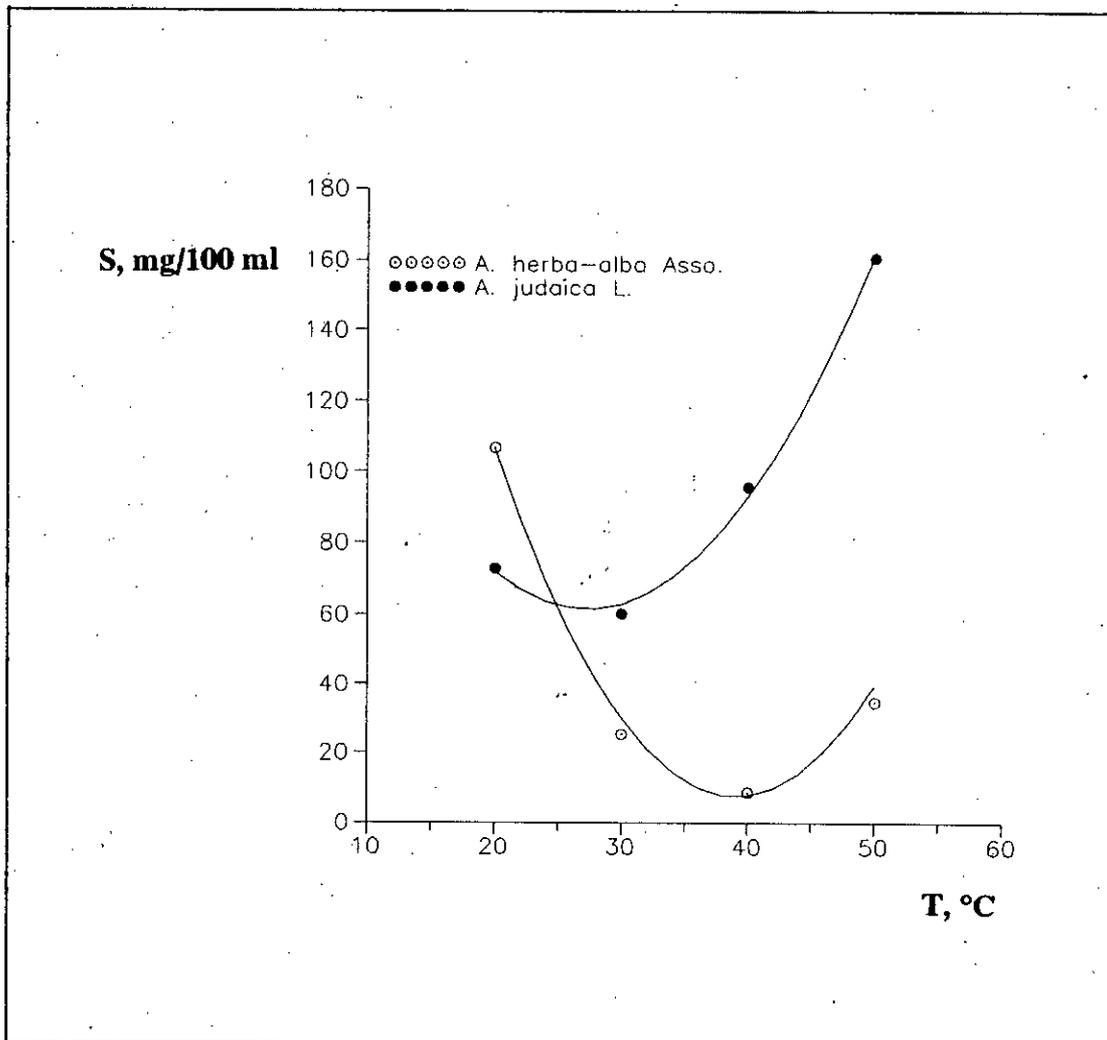


Figure 17: Variation de l'hydrosolubilité S des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaica* L. en fonction de la température T

Le minimum d'hydrosolubilité observé laisse espérer une diminution des pertes en huile solubilisée dans les eaux de distillation, en maintenant leur température à la valeur correspondant à la solubilité minimale de l'huile dans l'eau.

III.4.2. Evaporation de l'huile essentielle des deux *Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

L'évaporation **E** des huiles essentielles augmente avec la température et dépend également de la durée de son action, de la surface d'évaporation et enfin de la composition chimique de ces huiles. Elle est généralement exprimée par la masse d'huile, en grammes, évaporée en une heure, par unité de surface.

Selon la valeur de leur évaporation **E** à 20°C, les huiles essentielles sont réparties en quatre catégories (18):

- huiles très volatiles: $E \geq 30 \text{ g/hm}^2$ (cas de l'huile de fenouil)
- huiles de volatilité moyenne: E allant de 10 à 30 g/hm^2 (huile de menthe)
- huiles peu volatiles: E variant de 5 à 10 g/hm^2 (huile de lavande)
- huiles non volatiles: $E < 5 \text{ g/hm}^2$ (huile de rose)

Aussi, avons-nous déterminé l'évaporation de l'huile essentielle de nos deux espèces d'*Artemisia* respectivement à 20°, 30°, 40° et 50°C, en utilisant le mode opératoire d'usage (18). Deux essais répétitifs ont été effectués pour chacune de ces valeurs de température. Les résultats obtenus sont réunis dans le tableau III.10 ci-après.

Tableau III.10: Evaporation E des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. en fonction de la température T

| Température T, °C | Evaporation E, g/hm^2 | |
|-------------------|--------------------------------|----------------------|
| | <i>A. herba-alba</i> Asso. | <i>A. judaïca</i> L. |
| 20 | 13,1 | 9,2 |
| 30 | 23,8 | 24,5 |
| 40 | 45,2 | 47,0 |
| 50 | 106,1 | 74,0 |

Les valeurs observées à 20°C nous permettent de classer l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. parmi les huiles de volatilité moyenne et celle d'*Artemisia judaïca* L. dans la catégorie des huiles peu volatiles.

Par ailleurs, l'évaporation **E** de nos deux huiles augmente avec l'élévation de la température, comme le montre le tableau III.10, et vérifie les équations suivantes:

*Artemisia herba-alba: $E = 2,169 e^{0,0776T}$ [4]

*Artemisia judaïca: $E = 0,029T^2 + 0,163T - 5,870$ [5]

La figure 18 présente les courbes d'évaporation E déterminées à partir des équations [4] et [5] et des points expérimentaux.

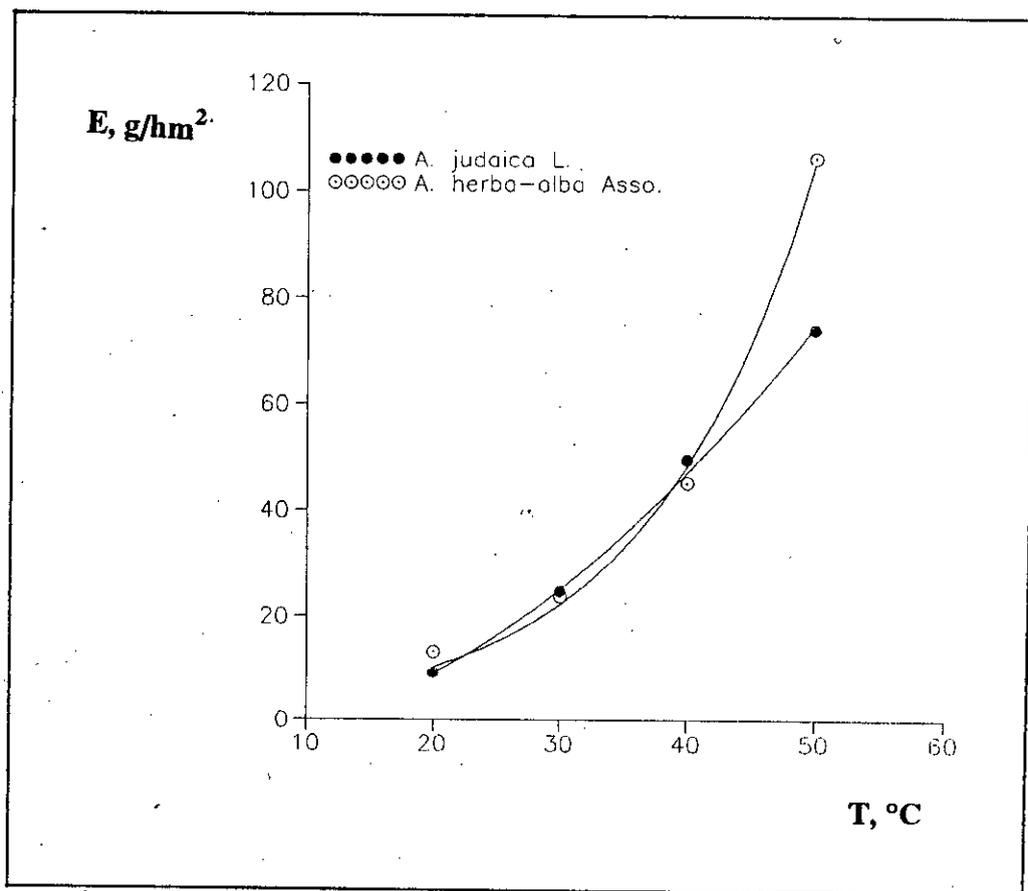


Figure 18: Variation de l'évaporation E des huiles essentielles d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. en fonction de la température T

On note que l'évaporation E des huiles aux températures, correspondant au minimum d'hydrosolubilité S , est relativement peu élevée.

III.5. Evaluation de l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

L'industrie alimentaire et la parfumerie sont les principales consommatrices de produits aromatiques naturels. L'industrie pharmaceutique qui les a longtemps ignorés, utilise actuellement près de dix mille principes actifs d'origine végétale, parmi lesquels les huiles essentielles occupent une bonne place. Il y a dix ans, en effet, l'Organisation Mondiale de la Santé a engagé un recensement des plantes employées en médecine traditionnelle dans plusieurs pays et un programme international de recherche a été lancé, afin de sortir la phytothérapie de son empirisme (121). Aussi, l'expérimentation scientifique a souvent confirmé les vertus de la "médecine verte". Cette dernière, rappelons-le, était discréditée, faute de vérification scientifique, et pratiquement éclipsée par l'avènement de la chimiothérapie. Les médicaments de synthèse, notamment les antibiotiques, aux effets très spectaculaires, ont enregistré des succès considérables et ont entraîné le déclin de la phytothérapie. Cependant, les effets secondaires néfastes de la plupart d'entre eux et l'apparition de populations microbiennes très résistantes ont amorcé, depuis quelques années, la recherche de nouveaux agents thérapeutiques et le regain d'intérêt pour la médecine par les plantes (122). La phytothérapie a déjà fait ses preuves, notamment dans le domaine des infections génito-urinaires et dans celui des affections rhumatismales et cardiaques. L'avenir lui réserve une place auprès de la thérapeutique officielle, puisque l'on s'achemine désormais vers une médecine plus diversifiée et moins agressive dans ses interventions.

Dans ce contexte et en raison de l'appréciation en médecine traditionnelle, dont jouissent *Artemisia herba-alba* Asso. et *Artemisia judaïca* L., nous nous sommes intéressés à l'activité antimicrobienne de leurs huiles essentielles. Nous avons entrepris cette étude, dans l'espoir d'inciter des travaux plus approfondis, qui pourront aboutir éventuellement à l'utilisation de nos produits en pharmacie.

Au cours de cette étude, nous avons réalisé des épreuves de sensibilité d'un certain nombre de microorganismes vis-à-vis de l'huile essentielle des deux plantes., en ayant recours à la technique des disques ou antibiogramme. Aussi, nous présenterons brièvement cette technique ainsi que les microorganismes testés.

III.5.1. L'antibiogramme

La technique consiste à inoculer la surface d'une gélose nutritive en place, de façon à former un tapis uniforme de colonies du microorganisme testé. Avant incubation, on dispose à la surface de la gélose de disques imprégnés de différents antibiotiques (dans notre cas, d'huile essentielle). Pendant l'incubation, l'antibiotique diffuse radialement dans la gélose autour du disque. Si le microorganisme est sensible à un antibiotique donné, une couronne d'inhibition, dont l'épaisseur est proportionnelle à la sensibilité du microorganisme, apparaîtra autour du disque (123, 124). L'activité antimicrobienne est estimée grande pour des diamètres de zone d'inhibition supérieurs à 15 mm, moyenne, pour des valeurs comprises entre 11 et 14 mm et faible, lorsque il n'excède

pas 10 mm (125). Le développement des colonies au contact du disque indique que le microorganisme n'est pas sensible à l'action de l'antibiotique.

Lors des tests effectués, nous avons utilisé de la gélose nutritive spécifique aux microorganismes étudiés. L'inoculation a été effectuée par inondation avec des solutions dans 10 ml d'eau stérile, soit d'une anse de platine de la souche mère pour les bactéries ou avec une suspension "riche", pour les levures et les champignons. Des disques stérilisés de papier Whatman N°3, de 6 mm de diamètre, ont été imprégnés avec 2,5 mg d'huile essentielle de chacune des deux *Artemisia*, récoltées en période de floraison. *Artemisia herba-alba* Asso. provient du peuplement situé près de la ville de Bordj Bou Arréridj et *Artemisia judaïca* L., de celui de Tamanrasset.

III.5.2. Les microorganismes testés

Les microorganismes testés, lors de cette étude, appartiennent aux différentes familles: entérobactéries, cocci, levures et champignons. Certains ont été isolés des urines (ECBU ou examen cyto-bactériologique des urines) ou de coprocultures (CPC), d'autres proviennent de divers prélèvements vaginaux (PV), de gorges (PG), de pus d'abcès (PA), de pus d'oreille (PO), de furoncles du conduit auditif (FCA), de fistules (F), de CT ombilical (CTO) ou de hémocultures (HC).

Parmi les entérobactéries, dont la famille est l'une des plus importantes, nous avons évalué la sensibilité de *Klebsiella pneumoniae*, d'*Echerichia coli* et de divers *Proteus*, *Shigella* et *Salmonella*. Bien que leur nom suggère que ce sont des hôtes du système digestif, ce n'est toujours pas le cas, puisque certaines sont largement répandues dans la nature, où elles jouent le rôle d'agents de putréfaction de déchets d'origine animale. Plusieurs d'entre elles sont des constituants normaux et bienfaisants de la flore intestinale humaine, mais deviennent pathogènes chez des sujets immunodéprimés. Les entérobactéries s'introduisent dans la bouche par plusieurs vecteurs (aliments, eau, mains) et sont expulsées via les selles. Elles sont les causes majeures de gastro-entérites et d'infections du tractus urogénital (126).

Les cocci, *Staphylococcus aureus*, *Staphylococcus epidermidis*, *Staphylococcus saprophyticus*, sont présents au niveau du tractus respiratoire (sinus, oreille moyenne, sacs conjonctivaux et tissus adjacents inclus). Ils sont transmis par les sécrétions nasales et orales ou par les écoulements en provenance d'un oeil ou d'une oreille infectés. Les infections à *Staphylococcus* sont généralement localisées, mais peuvent se propager par voie sanguine et provoquer des infections plus sévères telles que septicémie, endocardite, méningite. Les *Staphylococcus* deviennent souvent résistants aux antibiotiques usuels.

Le *Streptococcus D* se localise dans les intestins et les voies uro-génitales. Il provoque des infections urinaires, génitales, biliaires et des endocardites (126).

Parmi les agents d'infections mycotiques, nous avons testé trois levures, en l'occurrence, *Candida albicans*, *Candida stellatoïdae* et *Candida tropicalis*, et les quatre champignons suivants *Microsporum canis*, *Microsporum gypseum*, *Trichophyton interdigitale* et *Aspergillus terreus*. Les *Candida* sont responsables d'infections des muqueuses de la bouche et des voies alimentaires.

Ces levures sont fréquemment retrouvées chez des individus sains, sans pour autant causer de maladies. Cependant, lorsque les conditions deviennent favorables à leur prolifération, elles se multiplient indûment et deviennent très virulentes. Parmi les conditions favorisant une infection à *Candida*, on cite le diabète, la grossesse ou toute maladie pouvant affecter l'état général d'un individu (127).

Les champignons, dont un grand nombre vivent dans le sol, provoquent des infections, uniquement lorsqu'ils sont introduits dans la peau ou dans les tissus sous-cutanés, lors d'un traumatisme. Les infections de la peau, des ongles et des cheveux, dont ils sont à l'origine, sont mieux connues sous le nom de tinea. Lorsqu'il y a atteinte du cuir chevelu, on parle de tinea capitis, une infection du pied, communément appelée pied d'athlète, porte le nom de tinea pedis, une infection de l'ongle, tinea unguicum et l'acné, tinea cruris.

III.5.3. Résultats

Les résultats obtenus et relatifs aux diamètres des zones d'inhibition sont regroupés dans le tableau III.11. Dans ce tableau, la valeur du diamètre de la zone d'inhibition inclut le diamètre du disque. La valeur <6 signifie qu'il y a eu développement de colonies du microorganisme testé au contact du disque. Aussi dans ce cas, le produit utilisé ne présente pas d'activité antimicrobienne.

Tableau III.11: Diamètres des zones d'inhibition, en mm, obtenus, lors de l'évaluation de l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

| Microorganisme | Origine | Diamètre en mm des zones d'inhibition | |
|-------------------------------|---------|---------------------------------------|----------------------|
| | | <i>A. herba-alba</i> Asso. | <i>A. judaïca</i> L. |
| Enterobactéries | | | |
| <i>Klebsiella pneumoniae</i> | ECBU | 10 | 11 |
| <i>Klebsiella pneumoniae</i> | PV | 9 | 9 |
| <i>Klebsiella pneumoniae</i> | CTO | <6 | 7 |
| <i>Echerichia coli</i> | ECBU | 8 | 9 |
| <i>Echerichia coli</i> | PV | 8 | 9 |
| <i>Echerichia coli</i> | CPC | 10 | 11 |
| <i>Proteus mirabilis</i> | ECBU | 9 | 9 |
| <i>Proteus indole positif</i> | ECBU | 6 | 6 |
| <i>Salmonella mineure C1</i> | CPC | 8 | 8 |
| <i>Salmonella mineure C2</i> | CPC | 8 | 8 |

Tableau III.11 (suite)

| Microorganisme | Origine | Diamètre en mm des zones d'inhibition | |
|-------------------------------------|---------|---------------------------------------|---------------|
| | | A. herba-alba Asso. | A. judaïca L. |
| <i>Salmonella seftenberg</i> | CPC | <6 | 8 |
| <i>Salmonella enteridis</i> | CPC | 12 | 11 |
| <i>Salmonella paratypi A</i> | CPC | 10 | 10 |
| <i>Salmonella infantis</i> | CPC | 13 | 10 |
| <i>Salmonella heidelberg</i> | CPC | 6 | 12 |
| <i>Shigella sonnei</i> | CPC | 9 | 9 |
| <i>Shigella flexnerie</i> | CPC | 6 | 6 |
| Cocci | | | |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | ECBU | 16 | 15 |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | F | 22 | 21 |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | FCA | 16 | 18 |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | PA | 14 | 18 |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | PG | 18 | 15 |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | PO | 17 | 15 |
| <i>Staphylococcus epidermidis</i> | HC | 19 | 18 |
| <i>Staphylococcus saprophyticus</i> | HC | 16 | 15 |
| <i>Streptococcus D</i> | ECBU | 13 | 10 |
| Levures | | | |
| <i>Candida albicans</i> | | 15 | 15 |
| <i>Candida stellatoïdea</i> | | 15 | 19 |
| <i>Candida tropicalis</i> | | 23 | 30 |
| Champignons | | | |
| <i>Microsporium canis</i> | | 16 | 12 |
| <i>Microsporium gypseum</i> | | 14 | 12 |
| <i>Trichophyton interdigitale</i> | | <6 | <6 |
| <i>Aspergelus terrus</i> | | <6 | <6 |

Nous observons une activité très importante de l'huile essentielle des deux *Artemisia* vis-à-vis des *Staphylococcus*. Ce résultat est intéressant, dans la mesure où il peut justifier l'utilisation traditionnelle de ces deux plantes par inhalation, pour soigner le rhume. Les *Candida* et les champignons du genre *Microsporum* sont aussi très sensibles à l'action de l'huile. Ceci pourrait être à l'origine de l'effet cicatrisant, attribué aux deux *Artemisia*. Par contre, l'activité de l'huile à l'encontre des entérobactéries s'est avérée moyenne (*Klebsiella pneumoniae*, *Salmonella enteridis*, *Salmonella infantis*), voire faible. Par ailleurs, on constate qu'en dépit de leur composition différente, l'activité antimicrobienne de nos deux huiles est comparable. Des travaux antérieurs (26) rapportent en effet, que bien souvent ce n'est point tel constituant ou tel autre isolé qui se montre efficace, mais plutôt l'ensemble des constituants de l'huile.

Nous qualifions les résultats de cette étude préliminaire d'encourageants et à notre avis, ils méritent l'attention des compétences concernées. Aussi, la recherche ultérieure pourrait être orientée notamment, vers la détermination de la concentration inhibitrice minimale et la toxicité de ces deux huiles, avant de procéder aux tests cliniques. Dans le cas où ces derniers s'avèrent concluants, l'utilisation en pharmacie de nos huiles pourrait être envisagée.

Chapitre IV

Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle à l'échelle semi-pilote

| | |
|---|----|
| IV.1. Description de l'installation semi-pilote d'extraction | 48 |
| IV.2. Protocole expérimental d'extraction | 50 |
| IV.3. Définition des paramètres intervenant dans le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau | 51 |
| IV.3.1. Rendement en huile essentielle R_{HE} | 51 |
| IV.3.2. Taux d'extraction τ | 51 |
| IV.3.3. Vitesse de distillation v | 51 |
| IV.3.4. Durée d'extraction t | 51 |
| IV.3.5. Quantité de vapeur Q | 52 |
| IV.4. Evaluation de la reproductibilité des résultats | 52 |
| IV.5. Détermination expérimentale de la durée t d'extraction de l'huile essentielle des deux espèces d' <i>Artemisia</i> : <i>A. herba-alba</i> Asso. et <i>A. judaïca</i> L. | 54 |
| IV.6. Evolution de la composition chimique de l'huile essentielle au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau et mise en évidence des étapes du processus d'extraction | 58 |
| IV.7. Influence de la température du distillat sur le rendement et la composition de l'huile essentielle | 62 |
| IV.8. Mode et durée du stockage de la matière végétale et leur incidence sur le rendement et la composition de l'huile essentielle | 64 |
| IV.9. Optimisation des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau | 69 |
| IV.9.1. Méthode classique d'optimisation | 69 |
| IV.9.2. Optimisation par planification des expériences | 71 |
| IV.9.3. Variation de la composition et des propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle en fonction des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau | 75 |

La mise en oeuvre de l'extraction de produits naturels, en général, et des huiles essentielles, en particulier, est confrontée à un certain nombre de problèmes. Parmi eux, le plus souvent sont évoquées:

- la faible teneur de l'huile essentielle dans la matière végétale;
- les contraintes de récoltes saisonnières du matériel végétal qui posent le problème de son stockage;
- les caractéristiques rhéologiques du matériel végétal qui imposent parfois un traitement préalable;
- la qualité de l'huile essentielle en conformité avec les normes internationales.

Par conséquent, des solutions technologiques, permettant la récupération aussi complète que possible d'une huile de bonne qualité, sont à rechercher même lorsqu'il s'agit du plus ancien des procédés d'extraction d'huiles essentielles à partir des végétaux à savoir, l'entraînement à la vapeur d'eau. Ce procédé est encore, de nos jours, le plus utilisé, car sa mise en oeuvre simple et l'utilisation de la vapeur d'eau, disponible et à bas prix, constituent ses principaux avantages.

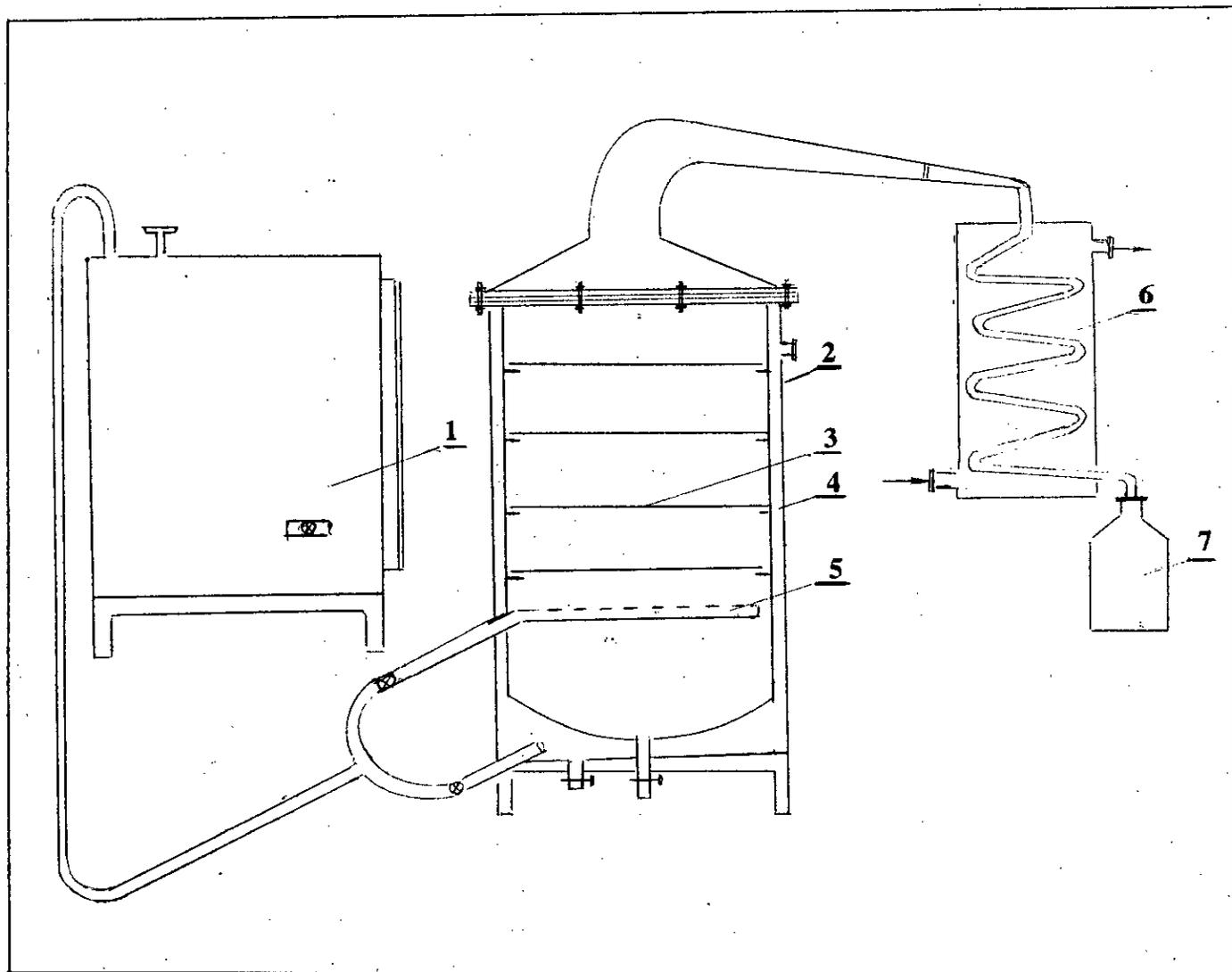
Si la technologie de l'entraînement à la vapeur d'eau n'a pratiquement pas évolué, la recherche, dans ce domaine, s'est orientée vers la maîtrise et l'optimisation des paramètres liés aussi bien aux particularités de la matière végétale à traiter, qu'au procédé lui-même.

Dans ce contexte, nous avons abordé l'extraction, à l'échelle semi-pilote, par entraînement à la vapeur d'eau, de l'huile essentielle des deux *Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L. Parmi les paramètres liés à la matière végétale, la durée de l'extraction et l'état physique de la plante (fraîche, séchée) ont retenu notre attention. Par ailleurs, nous avons effectué une approche des conditions optimales d'extraction dans une installation semi-pilote, en faisant appel aux méthodes d'optimisation classique et par planification des expériences. A cet effet, nous avons étudié l'influence, sur le rendement en huile, des paramètres accessibles expérimentalement, en l'occurrence, la masse de matière végétale à traiter, sa répartition dans l'alambic, la vitesse de distillation et la température du distillat.

IV.1. Description de l'installation semi-pilote d'extraction

L'installation d'extraction par entraînement à la vapeur d'eau, schématisée à la figure 19, a été conçue et réalisée au Département de Génie chimique de l'Ecole Nationale Polytechnique d'Alger (128). Elle est constituée d'une chaudière, d'un alambic et d'un condenseur.

La chaudière est un bac parallélépipédique, aux dimensions 700 x 600 x 500 mm, surmonté, à sa partie supérieure, d'une sortie de vapeur commandée par une vanne, et d'une soupape de sécurité. Le niveau d'eau dans la chaudière est contrôlé par un tube en verre, fixé le long de la face latérale du bac. Le chauffage est assuré par une série de rampes à gaz, placée au-dessous du bac. Les faces latérales de la chaudière sont recouvertes de plaques d'amiante, afin de minimiser les pertes de chaleur.



1: chaudière; 2:alambic ; 3: plateau; 4: double paroi;
5: distributeur de vapeur; 6: condenseur; 7: receveur de distillat

Figure 19: Schéma de l'installation semi-pilote d'extraction

L'alambic d'extraction est constitué de deux parties: l'une cylindrique appelée cucurbite, l'autre conique ou chapiteau se prolongeant, à sa partie supérieure, par une conduite, nommée "col de cygne". La cucurbite est un cylindre en cuivre à double paroi, de 757 mm de hauteur et de 500 mm de diamètre. Elle se termine, à sa partie inférieure, par une calotte hémisphérique, munie de robinets pour l'évacuation des eaux condensées à l'intérieur de l'alambic et de son enveloppe. Quatre plateaux perforés, sur toute leur surface, de trous de 3 mm de diamètre, permettant la répartition de la matière végétale, peuvent être insérés à l'intérieur de l'alambic. Ils sont supportés par des ergots équidistants, soudés sur les parois internes de la cucurbite. La vapeur est introduite dans l'alambic par un tube de cuivre perforé, enroulé en spirale, assurant sa répartition uniforme. D'autre part, dans la double paroi, circule de la vapeur venant d'un second distributeur, afin de chauffer la cucurbite et d'y minimiser la condensation des vapeurs. Un tube en verre, fixé le long de la paroi externe de la cucurbite, sert d'indicateur de niveau d'eau. La liaison entre la cucurbite et le chapiteau est réalisée à l'aide d'une bride, munie d'un joint en caoutchouc, assurant la fermeture hermétique de l'alambic. La face externe du chapiteau et du col de cygne est recouverte d'amiante.

Le condenseur est un échangeur de chaleur, ayant pour rôle de refroidir et de condenser les vapeurs venant de l'alambic. Il est constitué d'un serpentín en cuivre relié au col de cygne et plongeant dans un bac de réfrigération. Ce dernier est un cylindre en cuivre de 470 mm de hauteur et de 310 mm de diamètre. Le condenseur comporte une entrée et une sortie d'eau de réfrigération; à sa partie inférieure est située la sortie du serpentín. Le débit d'eau est contrôlé par une vanne placée sur la conduite d'arrivée d'eau.

Une série de récipients gradués sert de receveur de condensat.

IV.2. Protocole expérimental d'extraction

La matière végétale, constituée des parties aériennes de la plante préalablement pesée, est introduite et répartie uniformément, à l'intérieur de la cucurbite. Après fermeture de l'alambic, la vapeur est mise en circulation dans la double paroi. Dès que celle-ci s'est réchauffée, la vapeur est envoyée dans l'alambic, où elle traverse la matière végétale. Chargée d'huile essentielle, cette vapeur arrive dans le condenseur. Le distillat est recueilli à des intervalles de 15 minutes dans les récipients gradués.

L'huile essentielle est séparée de l'eau de ce distillat par décantation, après relargage au NaCl. Ces eaux résiduelles de distillation sont reprises et traitées plusieurs fois à l'éther diéthylique, afin d'extraire l'huile solubilisée.

A la fin de l'expérience, les eaux dites de condensation accumulées au fond de l'alambic sont recueillies et leur volume est mesuré.

Pour éliminer l'influence sur le rendement en huile des paramètres autres que le paramètre étudié, nous avons utilisé pour chaque série d'essais, un lot de la même plante d'origine, de période de végétation et de taux d'humidité identiques, conservée dans les mêmes conditions.

Un échantillonnage de chacun des lots de plante a été effectué selon les méthodes d'usage (18), afin d'utiliser, pour l'ensemble des essais de la série, un échantillon représentatif. Le taux d'humidité de la matière végétale a été déterminé par la méthode de Dean et Stark (18).

IV.3. Définition des paramètres intervenant dans le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau

IV.3.1. Rendement en huile essentielle R_{HE}

Le rendement en huile essentielle R_{HE} est estimé par le rapport des masses d'huile essentielle et de matière végétale séchée. Il est exprimé en pour cent, %.

IV.3.2. Taux d'extraction τ

Le taux d'extraction τ , exprimé en pour cent, %, est déterminé par le rapport entre rendement en huile à l'instant t et rendement global obtenu.

IV.3.3. Vitesse de distillation v

La vitesse de distillation v , exprimée par la relation [6], est définie par le volume de distillat recueilli en une heure, dans un appareil de distillation d'une capacité de 100 litres (18):

$$v = \frac{V \cdot 100}{t \cdot W} \quad [6]$$

où v désigne la vitesse de distillation, en %/heure, V , le volume de distillat, en litres, t la durée d'extraction, en heures et W le volume utile de la cucurbit, en litres.

Notons que le volume utile de la cucurbit, utilisée pour nos expériences, est estimé à 90 litres; en outre, la vitesse maximale de distillation, atteinte avec notre installation, est évaluée à 7%/heure.

IV.3.4. Durée d'extraction t

La durée d'extraction t dépend non seulement de la localisation de l'huile essentielle dans la matière végétale, mais aussi de l'état physique de la plante (fraîche, séchée, entière, broyée), de la composition de l'huile essentielle et de la vitesse de distillation v .

Aussi théoriquement, la récupération totale de l'huile essentielle, contenue dans la matière végétale, nécessiterait une durée infiniment longue. Or, en pratique, l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau est arrêtée au moment où l'on n'observe plus de gouttes d'huile essentielle dans le receveur de distillat. Cet instant correspond à la fin réelle du processus; ce qui ne signifie pas, toutefois, que la totalité de l'huile a été récupérée. De plus, l'extraction peut être arrêtée avant la fin réelle du processus, pour des raisons économiques, si la qualité de l'huile essentielle, obtenue au-

délà d'un certain temps, ne correspond pas à celle exigée par les normes internationales, ou bien, lorsque sa valeur est inférieure au coût de fonctionnement de l'installation.

IV.3.5. Quantité de vapeur Q

Lors de l'entraînement à la vapeur d'eau, cette dernière est utilisée pour:

- le réchauffement de l'appareillage et de la matière végétale;
- l'entraînement de l'huile essentielle;

La vapeur utilisée uniquement pour l'entraînement de l'huile essentielle est appelée vapeur utile. La quantité de vapeur utile dépend de la nature de la matière végétale et de son état physique (fraîche, séchée), de la quantité et de la composition de l'huile essentielle. Cette quantité de vapeur utile exprimée en kg, peut être estimée soit par rapport à la masse m_{HE} en kg d'huile essentielle Q_{HE} [7] ou bien par rapport à la masse M en kg de matière végétale [8]:

$$Q_{HE} = \frac{P_v}{m_{HE}} \quad [7]$$

$$Q_{MV} = \frac{P_v}{M} \quad [8]$$

où P_v désigne le le poids, en kg, du volume des eaux de distillation recueillies, en supposant que leur densité est égale à 1.

Quant à la quantité totale de vapeur nécessaire pour le processus entier d'extraction, elle est évaluée en négligeant celle utilisée pour le réchauffement de l'appareillage et de la matière végétale. Elle peut s'exprimer par l'une ou l'autre des deux relations [9] et [10]:

$$Q_{THE} = \frac{P_v + P_c}{m_{HE}} \quad [9]$$

$$Q_{TMV} = \frac{P_v + P_c}{M} \quad [10]$$

où Q_{THE} désigne la quantité totale de vapeur, exprimée en kg de vapeur par kg d'huile essentielle et Q_{TMV} celle, exprimée en kg de vapeur par kg de matière végétale; P_c est le poids, en kg, du volume C des eaux dites de condensation.

IV.4. Evaluation de la reproductibilité des résultats

Eu égard à l'exploitation et à l'interprétation ultérieure des résultats expérimentaux, nous avons jugé nécessaire d'évaluer leur reproductibilité. A cet effet, nous avons procédé, dans les

mêmes conditions opératoires, à l'entraînement à la vapeur d'eau, de trois échantillons représentatifs d'un même lot d'*Artemisia herba-alba* Asso. Lors des essais, ont été déterminés successivement

- le taux d'humidité **H** de la matière végétale, en %;
- la masse **m_{HE}** d'huile essentielle, en grammes;
- le volume **V_e** des eaux de distillation, en litres;
- le volume **C** des eaux de condensation, en litres;
- le rendement **R_{HE}** en huile essentielle, en %;
- la quantité totale de vapeur **Q_{TMV}**, en kg/kg.

La reproductibilité des résultats obtenus a été estimée par la valeur de la déviation standard relative **S_r**, exprimée en %, par l'expression [11] suivante:

$$S_r = \frac{S_d}{\bar{M}} \cdot 100 \quad [11]$$

dans laquelle **M** est la moyenne arithmétique des résultats des essais répétitifs et **S_d** la déviation standard, déterminée par la relation [12]:

$$S_d = k_p(p_1 - p_2) \quad [12]$$

Par **p₁** et **p₂** sont désignées respectivement les valeurs maximale et minimale du résultat, **k_p** est un coefficient qui prend des valeurs différentes, selon le nombre d'essais répétitifs. Dans ce cas concret, **k_p = 0,591**. Cette méthode d'appréciation de la reproductibilité est préconisée (129), lorsque le nombre d'essais répétitifs est inférieur à six.

Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau IV.1:

Tableau IV.1: Reproductibilité des résultats obtenus lors de l'extraction de l'huile essentielle d'un même lot d'*Artemisia herba-alba* Asso.

| Paramètre mesuré | 1 | Essai 2 | 3 | \bar{M} | S_d | S_r, % |
|-------------------------------|--------|------------|--------|-----------|----------------------|-------------------------|
| H, % | 9,98 | 9,98 | 9,98 | 9,98 | 0,00 | 0,00 |
| m_{HE}, g | 1,4813 | 1,4415 | 1,4742 | 1,4657 | 0,0020 | 1,36 |
| V_e, l | 10,96 | 11,06 | 10,73 | 10,92 | 0,195 | 1,78 |
| C, l | 8,19 | 8,22 | 8,14 | 8,18 | 0,047 | 0,58 |
| v, %/h | 6,16 | 6,21 | 6,03 | 6,13 | 0,106 | 1,74 |
| R_{HE}, % | 0,123 | 0,120 | 0,122 | 0,1217 | 0,0018 | 1,46 |
| Q_{TMV}, kg/kg | 15,96 | 16,07 | 15,73 | 15,92 | 0,20 | 1,26 |

En dépit du nombre important d'opérations effectuées lors des essais, et des sources d'erreurs, la reproductibilité des résultats demeure satisfaisante. Il faut noter, qu'au cours des expériences, nous avons constaté des variations de vitesse de distillation, liées aux variations de débit de la vapeur d'eau. Signalons, à ce sujet, que l'installation, telle qu'elle a été conçue, n'est pas en mesure d'assurer un débit de vapeur rigoureusement constant, pendant l'expérience. Pour y remédier, nous avons été amenés à mesurer, toutes les 15 minutes, le volume des eaux de distillation et de corriger le débit de vapeur. Par conséquent, les valeurs de vitesse de distillation sont des valeurs moyennes pour chacun des essais entrepris.

IV.5. Détermination expérimentale de la durée t d'extraction de l'huile essentielle des deux espèces d'*Artemisia*: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaïca* L.

Les essais ont été réalisés, selon le protocole expérimental précédemment établi, dans les conditions opératoires suivantes:

- masse de matière végétale M : 1200 g, répartie sur un plateau;
- vitesse de distillation v : 6 %/h;
- température T du distillat: 20°C;
- taux d'humidité H :
 - * *Artemisia herba-alba* Asso.: 11,98 %
 - * *Artemisia judaïca* L.: 11,48 %

Les expériences ont été menées jusqu'à la fin réelle du processus d'extraction. Le rendement R_{HE} en huile et la quantité de vapeur utile Q_{HE} ont été évalués toutes les 15 minutes.

Les courbes, présentées à la figure 20, montrent l'évolution du rendement R_{HE} en huile des deux plantes en fonction du temps t , lors de l'entraînement à la vapeur d'eau. Ces courbes, appelées courbes de distillation, offrent un certain nombre de renseignements. On constate tout d'abord, que la durée t d'extraction est relativement courte. En effet, la fin réelle du processus intervient au terme de deux heures d'extraction, pour l'*Artemisia herba-alba* Asso. et de deux heures 45 minutes pour l'*Artemisia judaïca* L. D'autre part, l'on notera l'allure légèrement différente du pallier de ces deux courbes, celui d'*Artemisia judaïca* L. remontant dans les 30 dernières minutes.

L'interprétation de l'allure des courbes de distillation nous amène à faire référence aussi bien à la localisation des structures sécrétrices de nos deux plantes qu'au mécanisme d'entraînement à la vapeur d'eau. Nous y reviendrons plus loin dans notre étude, pour tenter d'apporter une explication.

Les figures 21 et 22 présentent les variations du taux d'extraction τ et de la quantité de vapeur utile Q_{HE} au cours du processus d'extraction de nos deux *Artemisia*.

Nous remarquons que près de 99 % de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. est récupérée en une heure. Pour la même durée, le taux d'extraction de l'huile d'*Artemisia judaïca* L. atteint 90 %. La quantité de vapeur utile suit une évolution lente au début du processus et augmente sensiblement de manière linéaire, au-delà d'une heure d'extraction.

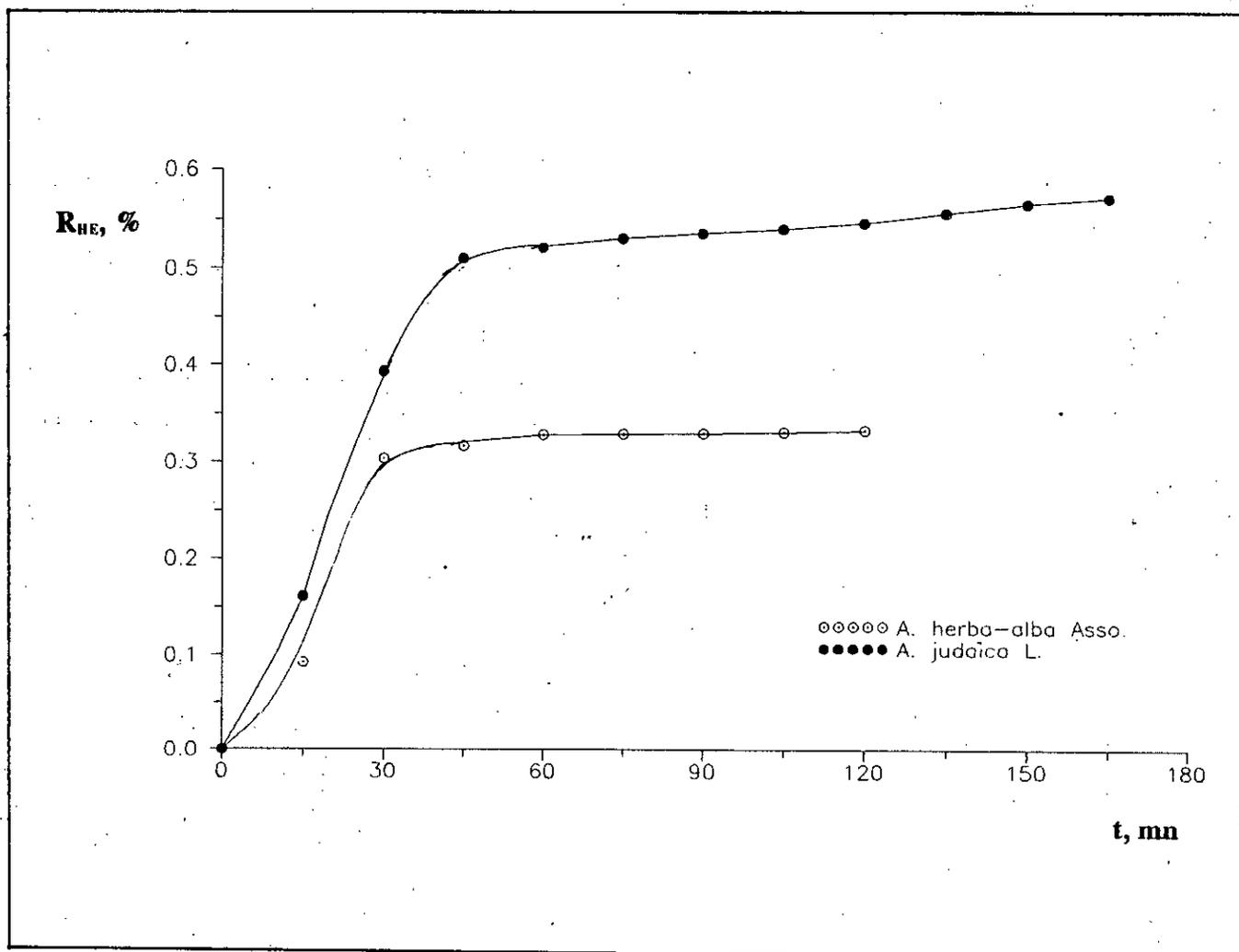


Figure 20: Evolution du rendement R_{HE} en huile des deux Artemisia: *A. herba-alba* Asso. et *A. judaica* L. en fonction du temps t , au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau

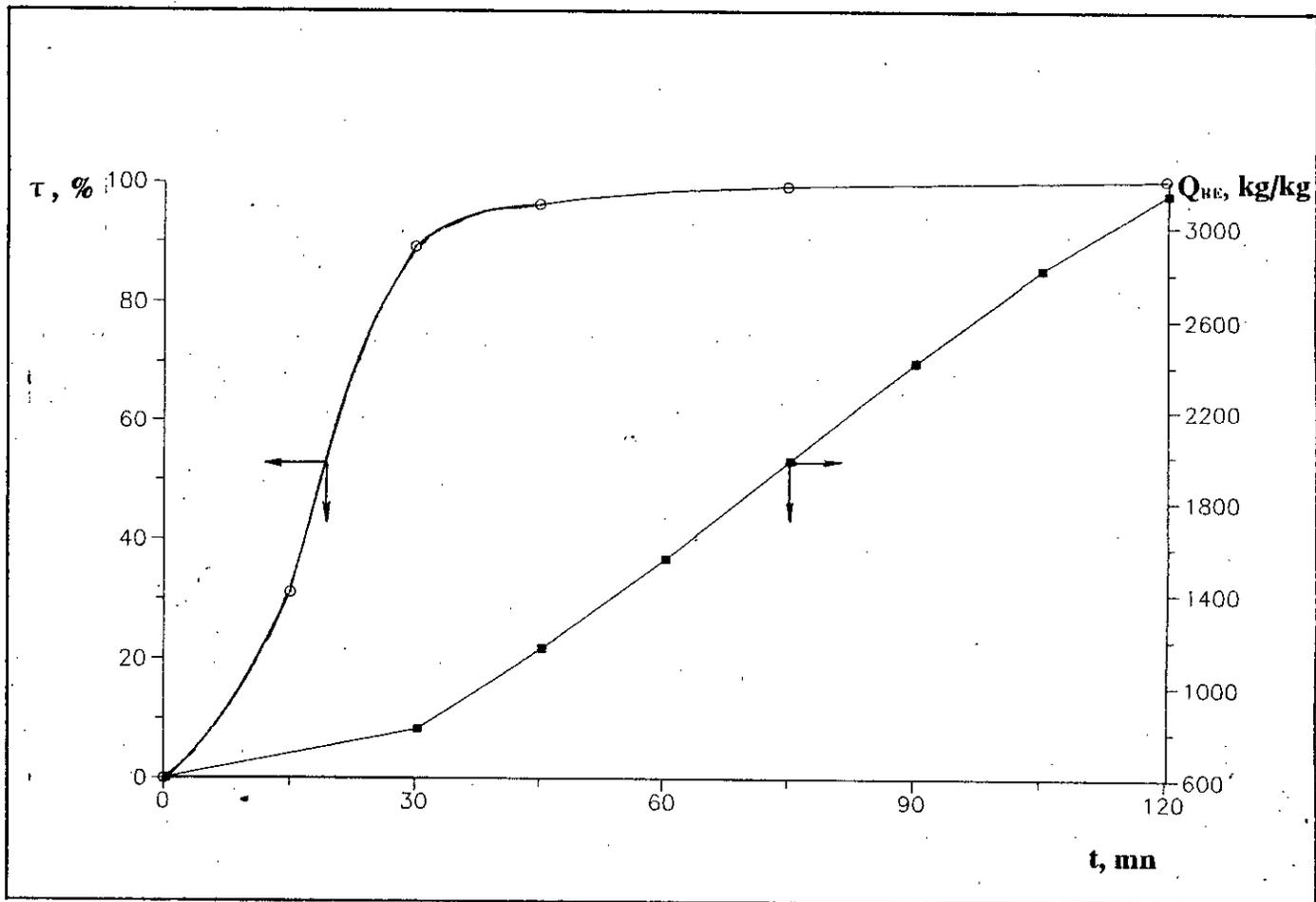


Figure 21: Evolution du taux d'extraction τ et de la quantité de vapeur utile Q_{HE} au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau de l'*Artemisia herba-alba* Asso.

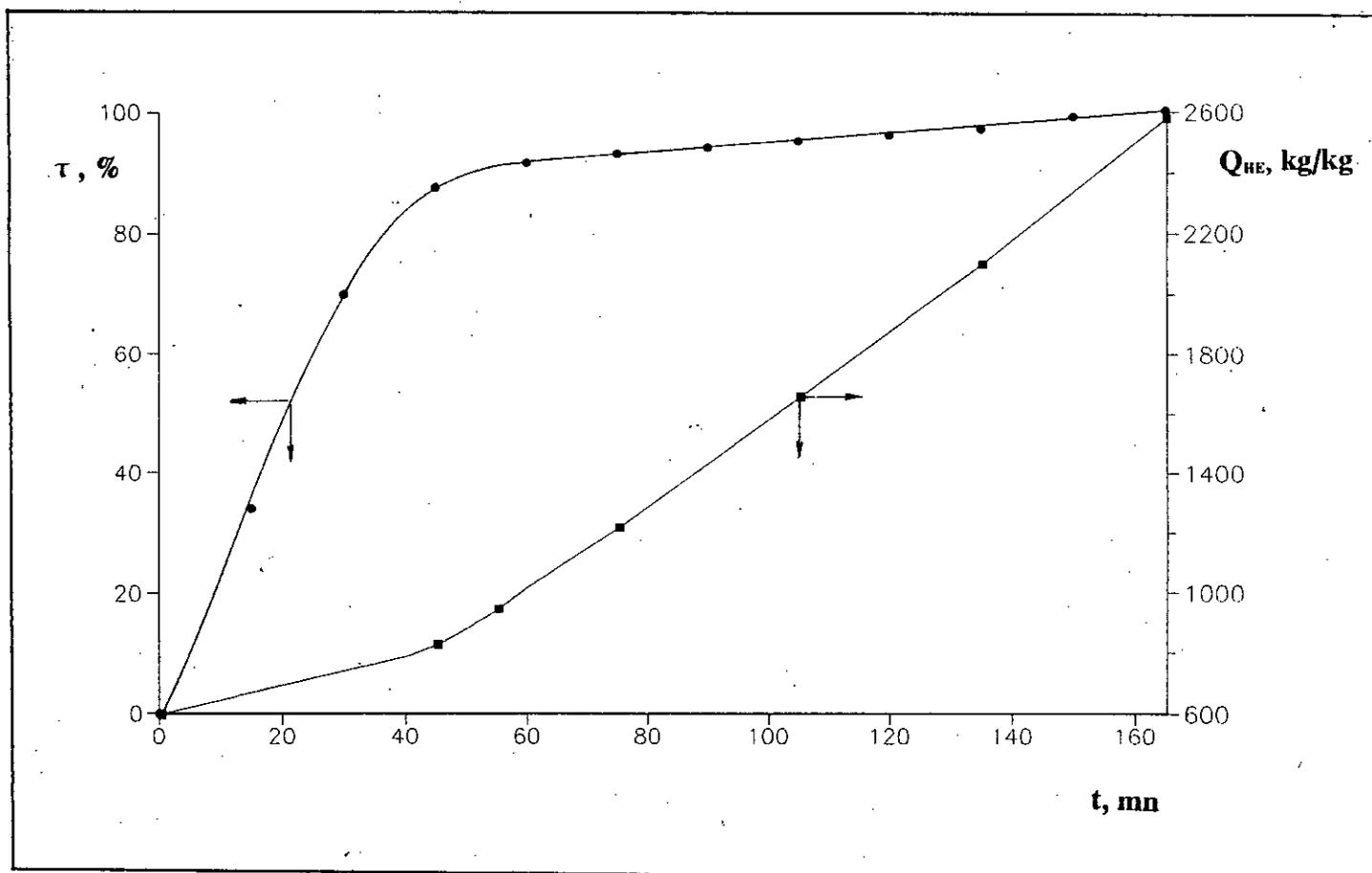


Figure 22: Evolution du taux d'extraction τ et de la quantité de vapeur utile Q_{HE} au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau de l'*Artemisia judaica* L.

Ces résultats, complétés par les données relatives au prix de l'huile et au coût de fonctionnement de l'installation, doivent être pris en compte pour une évaluation technico-économique du procédé qui permettra la détermination de la durée effective du processus.

Pour la suite de notre étude, nous avons retenu une durée de deux heures pour l'entraînement à la vapeur d'eau de nos deux plantes.

IV.6. Evolution de la composition chimique de l'huile essentielle au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau et mise en évidence des étapes du processus d'extraction

L'étude analytique a mis en évidence la composition fort complexe des huiles essentielles d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. Elles renferment des composés, représentant différentes classes chimiques: hydrocarbures, alcools, phénols, éthers, aldéhydes, cétones, acides, esters,... Les températures d'ébullition et les polarités très différentes de ces composés, laissent prévoir un comportement différent, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau et par conséquent, une évolution de la composition de l'huile essentielle, pendant l'extraction.

En effet, l'analyse par CPG des fractions d'huiles, recueillies toutes les quinze minutes, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau, nous a permis de constater et de suivre l'évolution de la teneur des constituants de ces huiles, en fonction du temps. A titre d'exemple, nous rapportons les résultats d'une série d'essais relatifs à des échantillons d'huile extraits d'*Artemisia herba-alba* Asso. et à un mélange de composition connue de quatre terpènes purs, appartenant aux différentes classes chimiques et présents dans cette huile essentielle. L'entraînement à la vapeur d'eau effectué sur ce mélange de terpènes a été réalisé à l'échelle laboratoire. Au cours des essais, des fractions aussi bien d'huile essentielle que du mélange de terpènes ont été récupérées à des intervalles de temps réguliers. La masse de chacune de ces fractions a été évaluée et leur analyse quantitative par CPG, nous a permis de suivre la teneur relative des quatre constituants communs, en l'occurrence:

- le camphène: hydrocarbure, $T_{eb} = 160^{\circ}\text{C}$;
- le cinéol-1,8: éther, $T_{eb} = 174^{\circ}\text{C}$
- le camphre: cétone, $T_{eb} = 209^{\circ}\text{C}$;
- le bornéol: alcool, $T_{eb} = 212^{\circ}\text{C}$.

La figure 23 réunit les courbes de distillation, en fonction du temps, de l'huile essentielle et de ce mélange de terpènes. Leur allure est loin d'être similaire dans leurs parties ascendantes. Ceci est probablement dû aux phénomènes de résistance au transfert de masse, occasionnés par la matière végétale.

L'histogramme de la figure 24 présente l'évolution des teneurs en composés précités dans les fractions d'huile essentielle, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau.

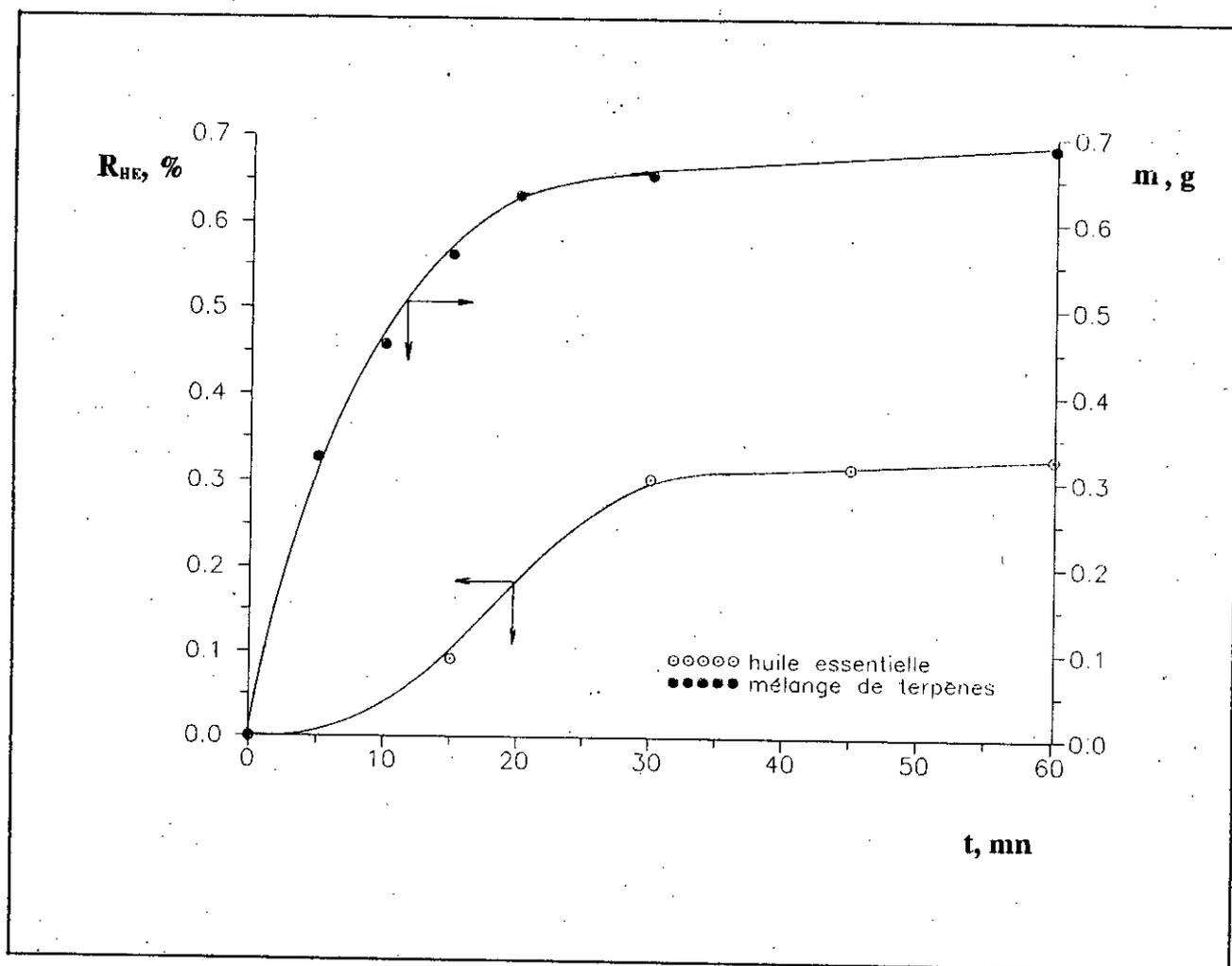


Figure 23: Courbes de distillation de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'un mélange de terpènes (camphène, cinéol-1,8, camphre et bornéol)

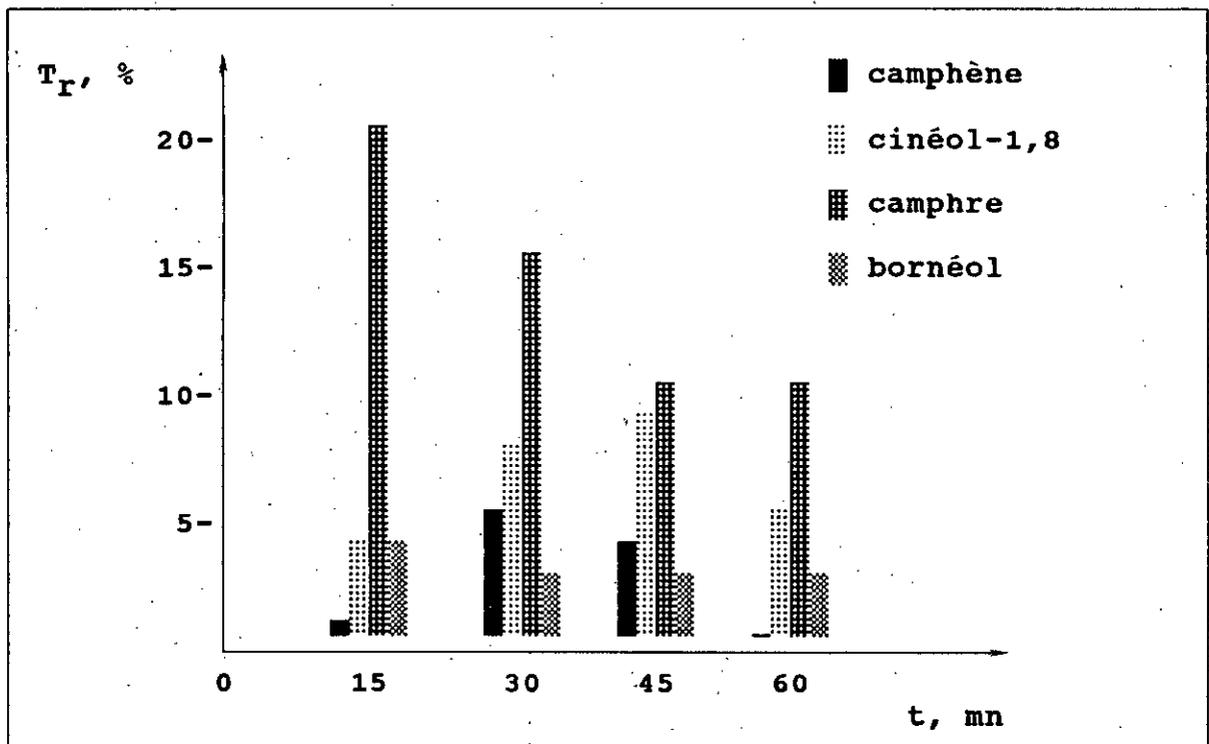


Figure 24: Evolution de la teneur relative T_r en %, des constituants de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau

Nous remarquons que la récupération des composés ne suit pas leurs températures d'ébullition. La teneur en camphre et bornéol est maximale dans la fraction recueillie à 15 minutes. Par contre, le camphène n'atteint sa teneur maximale que dans la fraction récupérée à 30 minutes, malgré que sa température d'ébullition soit inférieure d'une trentaine de degrés à celle du camphre et du bornéol. Des observations similaires sont rapportées par des travaux relatifs à l'extraction de l'huile essentielle de lavande (130), d'*Artemisia maritima* (131) et d'*Artemisia annua* (132).

En revanche, l'ordre d'entraînement des constituants du mélange de terpènes suit leurs températures d'ébullition, comme le montre l'histogramme de la figure 25 ci-dessous.

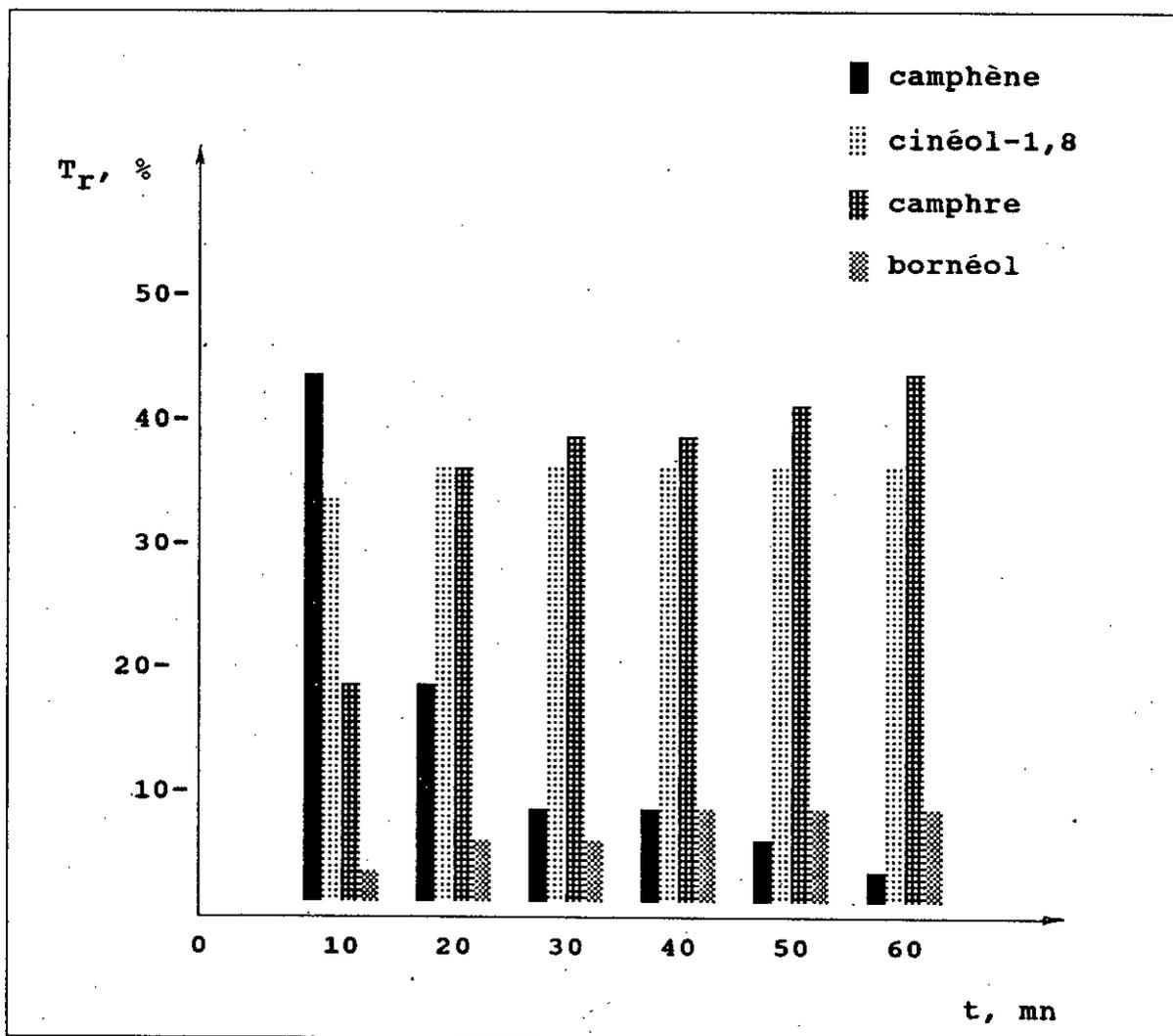


Figure 25: Evolution de la teneur relative T_r en %, des constituants du mélange de terpènes au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau

Aussi, les résultats de cette étude peuvent nous informer sur les étapes du processus d'entraînement à la vapeur d'eau de ces deux plantes qui nous intéressent. En effet, il semble qu'au début du processus, la vapeur entraîne l'huile essentielle répandue à la surface du végétal. Il s'agit des gouttes d'huile que nous avons observées sur les différents organes des deux plantes et simultanément a lieu l'hydrodiffusion de l'huile contenue dans les glandes extracellulaires à travers la cuticule par phénomène d'osmose. Ceci expliquerait, à notre avis, la pente moins raide des courbes de distillation de l'huile essentielle, comparée à celle du mélange de terpènes. En effet, la vitesse globale d'entraînement de l'huile, dans cette étape, est la résultante des vitesses de deux processus concomitants:

- l'entraînement proprement dit, qui est rapide du moment que la vapeur est en contact direct avec l'huile;
- l'osmose en milieu aqueux des constituants de l'huile enfermée dans les glandes sécrétrices, qui est assez lente.

Par ailleurs, nous avons constaté que dans les fractions d'huile récupérées pendant les premières quinze minutes, la teneur en hydrocarbures est faible; les cétones et les alcools sont prédominants. Ceci semble confirmer notre hypothèse dans le sens où l'huile répandue à la surface aurait perdue ses constituants les plus volatiles, à savoir les hydrocarbures. D'autre part, en milieu aqueux, la diffusion favorise les constituants les plus polaires (cétones et alcools) de l'huile, contenue dans les glandes sécrétrices. Aussi, les retrouve-t-on en proportions importantes dans les premières fractions.

L'intervalle de 30 à 45 minutes se caractérise par une rapide augmentation du rendement et l'huile récupérée dans cet intervalle, est plus riche en composés volatiles. Dès lors, il y a tout lieu de penser que, sous l'effet de la chaleur, les cuticules éclatent, l'huile essentielle se répand à la surface du végétal et se trouve entraînée par le flux de vapeur. Certains auteurs rapportent (132) qu'une partie de l'huile déversée est adsorbée à la surface du végétal et que sa désorption lente serait à l'origine de l'apparition du palier des courbes de distillation. Ce phénomène n'explique pas cependant, l'allure du palier de la courbe de distillation observée avec *Artemisia judaïca* L. (figure 20). A notre avis, ce palier peut être attribué à l'hydrodiffusion de l'huile stockée dans les sites intracellulaires, dont l'existence a été soupçonnée, lors des observations microscopiques du parenchyme de la plante. Cette étape est très lente du fait que l'huile doit franchir d'abord la paroi cellulaire et ensuite la cuticule épidermique.

Enfin, il est évident que les étapes de l'entraînement à la vapeur d'eau ne sont pas distinctes, néanmoins, les résultats expérimentaux témoignent de la prédominance de chacune d'elles à un moment donné du processus.

IV.7. Influence de la température du distillat sur le rendement et la composition de l'huile essentielle

Les résultats de l'étude relative à l'incidence de la température du distillat sur l'hydrosolubilité

et l'évaporation de l'huile essentielle (cf. III.4.) laissaient espérer une amélioration du rendement en huile, dans le cas, où pendant l'entraînement à la vapeur d'eau, la température du distillat est maintenue à la valeur, correspondant au minimum d'hydrosolubilité de l'huile. Afin de vérifier cela, nous avons effectué des essais d'entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle semi-pilote, sur des échantillons de divers lots représentatifs de nos deux plantes. La température du distillat à la sortie du condenseur et dans le receveur de distillat a été maintenue respectivement à 20, 30 et 40°C pour *Artemisia judaïca* L. et à 20 et 40°C pour *Artemisia herba-alba* Asso.

L'huile essentielle ou huile primaire a été séparée des eaux de distillation par décantation et son rendement a été estimé par rapport à la matière végétale sèche. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau IV.2.

Tableau IV.2: Evolution du rendement R_{HE} en huile primaire en fonction de la température T du distillat, lors de l'entraînement à la vapeur d'eau

| Température T du distillat, °C | Rendement R_{HE} en huile primaire, % | |
|--------------------------------|---|---------------|
| | A. herba-alba Asso. | A. judaïca L. |
| 20 | 0,05 | 1,42 |
| 30 | - | 1,63 |
| 40 | 0,22 | 0,75 |

Nous observons une amélioration de 78% du rendement en l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., pour les essais effectués, en maintenant la température du distillat à 40°C. Quant à la concentration de l'huile solubilisée dans les eaux de distillation appelée huile secondaire, elle n'est, dans ces conditions, que de 0,09 g/l et sa récupération peut être évitée.

Le meilleur rendement en huile d'*Artemisia judaïca* L. a été obtenu, lors des essais pour lesquels la température T du distillat a été fixé à 30°C. Toutefois, à cette température, la concentration de l'huile secondaire dans les eaux de distillation reste élevée (0,6 g/l). Aussi, leur traitement ultérieur peut être envisagé, en vue de récupérer cette huile secondaire.

L'analyse, par CPG, de ces huiles primaire et secondaire récupérées à diverses températures T du distillat a révélé quelques différences dans leur composition chimique; ceci est reporté dans le Tableau IV.3.

L'examen de ce tableau montre une diminution parfois appréciable des teneurs observées dans l'huile secondaire et relatives aux hydrocarbures monoterpéniques (α - et β pinène, limonène) à la chrysanthénone et à l'acétate de chrysanthényle. En revanche, la davanone et le cinnamate d'éthyle s'y trouvent en plus grande proportion. Quant aux teneurs en chrysanthénol, camphre et pipéritone, elles sont de même ordre de grandeur dans les deux huiles.

Tableau IV.3: Teneur relative T_r des constituants majeurs, en %, dans les huiles primaire et secondaire récupérées à différentes températures T du distillat

| Température T du distillat, °C | Huile primaire | | | Huile secondaire | | |
|--------------------------------|----------------|------|------|------------------|------|------|
| | 20 | 30 | 40 | 20 | 30 | 40 |
| α -pinène | 0,7 | 0,1 | 0,1 | tr | tr | 0,1 |
| β -pinène | 0,6 | 0,1 | 0,1 | tr | tr | 0,1 |
| Limonène | 1,5 | 0,9 | 1,1 | 0,5 | 0,2 | 0,4 |
| Chrysanthène | 9,8 | 12,7 | 5,4 | 8,7 | 5,9 | 5,0 |
| Camphre | 1,6 | 1,2 | 3,3 | 1,0 | 1,1 | 3,1 |
| Pipéritone | 53,5 | 53,7 | 54,5 | 57,9 | 57,9 | 56,8 |
| Davanone | 3,4 | 5,0 | 8,0 | 4,9 | 5,4 | 9,3 |
| Chrysanthénol | 3,6 | 3,4 | 3,3 | 3,3 | 2,9 | 2,8 |
| Acétate de chrysanthényle | 7,4 | 5,3 | 6,3 | 5,5 | 3,4 | 2,4 |
| Z- et E-cinnamate d'éthyle | 1,8 | 1,9 | 1,8 | 3,1 | 4,4 | 1,5 |

Aussi, dans le cas où la récupération de l'huile secondaire se révèle économiquement avantageuse, celle-ci peut être additionnée à l'huile primaire, sans risque majeur d'altérer sa composition.

IV.8. Mode et durée du stockage de la matière végétale et leur incidence sur le rendement et la composition de l'huile essentielle

L'étude de la variation du rendement et de la composition de l'huile essentielle, au cours du cycle végétatif d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., nous a permis de situer la meilleure période pour leur récolte, en vue de leur exploitation économique. Le caractère saisonnier de ces deux armoises nous a amené à nous intéresser au mode et à la durée de leur stockage et à la manière dont ces derniers affectent le rendement et la composition de leur huile essentielle.

L'objectif premier de cette étude est la détermination des meilleures conditions de conservation du matériel végétal afin d'assurer la récupération d'une huile de bonne qualité. En outre, elle permettra de prévoir les équipements nécessaires en fonction du choix des conditions de stockage.

Pour la réalisation de cette étude, des lots importants de ces deux plantes ont été récoltés.

Nous avons préparé des échantillons représentatifs de chacun de ces lots; une partie d'entre eux a été stockée à l'ombre et l'autre a été exposée au soleil. Dans les deux cas, la matière végétale a été étalée à l'air libre, en couche d'environ 20 cm d'épaisseur.

Un entraînement à la vapeur d'eau a été effectué, dans les mêmes conditions opératoires, sur les échantillons de plante fraîche et ceux stockés, pendant 10 et 20 jours, respectivement à l'ombre et au soleil. Le rendement en huile essentielle a été estimé par rapport à la matière végétale séchée, pour l'ensemble des essais. Le tableau IV.3. regroupe les résultats obtenus.

Tableau IV.4: Influence du mode et de la durée du stockage d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. sur le rendement R_{HE} en huile essentielle

| Stockage | mode | durée | Echantillon | | | |
|--------------------------|------|----------|-----------------------------------|--------------|-----------------------------|--------------|
| | | | <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | | <i>Artemisia judaïca</i> L. | |
| | | | H, % | R_{HE} , % | H, % | R_{HE} , % |
| Plante fraîche | | | 38,92 | 0,28 | 33,93 | 1,48 |
| Stockage à l'ombre | | 10 jours | 14,97 | 0,17 | 17,46 | 0,86 |
| | | 20 jours | 11,98 | 0,06 | 10,98 | 0,27 |
| Stockage au soleil | | 10 jours | - | - | 11,98 | 0,41 |
| | | 20 jours | 9,98 | 0,10 | 4,98 | 0,91 |

Ces résultats montrent que le stockage, quels que soient son mode et sa durée, provoque une diminution du rendement en huile. Lors du stockage à l'ombre, le rendement en huile des deux plantes diminue d'environ 40 % en 10 jours et de près de 80 % en 20 jours. Cette baisse du rendement est à attribuer aux pertes dues à l'évaporation de l'huile, qui rappelons-le, est renfermée dans les dépôts exogènes de la plante. Nous observons, en revanche, une augmentation du rendement après 20 jours de stockage au soleil. Ceci témoigne de la biosynthèse de l'huile dans les cellules végétales qui, de toute évidence, a lieu ou du moins, est favorisée, lors de l'exposition de la plante au soleil.

Il semble qu'après la cueillette, les sucres contenus dans l'organisme végétal subissent des transformations enzymatiques, conduisant à la formation de terpènes. Ce phénomène a été observé pour d'autres espèces végétales: *Iris florentina*, *Anethum graveolens*, *Mentha pipérta* (132).

Nous avons analysé les échantillons d'huile récupérée à partir des plantes fraîches et stockées pendant 20 jours à l'ombre et au soleil. L'analyse de chacun de ces échantillons a été répétée deux fois et la teneur moyenne des constituants majeurs a été évaluée. Les résultats obtenus sont regroupés respectivement dans les tableaux IV.4. et IV.5. pour chacune des deux *Artemisia*.

Tableau IV.5: Teneur relative T_r , en %, de principaux constituants de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. fraîche et stockée dans différentes conditions

| Composés | fraîche | Echantillon de plante stockée pendant 20 jours | |
|---------------------------|---------|--|-----------|
| | | à l'ombre | au soleil |
| Camphène | 3,7 | 1,8 | 2,6 |
| Cinéol-1,8 | 5,7 | 4,8 | 6,0 |
| α -thuyone | 5,0 | 14,4 | 12,6 |
| β -thuyone | 5,5 | 13,9 | 13,1 |
| Chrysanthénone | 54,5 | 27,7 | 35,2 |
| Camphre | 15,9 | 16,8 | 16,1 |
| Bornéol | 0,7 | 1,4 | 1,2 |
| Acétate de chrysanthényle | 1,8 | 1,2 | 1,2 |

Des modifications importantes de composition apparaissent dans l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso., au cours du stockage de la plante. On relève une diminution d'environ 50 % de la teneur en chrysanthénone et camphène dans l'huile récupérée de la plante stockée à l'ombre. En revanche, la teneur en thuyones et en bornéol augmentent sensiblement, alors que celle en camphre, acétate de chrysanthényle et cinéol-1,8 varie très peu.

Tableau IV.6: Teneur relative T_r , en %, de principaux constituants de l'huile essentielle d'*Artemisia judaica* L. fraîche et stockée dans différentes conditions

| Composés | fraîche | Echantillon de plante stockée pendant 20 jours | |
|----------------------------|---------|--|-----------|
| | | à l'ombre | au soleil |
| Limonène | 1,5 | 2,9 | 2,4 |
| Chrysanthénone | 9,8 | 10,0 | 10,0 |
| Camphre | 1,6 | 2,3 | 1,9 |
| Pipéritone | 53,5 | 53,8 | 52,0 |
| Davanone | 3,4 | 2,8 | 1,9 |
| Chrysanthénol | 3,6 | 3,2 | 3,8 |
| Acétate de chrysanthényle | 7,4 | 5,4 | 8,2 |
| Z- et E-cinnamate d'éthyle | 1,8 | 1,9 | 1,9 |

Quant à la composition de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L., elle ne semble pas affectée par le stockage de la plante, comme le montrent les valeurs du tableau IV.6.

Les résultats de cette étude nous amènent à recommander l'utilisation de nos deux plantes fraîchement récoltées, en vue de l'extraction de leur huile essentielle. Le stockage d'*Artemisia herba-alba* Asso. est à éviter, car, mis à part la diminution sensible du rendement en huile, il provoque une augmentation de la teneur en thuyones. En ce qui concerne *Artemisia judaïca* L., le stockage au soleil peut s'avérer avantageux à condition d'optimiser sa durée.

Par ailleurs, nous nous sommes intéressés à l'évolution du rendement et de la composition de l'huile, au cours de l'entraînement par la vapeur d'eau d'*Artemisia judaïca* L. fraîche et séchée pendant 20 jours au soleil.

Les courbes de distillation, telles que représentées sur la figure 26, ont des allures différentes. En effet, si la courbe de distillation relative à la plante fraîche a la même allure que celle décrite à la figure 23, l'allure de la courbe de distillation de la plante stockée présente deux paliers. Le premier est situé à 60 minutes, le deuxième apparaît à partir de 105 minutes.

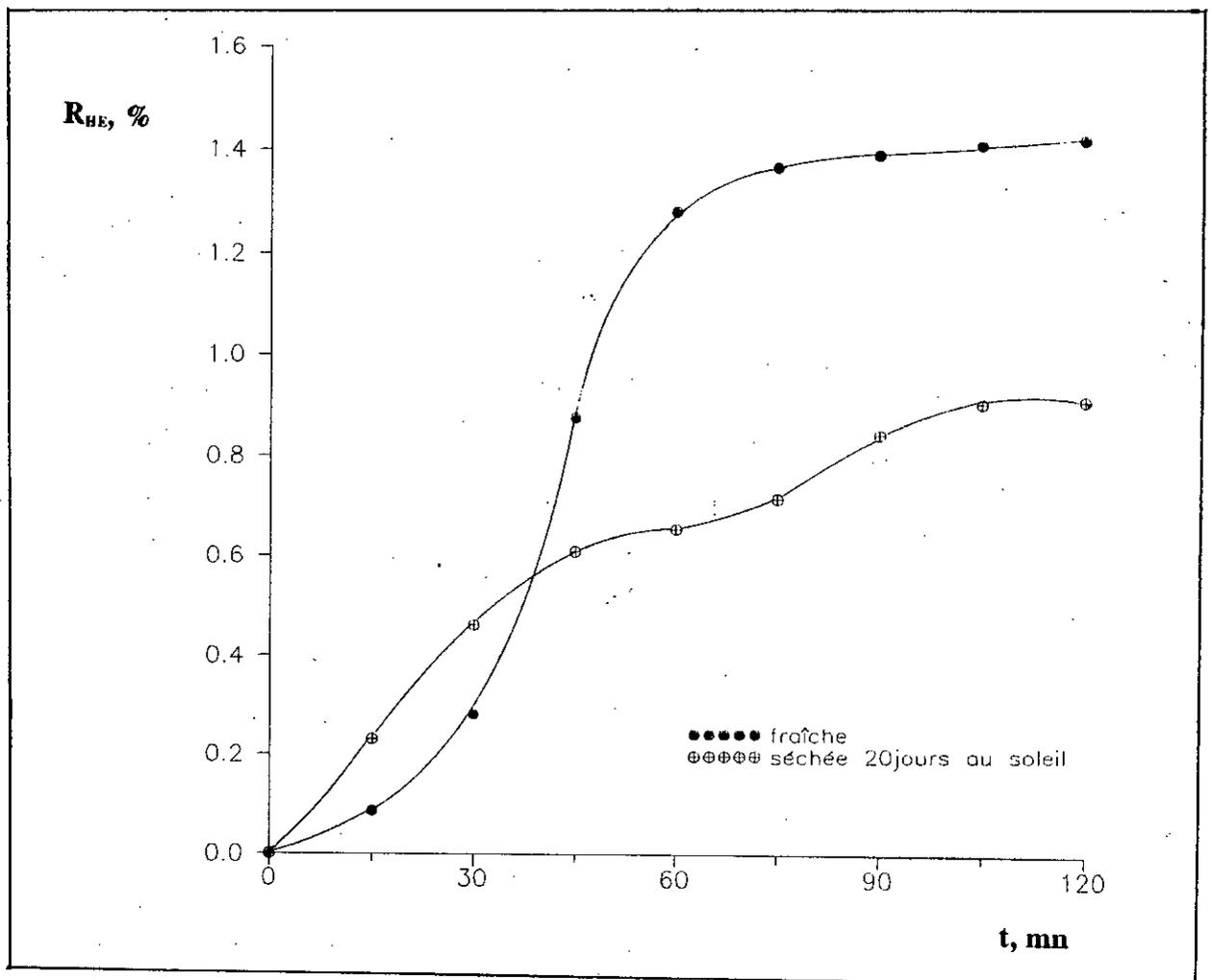


Figure 26: Courbes de distillation d'*Artemisia judaïca* L. fraîche et séchée pendant 20 jours au soleil

Il serait permis de penser qu'au cours de la première heure, la vapeur d'eau entraîne l'huile essentielle localisée à la surface et dans les sites extracellulaires du végétal. La partie ascendante de la courbe signifie que la vapeur entre rapidement en contact avec l'huile. L'accès du flux de vapeur à l'intérieur des glandes exogènes est probablement facilité par le fait que la cuticule desséchée est assez perméable. De toute évidence, l'huile récupérée pendant la deuxième heure proviendrait des sites intracellulaires où elle aurait été synthétisée, lors du stockage au soleil de la plante.

L'évolution, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau, de la composition de l'huile essentielle de cet échantillon d'*Artemisia judaïca* L. séché pendant 20 jours au soleil (figure 27) semble corroborer les considérations précédentes.

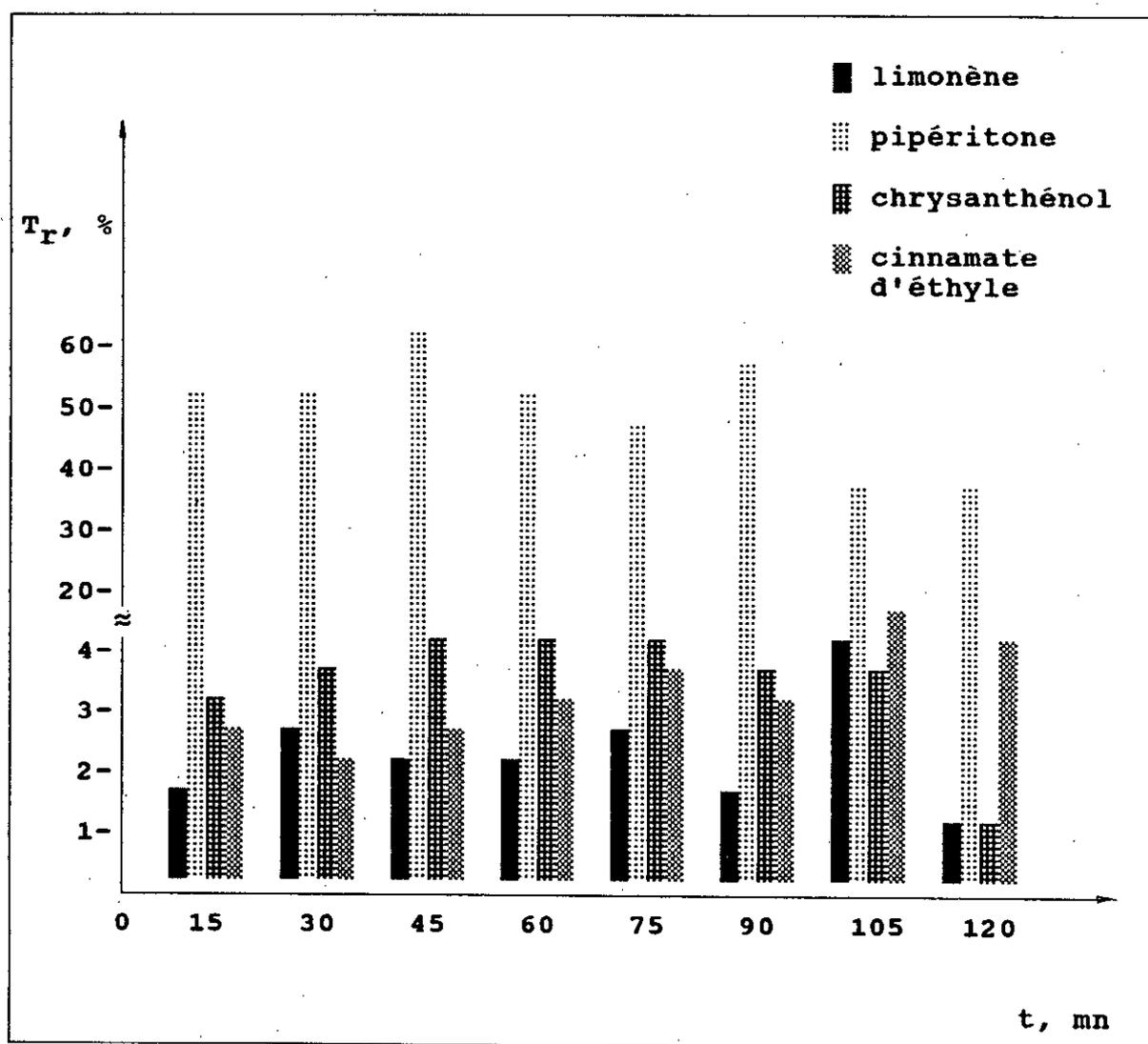


Figure 27: Evolution, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau, de la composition de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L. séchée au soleil pendant 20 jours

IV.9. Optimisation des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau

A l'instar de plusieurs facteurs (géologiques, climatiques, ontogéniques,...) les conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau affectent sensiblement le rendement et la composition de l'huile essentielle. Aussi, afin de déterminer les conditions opératoires optimales d'extraction de l'huile essentielle de nos deux *Artemisia*, à l'échelle semi-pilote, nous avons procédé à l'optimisation des trois paramètres expérimentalement accessibles. Il s'agit de la masse **M** de matière végétale à traiter, du nombre **P** de plateaux nécessaires à la répartition de la matière végétale à l'intérieur de la cucurbitte et enfin, de la vitesse **v** de distillation. A cet effet, nous avons fait appel aux deux méthodes d'usage courant en recherche industrielle: la méthode classique et la méthode par planification des expériences. Pour chaque série d'essais, nous avons pris la précaution d'utiliser des échantillons représentatifs des lots de nos deux plantes, afin que seule la variation des paramètres étudiés soit responsable de la variation du rendement en huile. La durée **t** d'extraction et la température **T** du distillat ont été fixées respectivement à deux heures et à 20°C, pour l'ensemble des essais. Le rendement **R_{HE}** en huile a été estimé par rapport à la matière végétale séchée et exprimé en pour mille.

IV.9.1. Méthode classique d'optimisation

Cette méthode consiste à faire varier un des paramètres étudiés, en gardant les autres constants et à estimer l'influence de sa variation sur la réponse du système. Aussi, nécessite-t-elle un nombre élevé d'expériences et ne permet d'évaluer que les effets individuels des paramètres étudiés sur l'évolution du phénomène étudié.

Nous présentons ici les résultats de l'optimisation classique concernant les trois paramètres qui ont retenu notre attention. Les essais ont été réalisés avec différents lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. Le domaine de variation de chacun de ces paramètres a été cependant, limité par les capacités de l'installation semi-pilote d'extraction.

Aussi, les essais visant l'optimisation de la masse **M** de matière végétale à traiter ont été effectués avec une vitesse de distillation de 6%, en déposant sur un seul plateau **P** respectivement 1000, 1200, 1400 et 1600 g de plante. Cette dernière de 1600 g correspond à un tassement maximal dans la cucurbitte. Le tableau IV.6. regroupe les résultats obtenus.

Nous constatons une variation importante du rendement **R_{HE}** en huile en fonction de la masse **M** de matière végétale traitée, que l'on peut attribuer au degré de tassement de la plante dans la cucurbitte. En effet, un tassement non approprié, soit insuffisant ou excessif, oblige la vapeur à emprunter des chemins préférentiels. Par conséquent, le flux de vapeur ne traverse qu'une partie de la matière végétale soumise à l'entraînement. Le rendement maximal est obtenu pour 1200 g, correspondant à 13,5 kg de plante par m³ de la cucurbitte.

Tableau IV.7: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. Optimisation de la masse M de matière végétale à traiter

| Conditions opératoires | Masse de matière végétale M, grammes | Rendement en huile R_{HE} , ‰ |
|------------------------|---|------------------------------------|
| t = 2 heures | 1000 | 0,49 |
| T = 20°C | 1200 | 1,10 |
| P = 1 plateau | 1400 | 0,57 |
| v = 6% | 1600 | 0,29 |

Pour déterminer la vitesse v optimale de distillation, nous avons réalisé une série d'essais, en utilisant pour chacun d'eux 1200 g de matière végétale, répartie sur un seul plateau P et en faisant varier la vitesse v de distillation entre 5 et 7 %. Les résultats réunis dans le tableau IV.7, montrent que le meilleur rendement est obtenu pour une vitesse v de distillation de 6 %.

Tableau IV.8: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. Optimisation de la vitesse v de distillation

| Conditions opératoires | Vitesse de distillation v, ‰ | Rendement en huile R_{HE} , ‰ |
|------------------------|---------------------------------|------------------------------------|
| t = 2 heures | 5 | 2,4 |
| T = 20°C | 6 | 2,8 |
| P = 1 plateau | 7 | 1,1 |
| M = 1200 g | | |

On note que l'augmentation de la vitesse v de distillation au-delà de 6 ‰ provoque une diminution appréciable du rendement R_{HE} en huile, liée probablement à la création de chemins préférentiels pour la vapeur d'eau.

En fixant à leur valeurs optimales la masse M de matière végétale à traiter et la vitesse v de distillation, nous avons utilisé respectivement 1, 2, 3 et 4 plateaux pour la répartition de la plante à l'intérieur de la cucurbite. Comme le montrent les valeurs du tableau IV.9, une diminution du rendement R_{HE} en huile est observée lorsque le nombre P de plateaux augmente.

Tableau IV.9: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d'Artemisia herba-alba Asso. Optimisation du nombre P de plateaux

| Conditions opératoires | Nombre de plateaux P | Rendement en huile R _{HE} , % ₀ |
|------------------------|-------------------------|--|
| t = 2 heures | 1 | 2,8 |
| T = 20°C | 2 | 1,1 |
| M = 1200 g au total | 3 | 0,8 |
| v = 6 % | 4 | 0,4 |

Aussi, il s'avère que l'insertion de plusieurs plateaux dans la cucurbité provoque le tassement de la plante. Ces plateaux constituent en outre, une barrière supplémentaire empêchant la libre circulation de la vapeur d'eau à travers la matière végétale.

Au vu de ces résultats, les valeurs optimales des paramètres étudiés se résument comme suit:

- masse **M** de matière végétale à traiter: **1200 g**;
- vitesse **v** de distillation: **6 %**;
- nombre **P** de plateaux: **1**.

IV.9.2. Optimisation par planification des expériences

La méthode d'optimisation par planification des expériences consiste à élaborer un programme, fixant le nombre et les conditions opératoires des essais à réaliser, pour étudier le comportement d'un système. Cette méthode permet d'évaluer les relations qui existent entre les variables d'entrée et la réponse du système, avec une précision appréciable, moyennant un nombre réduit d'essais. Le plan des expériences prévoit la variation simultanée de l'ensemble des paramètres étudiés dans le domaine expérimental choisi, de manière à recueillir le maximum d'informations sur le comportement du système et d'établir un modèle mathématique (133).

Nous avons opté pour le plan factoriel à deux niveaux de trois variables en l'occurrence, la masse **M** de matière végétale à traiter, la vitesse **v** de distillation et le nombre **P** de plateaux. La méthodologie (134) consiste à fixer les valeurs minimales et maximales des paramètres et à programmer huit essais, correspondant au nombre total de combinaisons des deux niveaux de trois variables. Dans ce cas, le domaine expérimental est délimité par les arêtes d'un cube, dont chacun des sommets correspond à une condition expérimentale donnée.

Nous présentons ici la démarche adoptée pour l'élaboration du plan des expériences, l'établissement et l'exploitation du modèle mathématique. Les essais ont été effectués avec des échantillons représentatifs d'*Artemisia judaïca* L.

Sur la base des résultats de l'optimisation classique, nous avons fixé les niveaux inférieurs et supérieurs des paramètres étudiés, comme mentionnés dans le tableau IV.10 ci-après.

Tableau IV.10: Optimisation de l'entraînement à la vapeur d'eau par planification des expériences. Niveaux inférieurs et supérieurs choisis des paramètres étudiés

| Paramètres étudiés | Niveau inférieur (inf) | Niveau supérieur (sup) |
|------------------------------|------------------------|------------------------|
| Masse M de matière, g | 1000 | 1400 |
| Vitesse v , % | 5 | 7 |
| Nombre P de plateaux | 1 | 2 |

Pour simplifier l'écriture, les variables réelles **M**, **v** et **P** ont été remplacées par des variables réduites x_1 , x_2 et x_3 , calculées par les relations suivantes:

- x_1 : variable réduite de masse **M** de matière végétale à traiter

$$x_1 = \frac{M - M_m}{\Delta M} \quad [13]$$

- x_2 : variable réduite de vitesse **v** de distillation

$$x_2 = \frac{v - v_m}{\Delta v} \quad [14]$$

- x_3 : variable réduite du nombre **P** de plateaux

$$x_3 = \frac{P - P_m}{\Delta P} \quad [15]$$

avec respectivement:

$$M_m = \frac{M_{\text{inf}} + M_{\text{sup}}}{2} = \frac{1000 + 1400}{2} = 1200, \quad [16]$$

$$v_m = \frac{v_{inf} + v_{sup}}{2} = \frac{5 + 7}{2} = 6, \quad [17]$$

$$P_m = \frac{P_{inf} + P_{sup}}{2} = \frac{1 + 2}{2} = 1,5, \quad [18]$$

et:

$$\Delta M = \frac{M_{sup} - M_{inf}}{2} = \frac{1400 - 1000}{2} = 200, \quad [19]$$

$$\Delta v = \frac{v_{sup} - v_{inf}}{2} = \frac{7 - 5}{2} = 1, \quad [20]$$

$$\Delta P = \frac{P_{sup} - P_{inf}}{2} = \frac{2 - 1}{2} = 0,5. \quad [21]$$

Le domaine expérimental est alors décrit, dans un repère orthonormé à trois dimensions, correspondant aux variables réduites x_1 , x_2 , x_3 , par un cube centré à l'origine des axes correspondant en variables réelles à M_m , v_m et P_m . Notons que les variables P_m et ΔP sont fictives, mais leurs valeurs seront utilisées lors des calculs ultérieurs.

Les conditions opératoires des essais programmés et réalisés ainsi que les rendements obtenus sont regroupés dans le tableau IV.11.

Nous avons choisi de représenter le rendement R_{HE} en huile, désigné par y^* , par une fonction polynomiale en x_1 , x_2 et x_3 , du premier ordre:

$$y^* = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_3x_3 + a_{12}x_1x_2 + a_{13}x_1x_3 + a_{23}x_2x_3 + a_{123}x_1x_2x_3 \quad [22]$$

Pour chacun des essais, en substituant dans l'équation [22], les variables x_1 , x_2 , x_3 et le rendement y^* par leurs valeurs respectives expérimentales, nous obtenons un système à huit équations, dont la résolution a permis de déterminer les huit inconnues, en l'occurrence, les huit coefficients, a_0 à a_{123} .

Tableau IV.11: Optimisation de l'entraînement à la vapeur d'eau par planification des expériences. Rendements R_{HE} en huile essentielle obtenus

| Essai | Coordonnées réduites | | | Coordonnées réelles | | | Rendement en huile $R_{HE}, \%$ |
|-------|----------------------|-------|-------|---------------------|---|---|------------------------------------|
| | x_1 | x_2 | x_3 | M | v | P | |
| I | +1 | +1 | +1 | 1400 | 7 | 2 | 0,69 |
| II | -1 | +1 | +1 | 1000 | 7 | 2 | 6,23 |
| III | -1 | +1 | -1 | 1000 | 7 | 1 | 5,25 |
| IV | +1 | +1 | -1 | 1400 | 7 | 1 | 4,47 |
| V | +1 | -1 | +1 | 1400 | 5 | 2 | 6,26 |
| VI | -1 | -1 | +1 | 1000 | 5 | 2 | 6,53 |
| VII | +1 | -1 | -1 | 1400 | 5 | 1 | 5,91 |
| VIII | -1 | -1 | -1 | 1000 | 5 | 1 | 2,80 |

L'équation exprimant la variation du rendement y^* en huile en fonction des variables réduites de masse x_1 de matière végétale à traiter, de x_2 vitesse de distillation et du nombre de plateaux x_3 s'écrit alors :

$$y^* = 4,767 - 0,435x_1 - 0,607x_2 + 0,160x_3 - 1,145x_1x_2 - 1,017x_1x_3 - 0,860x_2x_3 - 0,172x_1x_2x_3 \quad [23]$$

Les valeurs des coefficients de cette équation nous permettent ainsi d'évaluer l'influence, sur le rendement R_{HE} en huile, des effets individuels de chacun des paramètres étudiés et de leurs interactions. On relève que l'effet simple de la vitesse (x_2) de distillation sur le rendement en huile est prédominant par rapport aux effets simples de la masse (x_1) de matière végétale à traiter et du nombre de plateaux (x_3). Parmi les effets conjugués de deux paramètres, les plus importants sont les interactions masse-vitesse et masse-nombre de plateaux. En revanche, le rendement est très peu affecté par l'interaction des trois paramètres.

L'analyse mathématique de la fonction [23] montre qu'elle possède un extremum. Nous avons calculé l'optimum de cette fonction, en résolvant le système à trois équations [24] obtenues en annulant respectivement ses dérivées partielles par rapport à x_1 , x_2 et x_3 :

$$\begin{aligned}
 \frac{dy^*}{dx_1} = 0 \text{ soit } & -0,435 - 1,145x_2 - 1,017x_3 - 0,172x_2x_3 = 0 \\
 \frac{dy^*}{dx_2} = 0 \text{ soit } & -0,607 - 1,145x_1 - 0,860x_3 - 0,172x_1x_3 = 0 \quad [24] \\
 \frac{dy^*}{dx_3} = 0 \text{ soit } & 0,160 - 1,017x_1 - 0,860x_2 - 0,172x_1x_2 = 0
 \end{aligned}$$

La résolution de ce système revient à trouver les solutions de l'équation du second degré en x_1 suivante:

$$0,187x_1^2 + 1,874x_1 + 0,068 = 0 \quad [25]$$

Cette équation admet une solution réelle: $x_1 = -0,037$. Les valeurs des autres variables correspondantes sont: $x_2 = 0,231$; $x_3 = -0,662$.

L'optimum de la fonction $y^*(x_1, x_2, x_3)$ est donc situé en coordonnées réduites, au point: **(-0,037, 0,231, -0,662)**. Ceci correspond, en coordonnées réelles, au point **(M=1193; v=6,23; P=1)**. Nous remarquons que ce point est proche de l'optimum déterminé précédemment par la méthode d'optimisation classique: **(M=1200; v=6; P=1)**.

Si le modèle mathématique établi nous a permis de déterminer les valeurs optimales des paramètres étudiés, sa validité est cependant limitée. En effet, ce modèle ne tient pas compte des autres paramètres susceptibles d'affecter le rendement R_{HE} en huile, tels que l'origine de la plante, sa période de récolte, son stockage, etc. Aussi, notre tentative d'effectuer une analyse statistique de ce modèle proposé a échoué. Nous avons été confrontés au problème de la non représentativité des échantillons, dû au stockage prolongé de la plante. Pour la même raison, les essais, réalisés dans les conditions optimales, ont fourni un rendement moyen de 6,05 % qui ne peut être comparé aux rendements obtenus, lors des huit essais effectués, dans le cadre de la planification des expériences.

IV.9.3. Variation de la composition et des propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle en fonction des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau

L'analyse, par CPG, des échantillons d'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L., récupérés lors des essais relatifs à la planification des expériences, nous a permis d'observer et d'évaluer

l'incidence des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau, sur la composition de l'huile essentielle. Aussi, le tableau IV.12. réunit les diverses teneurs relatives en constituants majoritaires observées pour l'ensemble des échantillons, y compris celui obtenu dans les conditions optimales, ainsi que leurs propriétés physico-chimiques.

Tableau IV.12: Incidence des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau sur la teneur relative des constituants majoritaires et les propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L.

| Masse M, g | 1400 | 1000 | 1000 | 1400 | 1400 | 1000 | 1400 | 1000 | 1200 |
|---|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Vitesse v, % | 7 | 7 | 7 | 7 | 5 | 5 | 5 | 5 | 6 |
| Nombre de plateaux P | 2 | 2 | 1 | 1 | 2 | 2 | 1 | 1 | 1 |
| Teneur relative T_r en constituants majoritaires, % | | | | | | | | | |
| Limonène | 1,3 | 1,2 | 2,3 | 1,0 | 2,1 | 1,1 | 2,9 | 1,4 | 2,9 |
| Cinéol-1,8 | 1,8 | 1,0 | 1,1 | 1,1 | 1,2 | 0,8 | 1,2 | 0,8 | 1,5 |
| Chrysanthénone | 20,4 | 23,2 | 18,1 | 19,6 | 15,6 | 12,9 | 16,1 | 13,7 | 14,5 |
| Pipéritone | 41,6 | 44,5 | 45,8 | 49,4 | 55,1 | 53,3 | 53,2 | 59,4 | 50,6 |
| Davanone | 0,6 | 5,7 | 1,8 | 2,9 | 2,5 | 0,4 | 0,4 | 0,3 | 0,1 |
| Chrysanthénol | 0,2 | 1,0 | 1,1 | 0,9 | 0,6 | 1,1 | 1,9 | 2,2 | 2,8 |
| Acétate de chrysanthényle | 1,2 | 0,6 | 1,2 | 0,9 | 1,2 | 2,0 | 2,3 | 2,7 | 3,8 |
| Z-et E-cinnamate d'éthyle | 1,2 | 3,1 | 1,7 | 2,0 | 1,3 | 6,0 | 2,0 | 6,0 | 2,0 |
| Propriétés physico-chimiques de l'huile | | | | | | | | | |
| Densité, d_{20}^{20} | - | 0,9527 | 0,9511 | 0,9437 | 0,9594 | 0,9693 | 0,9633 | 0,9609 | 0,9641 |
| Indice de réfraction, η_D^{20} | 1,4893 | 1,4878 | 1,4863 | 1,4863 | 1,4851 | 1,4813 | 1,4883 | 1,4846 | 1,4859 |
| Indice d'acide | 4,40 | 4,43 | 5,50 | 5,41 | 9,96 | 8,65 | 7,96 | 9,20 | 8,33 |

L'examen de ces résultats permet de formuler les principales conclusions de cette étude:

- la composition et les propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle sont fortement influencées par les conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau. Les variations observées sont à attribuer notamment à la manière dont est assuré le contact intime entre matière végétale et vapeur d'eau;

- la variation de la vitesse de distillation influe, bien plus que la masse de matière végétale traitée et le nombre de plateaux, sur la composition et les propriétés physico-chimiques de l'huile. On constate, en effet, une nette différence entre les échantillons d'huile obtenus avec une vitesse de distillation de 7% et ceux obtenus avec une vitesse de 5%. Les premiers ont des densités, des indices d'acide et des teneurs en pipéritone plus faibles. Par contre, leur teneur en chrysanthénone est plus élevée. Les teneurs en constituants majoritaires et les propriétés physico-chimiques de l'huile, récupérée lors de l'essai réalisé avec une vitesse optimale de 6%, sont situées globalement à mi-chemin entre les deux précédentes.

Chapitre V

Extraction des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L.

| | |
|--|-----|
| V.1. Définition du système solide-liquide | 78 |
| V.1.1. La phase solide | 78 |
| V.1.2. La phase liquide | 80 |
| V.1.3. La concrète | 80 |
| V.2. Etude analytique des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. | 80 |
| V.2.1. Analyse des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. par chromatographie en phase gazeuse (CPG) | 81 |
| V.2.2 Analyse des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. par spectroscopie infra-rouge (IR) | 83 |
| V.2.2.1. Analyse qualitative | 83 |
| V.2.3.2. Analyse quantitative | 86 |
| V.3. Activité antimicrobienne des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. | 90 |
| V.4. Mise en oeuvre de l'extraction à l'éther de pétrole des concrètes d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. | 91 |
| V.4.1. Extraction statique en discontinu ou batch | 92 |
| V.4.2. Extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée | 96 |
| V.4.3. Extraction à charge dispersée | 100 |
| V.5. Cinétique de l'extraction d'Artemisia herba-alba Asso. et d'Artemisia judaïca L. à l'éther de pétrole | 102 |
| V.5.1 Evolution de la concentration du soluté dans la phase liquide en fonction du temps | 103 |
| V.5.2. La fonction cinétique γ | 113 |
| V.5.2.1. Définition | 113 |
| V.5.2.2. Détermination de la fonction cinétique | 114 |
| V.5.3. La fonction standard $\bar{\phi}^*$ | 120 |
| V.5.3.1. Rappel théorique | 120 |
| V.5.3.2. Evaluation de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ | 128 |
| V.5.4. Intérêt pratique d'utilisation des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$ pour la détermination et la prévision de la cinétique d'extraction des concrètes des deux Artemisia à l'éther de pétrole | 134 |
| V.5.4.1. Cas où l'équation de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ est préalablement établie | 134 |
| V.5.4.2. Cas où l'équation de la fonction cinétique γ est préalablement établie | 136 |
| V.5.5. Limites d'utilisation des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$ | 138 |
| V.6. Dimensionnement d'un extracteur à vis convoyeuse destiné à l'extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. | 141 |
| V.6.1. Formulation du problème | 141 |
| V.6.2. Bilan matière | 143 |
| V.6.3. Estimation de la longueur L de l'extracteur et du temps de séjour t_s de la matière végétale | 147 |

En dépit de la place qu'occupe actuellement l'extraction solide-liquide dans les industries alimentaire, pharmaceutique, des parfums, etc., ce procédé demeure encore mal maîtrisé, notamment lorsque le solide est d'origine végétale. La spécificité et la complexité de la structure végétale, au même titre que la diversité des produits qu'elle renferme, font de chaque système solide-liquide un cas particulier, dont l'étude nécessite une approche expérimentale, indispensable à une meilleure compréhension du phénomène de transfert de matière.

Dans le cadre de cette recherche, nous nous sommes intéressés à l'extraction de la concrète respectivement d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., par l'éther de pétrole. Mis à part l'apport théorique que peut représenter une telle étude, elle se veut surtout une contribution à la connaissance de la concrète extraite de ces deux plantes et à la mise en oeuvre de sa récupération.

Les essais d'extraction, réalisés dans divers appareillages et dans des conditions opératoires différentes, nous ont fourni des indications sur les phénomènes mis en jeu. Par ailleurs, ils nous ont permis d'accéder à la concrète et d'aborder son étude analytique.

L'analyse fondamentale du système solide-liquide, effectuée sur la base des résultats expérimentaux, a abouti à une approche originale d'évaluation de la cinétique d'extraction et ce, à l'aide de deux fonctions mathématiques, en l'occurrence, la fonction cinétique et la fonction standard.

Au terme de cette étude, nous proposerons le dimensionnement d'un extracteur à vis convoyeuse, travaillant à l'échelle semi-pilote et destiné à extraire la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso.

V.1. Définition du système solide-liquide

L'extraction solide-liquide consiste à récupérer un ou plusieurs produits situés dans une matrice solide, en mettant celle-ci en contact avec un solvant liquide. Cette extraction est tributaire d'un certain nombre de paramètres liés aussi bien à la nature des deux phases qu'aux conditions dans lesquelles est assuré leur contact.

V.1.1. La phase solide

La phase solide, objet de cette étude, est constituée des parties aériennes de nos deux *Artemisia*. Pour cela, nous avons utilisé différents lots d'*Artemisia herba-alba* Asso., récoltée dans la région de Bordj Bou Arréridj, ville située à 230 km à l'Est d'Alger, sur les Hauts Plateaux. Certains de ces lots ont été recueillis en période de formation des boutons floraux (Octobre 1989) et d'autres en période de floraison (Décembre 1991). Par ailleurs, quelques essais d'extraction ont porté sur des lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. cueillie, en Mai 1991 près de la ville d'Aflou, située à 450 km au Sud-Ouest d'Alger. Quant aux essais d'extraction d'*Artemisia judaïca* L., ils ont été réalisés avec les sommités fleuries de la plante, récoltées en Mars 1991 du peuplement de Tamanrasset dans le Sud algérien.

L'évaluation des propriétés d'un tel solide et l'étude de son comportement, au cours du

processus d'extraction, présentent des difficultés supplémentaires, du fait que la matière végétale est vivante et donc évolutive. En effet, sa texture et sa composition chimique sont sujettes à des variations importantes durant son cycle végétatif et lors de son stockage. Aussi, avons-nous pris la précaution, pour chaque série d'essais d'extraction, d'utiliser des échantillons représentatifs d'un même lot de plante, dont le taux d'humidité a été systématiquement contrôlé.

Par ailleurs, dans la matière végétale, caractérisée par ses particules de formes et de dimensions irrégulières, la répartition du soluté au sein de cette matrice solide n'est plus uniforme. Cependant, tout substrat végétal, de par son comportement vis-à-vis d'un solvant, peut être décomposé en ses quatre éléments suivants (135):

- une partie solide non extractible, jouant le rôle de support inerte du soluté et donc non concerné directement par le processus d'extraction;
- une partie extractible, contenant, outre le soluté désiré, d'autres produits;
- de l'eau libre;
- de l'air interstitiel.

L'eau et le support inerte sont généralement considérés comme un seul élément, en raison de leur insolubilité dans le solvant, si celui-ci est hydrophobe.

Appliquée aux plantes aromatiques, l'extraction solide-liquide permet de récupérer différents produits, selon la nature du solvant et la technique utilisée (132), comme le montre la figure 28.

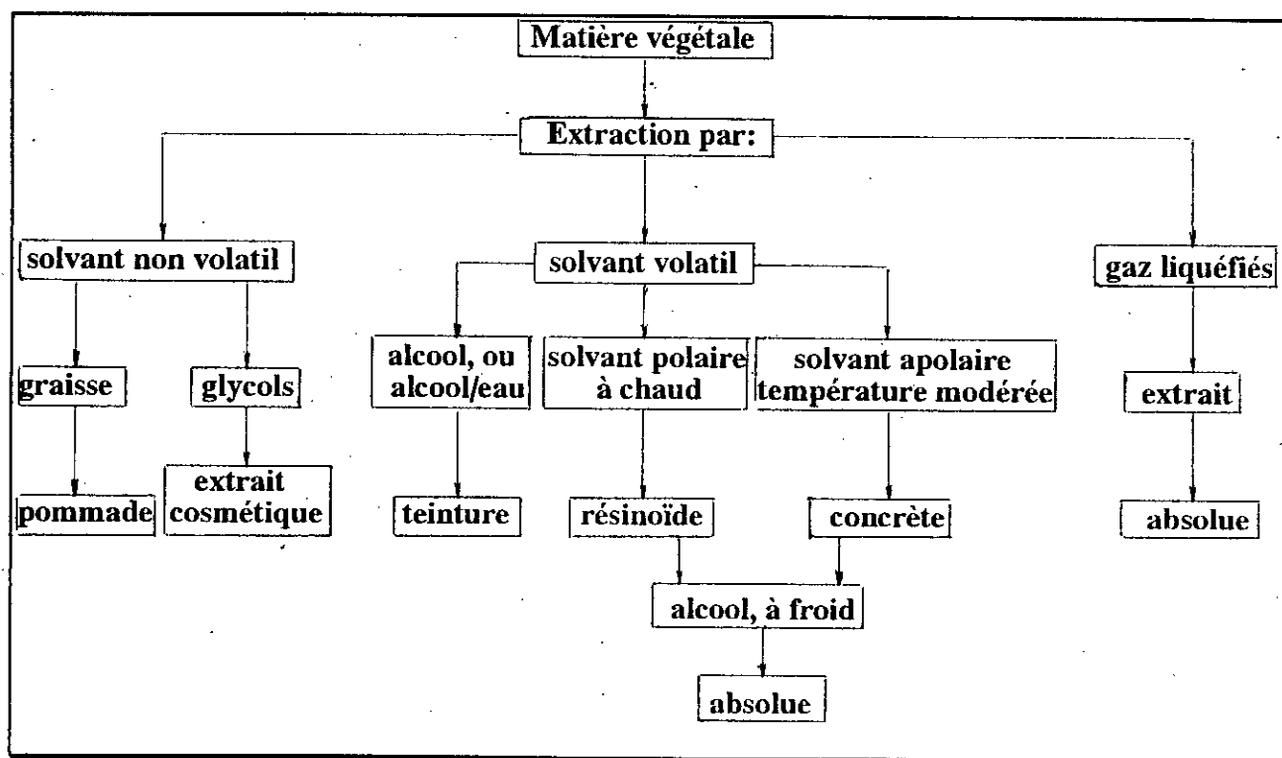


Figure 28: Extraction par solvants: produits d'extraction des plantes aromatiques selon la nature du solvant et la technique utilisée

V.1.2. La phase liquide

Parmi les solvants utilisés dans l'extraction des concrètes, l'hexane et l'éther de pétrole sont actuellement les plus usités. Aussi, notre choix s'est porté sur l'éther de pétrole, en raison de sa disponibilité à l'échelle nationale. Toutefois, au cours de cette étude, nous avons utilisé l'éther de pétrole désodorisé, de qualité Merck. Deux fractions ont été testées: [45-65°C] et [65-95°C]. Cette dernière a été retenue du fait qu'elle conduit à de meilleurs rendements en concrète. Les propriétés physico-chimiques de cette fraction sont les suivantes:

Densité, $d_{20}^{20} = 0,700$

Indice de réfraction, $n_D^{20} = 1,3920$

Teneur en hydrocarbures aromatiques: inférieure à 2%.

Dans la suite de notre étude, nous utiliserons le terme d'hydromodule h_m , pour désigner le rapport entre le volume de la phase liquide et la masse de matière végétale, exprimé en m^3/kg .

V.1.3. La concrète

Au terme d'une extraction par solvant volatil et ce, quelle que soit la technique utilisée, la phase liquide chargée en extrait ou "miscella" est séparée du solide et subit une distillation atmosphérique suivie d'une distillation sous vide. Ces opérations permettent de récupérer le solvant et d'obtenir un extrait, appelé concrète, dans notre cas.

En tant que produits aromatiques naturels, les concrètes sont souvent très appréciées. Obtenues dans des conditions moins agressives, elles restituent plus fidèlement que les huiles essentielles, l'odeur des plantes et la conservent plus longtemps, grâce aux antioxydants et aux fixateurs naturels d'odeur qu'elles renferment.

A l'état brut, les concrètes sont utilisées en médecine, en cosmétique et dans l'industrie alimentaire. Dans ces cas, un contrôle rigoureux de leur teneur en solvant est exigé. Le plus souvent, elles sont traitées, à froid, à l'alcool éthylique pour obtenir une absolue, qui ne contient que les principes odorants.

V.2. Etude analytique des concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

Face à la complexité de la composition chimique des concrètes et au secret qui entoure certaines productions, notamment dans l'industrie des parfums, les techniques d'analyse instrumentale demeurent encore impuissantes. Dans la plupart des cas, le seul juge de la qualité d'une concrète est l'analyse organoleptique.

Toutefois, en ce qui concerne cette étude et sans avoir l'ambition d'élucider totalement la composition de nos deux concrètes ou de substituer l'analyse organoleptique, nous avons eu recours

à la chromatographie en phase gazeuse (CPG) et à la spectroscopie infra-rouge (IR), pour estimer la teneur des constituants majoritaires de l'huile essentielle contenue dans ces concrètes. Cette dernière technique d'analyse (IR) sera retenue comme moyen d'appréciation de la qualité de nos échantillons.

V.2.1. Analyse des concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. par chromatographie en phase gazeuse (CPG)

Les échantillons de concrète des deux plantes ont été analysés, par CPG, en solution dans le tétrachlorométhane (CCl₄), Merck, dans les mêmes conditions opératoires que leurs huiles essentielles respectives, données précédemment dans le tableau III.2. Les chromatogrammes, obtenus sur colonne PEG 20M et présentés sur les figures 29 et 30, sont identiques à ceux des huiles essentielles.

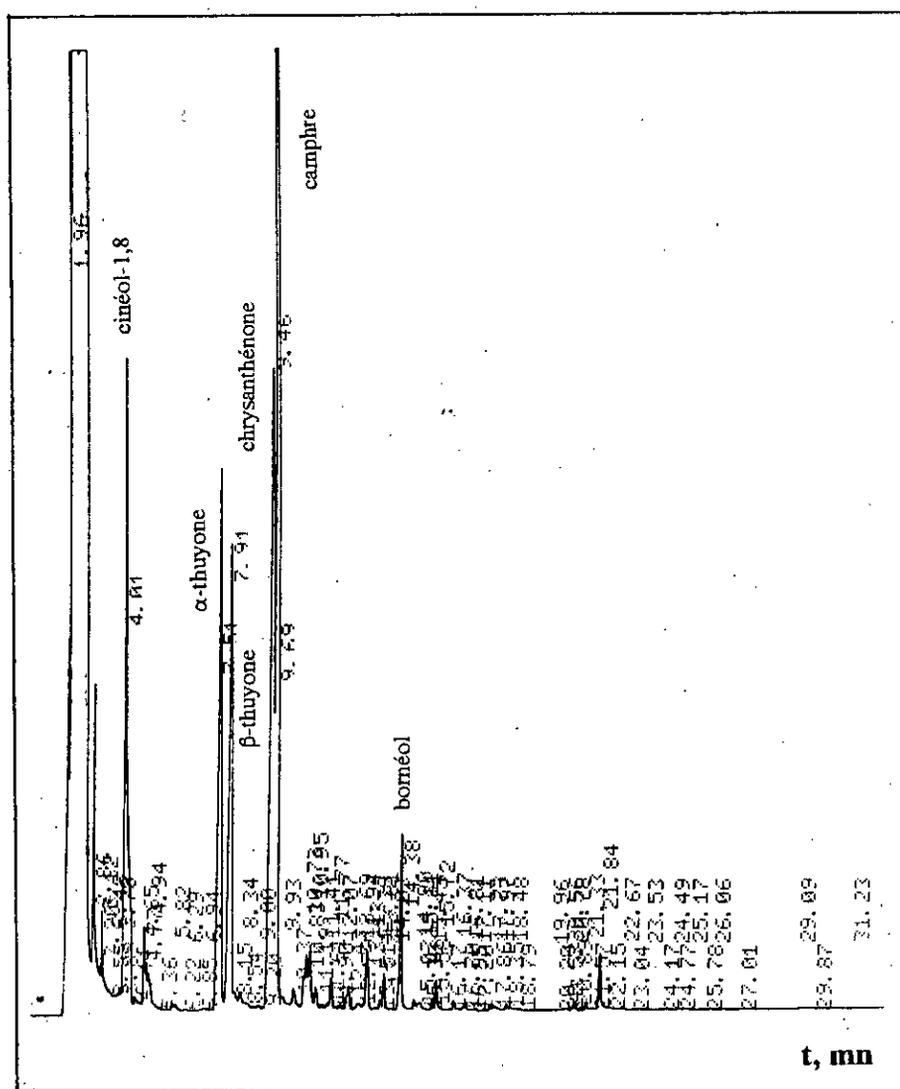


Figure 29: Chromatogramme de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso., éluee sur colonne capillaire PEG 20M

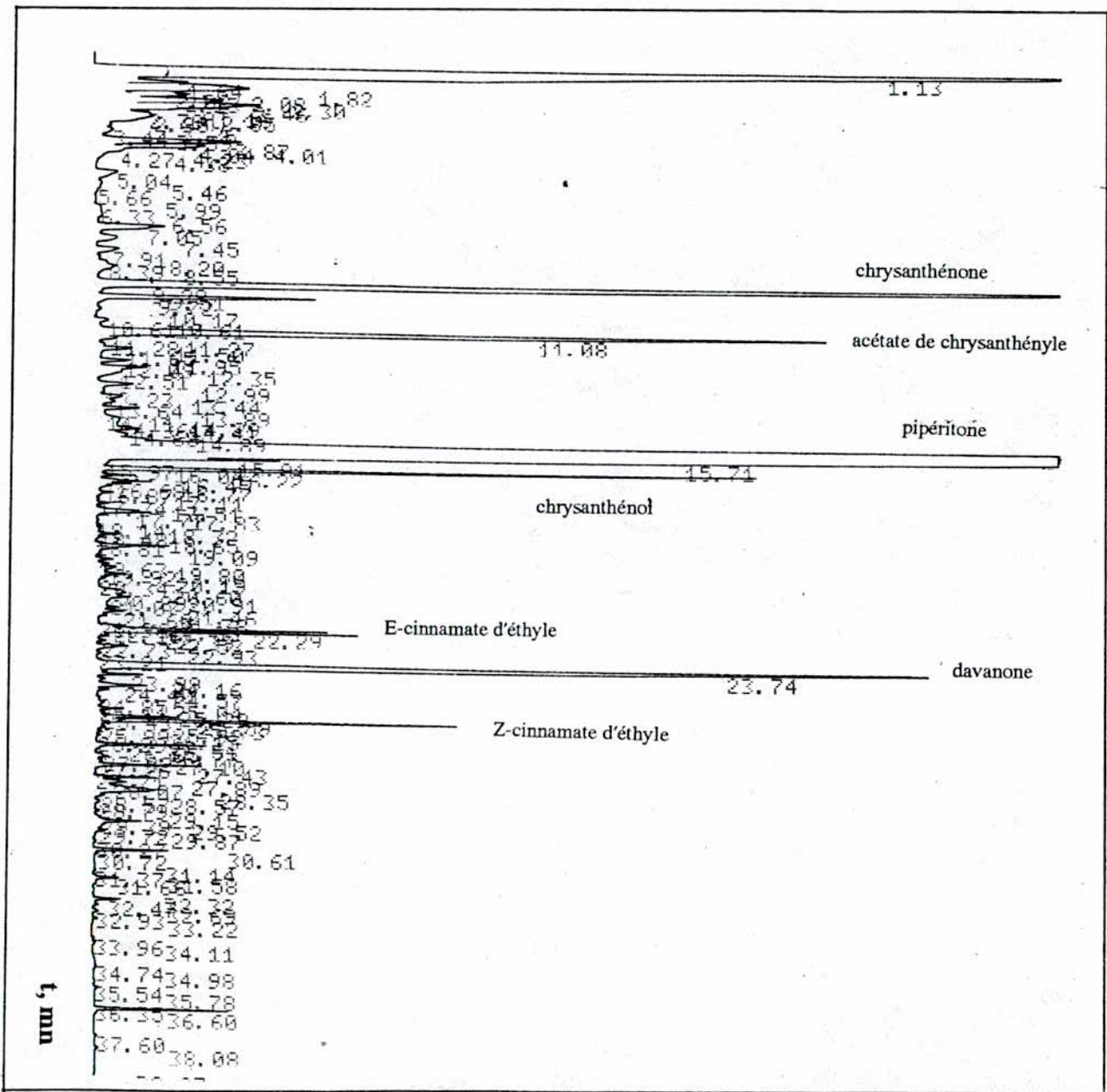


Figure 30 : Chromatogramme de la concrète d'Artemisia judaïca L., éluee sur colonne capillaire PEG 20M

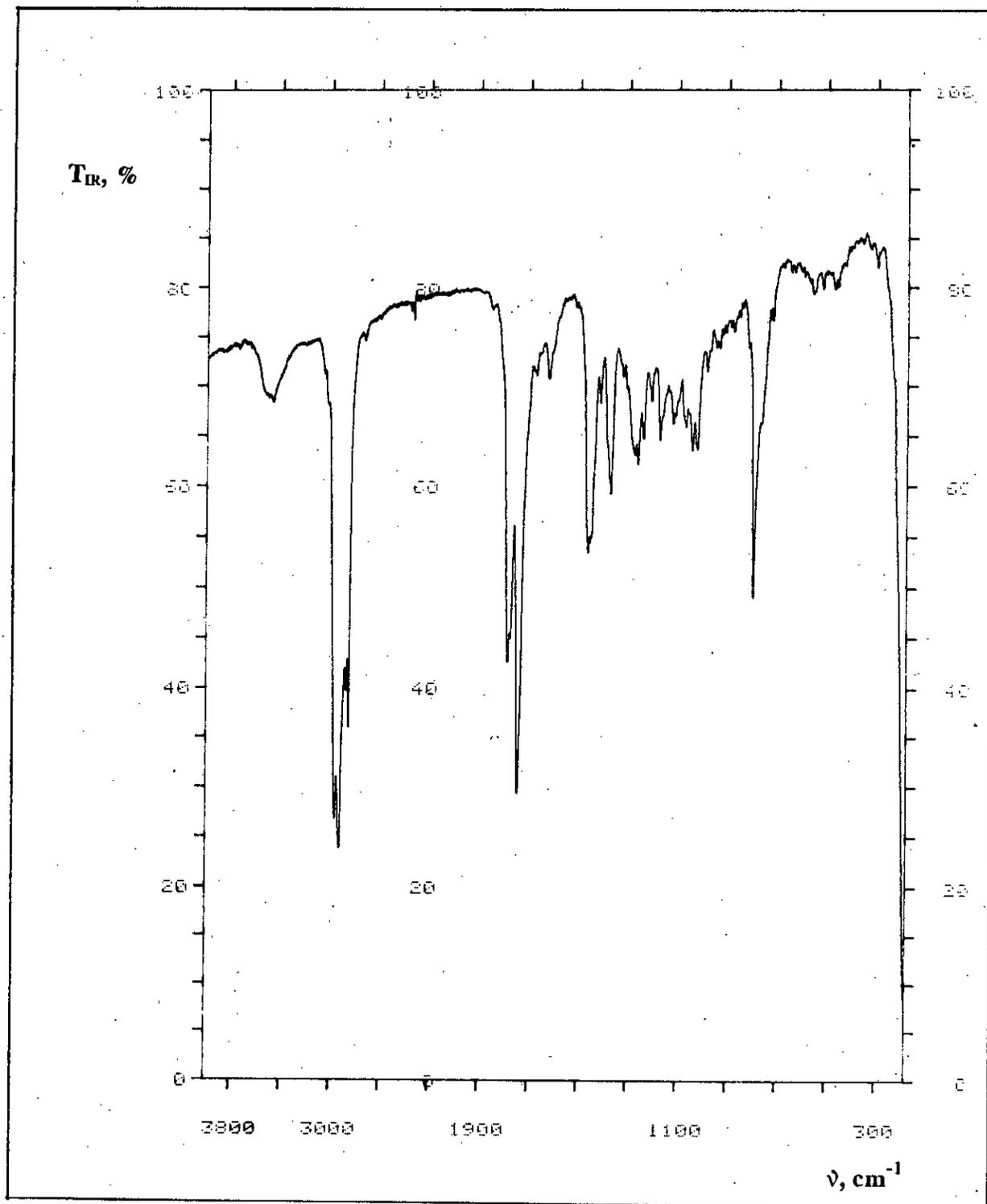


Figure 31 : Spectre infra-rouge de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. enregistré sous forme de film déposé sur pastille de KBr

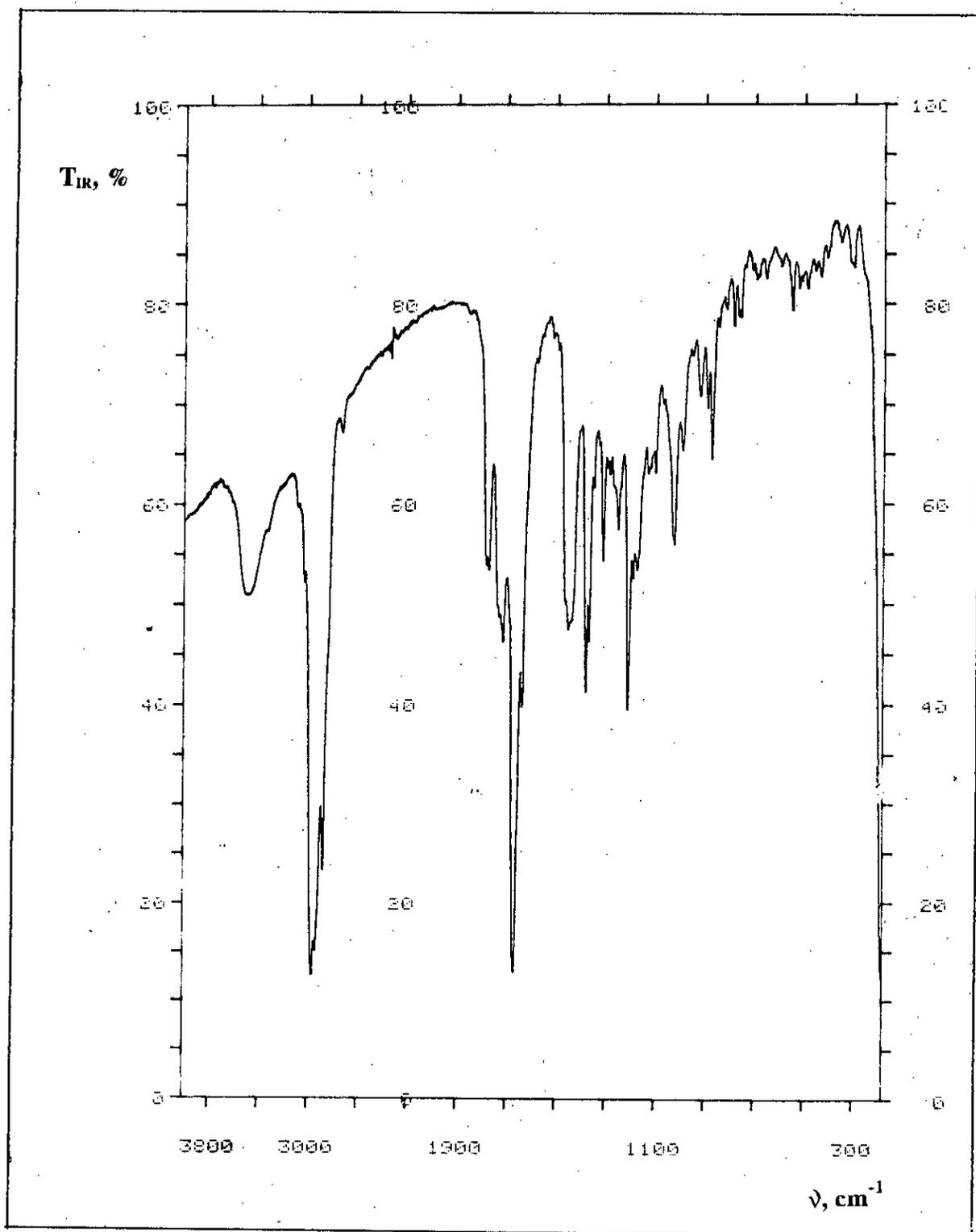


Figure 32: Spectre infra-rouge de la concrète d'*Artemisia judaica* L. enregistré sous forme de film déposé sur pastille de KBr

V.2.3.2. Analyse quantitative

Les bandes intenses d'absorption du camphre et des thuyones observées dans le spectre IR de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso., et de la pipéritone dans celui d'*Artemisia judaïca* L., nous ont suggéré leur utilisation comme bandes analytiques pour le dosage de tels composés dans ces concrètes (139).

En effet, le dosage par spectrométrie IR d'un constituant d'un mélange est rendu possible, lorsque spectre de ce dernier présente une bande spécifique d'absorption vérifiant la loi de Beer-Lambert.

La concentration du constituant à doser est évaluée par l'aire de sa bande d'absorption (mesurée par la méthode de correction de la ligne de base) et rapportée à une courbe d'étalonnage préalablement établie (140). Dans notre cas, cet étalonnage a été effectué respectivement avec des solutions étalons de camphre (BDH) et de pipéritone (Fluka) dans le tetrachlorure de carbone (Merck, IR quality).

La courbe d'étalonnage, pour le dosage du camphre et des thuyones, vérifie l'équation:

$$Y = 161,0.X$$

et celle pour le dosage de la pipéritone, s'écrit:

[26]

$$Y = 220,3.X$$

X désigne la concentration du composé, en mg/ml et Y l'aire de la bande d'absorption, mesurée dans l'intervalle de fréquences $1760-1727 \text{ cm}^{-1}$, pour le camphre et $1685-1665 \text{ cm}^{-1}$, pour la pipéritone.

La linéarité de ces courbes d'étalonnage a été observée dans les domaines de concentration variant respectivement entre, 0 et 10 mg/ml pour le camphre et entre, 0 et 2,5 mg/ml pour la pipéritone.

Les spectres d'absorption IR ont été enregistrés dans les intervalles de fréquences délimitant la base de la bande d'absorption. Les cellules utilisées sont en NaCl d'épaisseur 0,05 mm et le dosage de chaque solution a été répété dix fois.

Les qualités de cette méthode ont pu être appréciées d'une part, par la déviation des valeurs obtenues et d'autre part, par la reproductibilité des résultats (129).

La précision a été évaluée par l'écart relatif ER , en %, défini par le rapport [27]:

$$ER = \frac{X - \bar{X}}{\bar{X}} . 100 \quad [27]$$

où X désigne la concentration réelle et \bar{X} la concentration moyenne déterminée expérimentalement, toutes deux exprimées en mg/ml.

La reproductibilité, quant à elle, a été évaluée par la déviation standard relative S_r , en %,

définie par la relation [28] suivante:

$$S_r = \frac{S_d}{\bar{X}} \cdot 100 \quad [28]$$

dans laquelle S_d , désignant l'écart type, s'écrit selon la formule [29]:

$$S_d = \sqrt{\frac{\sum (X^2 - \bar{X}^2)}{n - 1}} \quad [29]$$

où n est le nombre de dosages répétitifs.

L'intervalle de confiance (IC), défini pour une probabilité de 95%, s'écrit:

$$\bar{X} - t_s S_r < \bar{X} < \bar{X} + t_s S_r \quad [30]$$

où t_s désigne le critère de la loi de Student et S_r , la valeur de l'écart type S_d rapporté à la racine carrée du nombre de dosages répétitifs n , soit:

$$S_r = \frac{S_d}{\sqrt{n}} \quad [31]$$

Les tableaux V.1. et V.2. regroupent respectivement les résultats des dosages du camphre et de la pipéritone dans les solutions étalons, ainsi que les valeurs des critères d'appréciation de qualités de la méthode.

Tableau V.1: Résultats des dosages du camphre dans les solutions étalons de concentrations connues (solvant CCl₄)

| Concentration connue X, mg/ml | 5 | 6 | 8 | 10 |
|---|-------------|-------------|-------------|-------------|
| | 4,8 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 4,9 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 4,9 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 4,9 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 5,1 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 5,1 | 5,9 | 7,8 | 9,9 |
| | 5,1 | 5,9 | 8,0 | 9,9 |
| | 5,1 | 5,9 | 8,0 | 10,0 |
| | 5,1 | 6,0 | 8,0 | 10,0 |
| | 5,1 | 6,1 | 8,1 | 10,0 |
| | 5,2 | 6,2 | 8,2 | 10,0 |
| Concentration déterminée par dosage IR, mg/ml | | | | |
| Concentration moyenne \bar{X} | 5,02 | 5,96 | 7,93 | 9,94 |
| Ecart relatif ER, % | 0,40 | 0,33 | 0,13 | 0,60 |
| Ecart type S_d | 0,13 | 0,11 | 0,15 | 0,05 |
| Déviatoin standard S_r , % | 2,59 | 1,84 | 1,88 | 0,50 |
| Intervalle de confiance IC, mg/ml | 4,93 à 5,11 | 5,90 à 6,06 | 7,87 à 8,11 | 9,90 à 9,98 |

Tableau V.2: Résultats de dosage de la pipéritone dans les solutions étalons de concentrations connues (solvant CCL₄)

| | | | |
|--|--------------------|--------------------|--------------------|
| Concentration connue X, mg/ml | 0,40 | 1,00 | 2,50 |
| | 0,41 | 0,99 | 2,51 |
| | 0,40 | 1,00 | 2,52 |
| | 0,40 | 0,99 | 2,49 |
| Concentration déterminée par dosage IR, mg/ml | 0,42 | 1,00 | 2,51 |
| | 0,39 | 1,00 | 2,50 |
| | 0,42 | 0,99 | 2,52 |
| | 0,39 | 1,04 | 2,47 |
| | 0,41 | 1,00 | 2,50 |
| | 0,40 | 1,02 | 2,51 |
| | 0,41 | 1,01 | 2,50 |
| Concentration moyenne \bar{X}, mg/ml | 0,405 | 1,004 | 2,503 |
| Ecart relatif ER, % | 1,25 | 0,40 | 0,30 |
| Ecart type S_d | 0,011 | 0,016 | 0,015 |
| Déviatoin standard relative S_r, % | 2,72 | 1,59 | 0,60 |
| Intervalle de confiance IC, mg/ml | 0,40 à 0,41 | 0,99 à 1,02 | 2,49 à 2,51 |

Les résultats obtenus montrent une bonne précision de la méthode, puisque l'erreur relative observée n'excède pas 1,25% dans l'intervalle de concentrations étudié. Par ailleurs, la reproductibilité s'avère satisfaisante et par conséquent, l'intervalle de confiance, dans lequel se situe la valeur moyenne de la concentration déterminée expérimentalement, est assez restreint.

La méthode, ainsi testée, a été appliquée à diverses solutions de concrètes dans CCL₄:

- trois solutions de concrètes à 20 mg/ml, d'*Artemisia herba-alba* Asso. issues de l'épuisement successif à l'éther de pétrole d'un même lot, que l'on désignera par C₁, C₂ et C₃;

- trois solutions de concrètes à 10 mg/ml, d'*Artemisia judaïca* L. issues de l'épuisement successif à l'éther de pétrole d'un même lot et désignées C₄, C₅ et C₆;

- une solution de l'échantillon C₄, à laquelle sont ajoutés 3 mg/ml de pipéritone, notée C₄*.

Six dosages répétitifs ont été effectués pour chacune de ces solutions.

Le tableau V.3 regroupe les résultats des dosages du camphre et des thuyones dans les solutions de concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso.

Tableau V.3: Résultats des dosages du camphre et des thuyones dans les solutions de concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. (solvant CCL)

| Solutions de concrètes | Concentration en camphre et thuyones, mg/ml | | S _d | S _r % | IC mg/ml |
|------------------------|---|---------|----------------|---------------------|-------------|
| | déterminée par dosage IR | moyenne | | | |
| C ₁ | 5,4 5,4 5,5 5,5 5,5 5,6 | 5,48 | 0,07 | 0,07 | 5,41 à 5,55 |
| C ₂ | 1,1 1,1 1,1 1,1 1,1 1,2 | 1,13 | 0,05 | 4,42 | 1,08 à 1,18 |
| C ₃ | 0,6 0,6 0,6 0,7 0,8 0,8 | 0,71 | 0,07 | 9,86 | 0,63 à 0,78 |

Les résultats des dosages de la pipéritone dans les solutions de concrètes d'*Artemisia judaïca* L. sont réunis dans le tableau V.4.

Tableau V.4: Résultats des dosages de la pipéritone dans les solutions de concrètes d'*Artemisia judaïca* L. (solvant CCL)

| Solutions de concrètes | Concentration en pipéritone, mg/ml | | S | S _r % | IC mg/ml |
|------------------------|------------------------------------|---------|-------|---------------------|-------------|
| | déterminée par dosage IR | moyenne | | | |
| C ₄ | 2,17 2,17 2,18 2,18 2,18 2,18 | 2,176 | 0,005 | 0,25 | 2,17 à 2,18 |
| C ₄ * | 5,12 5,14 5,14 5,19 5,19 5,19 | 5,156 | 0,032 | 0,62 | 5,12 à 5,19 |
| C ₅ | 0,96 0,97 0,97 0,97 0,97 0,98 | 0,970 | 0,007 | 0,73 | 0,96 à 0,98 |
| C ₆ | 0,31 0,31 0,32 0,32 0,32 0,32 | 0,316 | 0,005 | 1,58 | 0,31 à 0,32 |

La comparaison des résultats de dosage des échantillons C₄ et C₄* montre la justesse de la méthode. D'autre part, la reproductibilité des résultats est appréciable même pour les solutions de faibles concentrations en cétones. Enfin, son utilisation simple et rapide constitue l'avantage certain de cette méthode de dosage.

V.3. Activité antimicrobienne des concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

L'activité antimicrobienne des concrètes de ces deux *Artemisia* a été évaluée par la méthode de l'antibiogramme présentée précédemment. Les tests effectués avec 2,5 mg par disque de chacune des concrètes se sont révélés tous négatifs. Lors d'une deuxième série d'essais, ayant déposé 5 mg de concrète par disque nous avons observé l'apparition de zones d'inhibition avec certains microorganismes. Les diamètres de ces zones d'inhibition sont regroupés dans le tableau V.5 ci-dessous.

Tableau V.5: Diamètres des zones d'inhibition, en mm, observés lors de l'évaluation de l'activité antimicrobienne des concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

| Microorganisme | Origine | Diamètres des zones d'inhibition, en mm | |
|-------------------------------|---------|---|-----------------------------|
| | | <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | <i>Artemisia judaïca</i> L. |
| Enterobactéries | | | |
| <i>Klebsiella pneumoniae</i> | ECBU | 8 | 6 |
| <i>Echerichia coli</i> | ECBU | 7 | <6 |
| <i>Proteus indole positif</i> | ECBU | 10 | 6 |
| <i>Salmonella seftenberg</i> | CPC | 8 | <6 |
| <i>Salmonella enteridis</i> | CPC | <6 | <6 |
| <i>Salmonella paratypi A</i> | CPC | 6 | <6 |
| <i>Salmonella infantis</i> | CPC | 11 | <6 |
| <i>Salmonella heidelberg</i> | CPC | 10 | <6 |
| <i>Shigella flexnerie</i> | CPC | 7 | 6 |
| Cocci | | | |
| <i>Staphylococcus aureus</i> | ECBU | <6 | 8 |

Tableau V.5: (suite)

| Microorganisme | Diamètres des zones d'inhibition, en mm | |
|-----------------------------------|---|----------------------|
| | Artemisia herba-alba Asso. | Artemisia judaïca L. |
| Levures | | |
| Candida albicans | 9 | 11 |
| Candida stellatoïdea | 7 | 9 |
| Candida tropicalis | 11 | 20 |
| Champignons | | |
| Microsporum canis | 6 | 6 |
| Microsporum gypseum | 6 | 6 |
| Trichophyton interdigitale | <6 | <6 |
| Aspergillus terreus | <6 | <6 |

De manière générale, nous constatons que l'activité antimicrobienne de la concrète est faible. Il semble donc que seule l'huile essentielle est douée de propriétés bactéricide et fongicide.

V.4. Mise en oeuvre de l'extraction à l'éther de pétrole des concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L.

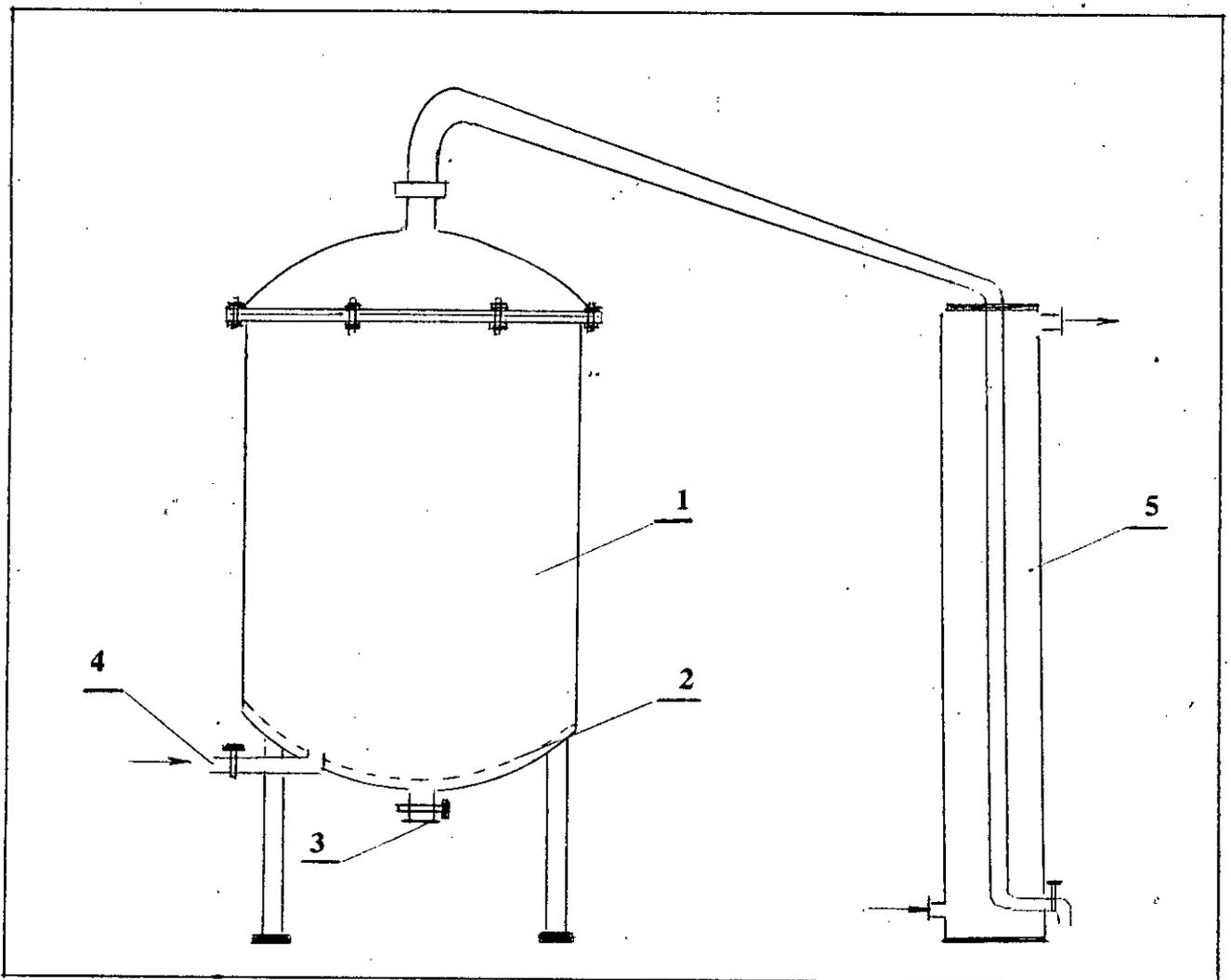
Appliquée pour la première fois, en 1839 par Robiquet (132), à la récupération des produits aromatiques du narcisse, l'extraction par solvants volatils a vu son champ d'utilisation s'élargir. L'ancienneté des techniques usitées explique qu'une grande partie des procédés relève encore du savoir-faire ancestral. Assurant une production dont les qualités sont appréciées sur le marché, ces procédés sont jalousement surveillés et extrêmement peu évolutifs. Cependant, la tradition, considérée comme garante de la qualité mais rarement des conditions optimales de production, cède de plus en plus sa place face aux progrès réalisés dans l'amélioration des procédés d'extraction solide-liquide (141).

Nous avons entamé l'extraction des concrètes de nos deux plantes par le plus ancien des procédés, à savoir, l'extraction statique en discontinu. Les résultats de cette étude préliminaire nous ont amenés à expérimenter d'autres techniques, en l'occurrence, l'extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée et l'extraction à charge dispersée.

V.4.1 Extraction statique en discontinu ou batch

Ce procédé, appelé encore extraction en batch, utilise le simple principe du bain. Le solide est immergé dans le solvant et après un certain temps de contact entre les deux phases, le solvant chargé ou miscella est récupéré et substitué par du solvant pur. L'opération est renouvelée jusqu'à épuisement de la charge (142). Lors de l'extraction des solides d'origine végétale, en fin de processus, le solvant retenu dans la matière végétale est entraîné par la vapeur d'eau et additionné à la miscella. Cette dernière subit alors une distillation sous vide afin de récupérer l'extrait et de régénérer le solvant.

L'installation qui a servi à nos expériences et schématisée à la figure 33, a été gracieusement mise à notre disposition par l'Entreprise Nationale des Fruits et Légumes d'Algérie (ENAFLA).



1: extracteur; 2: tamis; 3: évacuation de miscella;
4: entrée de vapeur; 5: condenseur

Figure 33: Schéma de l'installation semi-pilote d'extraction statique en discontinu

Elle est constituée d'un extracteur cylindrique en cuivre dans lequel la matière végétale, placée sur un tamis fin, baigne dans le solvant. Au fond de l'extracteur sont situés deux orifices. L'un sert à l'évacuation de la miscella et l'autre, relié à une chaudière, permet d'envoyer en fin d'opération de la vapeur d'eau à travers le lit de matière végétale. La fermeture hermétique de l'extracteur est assurée par un chapiteau de forme conique. Celui-ci est relié à un condenseur destiné à refroidir et condenser les vapeurs d'eau et de solvant encore retenu dans la matière végétale.

Nous avons réalisé des essais d'extraction statique en discontinu afin d'étudier l'influence, sur le rendement et la composition de la concrète, des principaux paramètres de ce procédé en batch, à savoir, la durée d'extraction et le nombre d'extractions successives ou lavages à l'éther de pétrole.

Les essais ont été effectués à la température ambiante, $20 \pm 2^\circ\text{C}$. L'hydromodule a été fixé à $0,03 \text{ m}^3/\text{kg}$, pour l'extraction d'*Artemisia herba-alba* Asso. et à $0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$, pour celle d'*Artemisia judaïca* L. Dans les deux cas, les tiges de nos deux plantes ont été découpées en petits bouts d'environ cinq centimètres de longueur.

La matière végétale et le solvant sont mis en contact dans l'extracteur pendant un temps déterminé. La miscella est ensuite évacuée et le solvant retenu dans la plante est entraîné par la vapeur d'eau, jusqu'au moment où son volume dans le receveur de distillat ne varie plus. La durée de cette dernière opération n'excède pas une dizaine de minutes. Le solvant de la miscella est distillé sous un vide de 400 mm de mercure dans un évaporateur rotatif (IKA-Werk). Le rendement en concrète R_c est évalué par le rapport, exprimé en %, des masses de concrète et de matière végétale séchée. La teneur relative en camphre et thuyones ou en pipéritone dans les concrètes est déterminée par spectroscopie infra-rouge.

Les résultats obtenus pour différentes durées d'extraction des concrètes de nos deux *Artemisia* sont regroupés respectivement dans les tableaux V.6 et V.7, ci-après.

Tableau V.6: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole. Rendement R_c , teneur relative et masse de pipéritone, obtenus à différentes durées d'extraction en batch

| Durée d'extraction, minutes | 10 | 30 | 60 | 120 |
|----------------------------------|--------|--------|--------|--------|
| Rendement en concrète R_c , % | 1,75 | 1,76 | 1,01 | 1,38 |
| Volume de solvant retenu, ml | 38 | 50 | 66 | 78 |
| Teneur relative en pipéritone, % | 5,6 | 8,6 | 16,2 | 18,8 |
| Masse de pipéritone, g | 0,0396 | 0,0607 | 0,0661 | 0,1047 |

Tableau V.7: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole. Rendement R_c , teneur relative et masse de camphre et thuyones, obtenus à différentes durées d'extraction en batch

| Durée d'extraction, heures | 1 | 2 | 3 | 24 |
|---|--------|--------|--------|--------|
| Rendement en concrète R_c , % | 0,46 | 0,46 | 0,60 | 0,72 |
| Volume de solvant retenu, ml | 60 | 82 | 90 | 120 |
| Teneur relative en camphre et thuyones, % | 21,8 | 26,5 | 23,1 | 19,2 |
| Masse de camphre et thuyones, g | 0,0940 | 0,1153 | 0,1295 | 0,1299 |

Dans le cas de l'extraction en batch de la concrète d'Artemisia judaïca L., les rendements en concrète obtenus pour des temps de contact de 10 et 30 minutes sont nettement supérieurs à ceux observés avec des durées d'une et de deux heures. Cependant, la teneur relative en pipéritone obtenue en une heure représente le double de celle récupérée en 30 minutes. Nous remarquons également que la masse de pipéritone et le volume de solvant retenu dans la matière végétale augmentent tous deux avec la durée d'extraction.

Concernant l'extraction statique de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso., on notera qu'en augmentant le temps de contact entre les deux phases, le rendement en concrète augmente. Il en est de même pour la masse de camphre et thuyones qui croît jusqu'à atteindre une valeur limite, toutefois, leur teneur relative diminue au-delà de deux heures d'extraction. Enfin, on constatera que le volume de solvant retenu dans la matière végétale augmente avec la durée d'extraction.

Ces résultats expérimentaux observés soulèvent plusieurs interrogations. Afin d'y apporter quelques éléments de réponse, nous nous référerons au mécanisme proposé par Angelidis et relatif à l'extraction des oléagineux (143). Ce dernier distingue trois étapes:

- la première étape intéresse la dissolution par le solvant du soluté situé en surface;
- la seconde étape est caractérisée par la pénétration du solvant au sein du solide, provoquant la diffusion du soluté des sites internes. La vitesse de cette étape est contrôlée par celle de diffusion du soluté et du solvant;

- la troisième étape consiste en la migration de la miscella renfermée dans les pores du solide vers la surface. En raison de la finesse de pores, l'écoulement est très lent et sa vitesse devient l'étape limitante pour le processus global.

Ce mécanisme semble bien s'appliquer à nos extractions. En effet, dans le cas de la concrète d'*Artemisia judaïca* L., les résultats des essais d'extraction de durée inférieure à une heure montrent la prédominance de la première étape. Le temps de contact insuffisant ne permet au solvant que d'effleurer la surface externe de la plante. Le solvant rencontre ainsi les poils tecteurs et dissout tant les gouttelettes d'huile essentielle que l'ensemble des produits présentant une affinité pour ce dernier. En outre, l'on notera que le volume de solvant retenu dans la matière végétale est faible et ne représente que 10 à 14 % du volume total et que la presque totalité de la miscella est récupérée. Ceci explique à la fois le rendement élevé et la faible teneur relative en pipéritone dans la concrète.

Au-delà, l'augmentation du volume de solvant retenu dans la matière végétale, observée lorsque la durée du temps de contact entre les deux phases augmente, indique que le solvant a pénétré les sites extra- et intracellulaires (cf. figure 1). Aussi, la brusque élévation de la teneur relative en pipéritone laisse supposer que les deux étapes de diffusion, précédemment citées, ont lieu concomitamment dans ces sites. Ainsi, la migration très lente de la miscella vers la surface pourrait être à l'origine de la diminution du rendement en concrète, observé au terme d'une heure d'extraction d'*Artemisia judaïca* L.

Dans la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. pour des temps de contact supérieurs à deux heures, la diminution de la teneur relative en camphre et thuyones peut être attribuée à la récupération par le solvant d'autres matières extractibles qu'il rencontre au sein de la plante.

L'évolution vers une valeur limite, de la masse des principaux constituants (camphre et thuyones) de l'huile essentielle de cette concrète, traduit le fait que le système tend vers un état d'équilibre. En dépit du caractère exogène des sites de stockage de cette huile essentielle, l'établissement de l'équilibre nécessite un temps relativement long. Ceci est dû probablement à la résistance au transfert de matière non seulement dans le solide, mais aussi et surtout dans la phase liquide, en l'absence d'agitation de celle-ci.

Par ailleurs, nous nous sommes intéressés à l'étude de l'influence du nombre d'extractions successives menées sur un même échantillon de plante, sur le rendement et la teneur relative des principaux constituants de l'huile essentielle de cette concrète.

Les essais ont été réalisés avec des échantillons d'*Artemisia herba-alba* Asso. du même lot ayant servi à l'étude précédente et dans les mêmes conditions opératoires de température d'extraction et d'hydromodule. La matière végétale est mise en contact avec le solvant pendant une heure, puis la miscella est récupérée et substituée par du solvant pur. Cette opération d'extraction est renouvelée trois fois. Le rendement, la teneur relative et la masse de camphre et thuyones ont été évalués pour chacune de ces extractions d'une heure. Le tableau V.8 regroupe les résultats ainsi obtenus.

Tableau V.8: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole. Rendement en concrète R_c , teneur relative et masse en camphre et thuyones obtenues lors d'extractions successives d'une heure chacune, en batch

| Extraction N° | Rendement en concrète R_c , % | Teneur relative en camphre et thuyones, % | Masse de camphre et thuyones, g |
|---|---------------------------------|---|---------------------------------|
| 1 | 0,46 | 21,8 | 0,0940 |
| 2 | 0,34 | 17,6 | 0,0562 |
| 3 | 0,11 | 9,3 | 0,0096 |
| Rendement global des trois extractions R_c, % | | | 0,91 |
| Masse globale de camphre et thuyones, g | | | 0,1598 |
| Teneur relative en camphre et thuyones déduite, % | | | 18,7 |

Les valeurs de ce tableau montrent que cette dernière manière de mener l'extraction en batch conduit à un épuisement progressif de la plante en ses produits solubles dans l'éther de pétrole. A l'origine de ce fait se trouve le gradient de concentration du soluté dans les deux phases, créé à chaque fois que la miscella est remplacée par du solvant pur.

La comparaison de ces résultats avec ceux obtenus lors d'une seule extraction de trois heures montre une amélioration de 34% du rendement en concrète et de 18% de la masse de camphre et thuyones récupérée par ces extractions successives. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que le volume de solvant utilisé dans ce cas est multiplié par trois. Il est évident que seule une étude technico-économique du procédé peut permettre le choix judicieux du schéma technologique à adopter.

Cette étude, loin d'être systématique et complète, nous a révélé néanmoins certains aspects mécanistiques de l'extraction de la concrète. Par ailleurs, elle a permis de mettre en évidence les principaux inconvénients de ce procédé en batch, à savoir, sa durée relativement longue, l'utilisation de volumes importants de solvant et la faible productivité de l'installation.

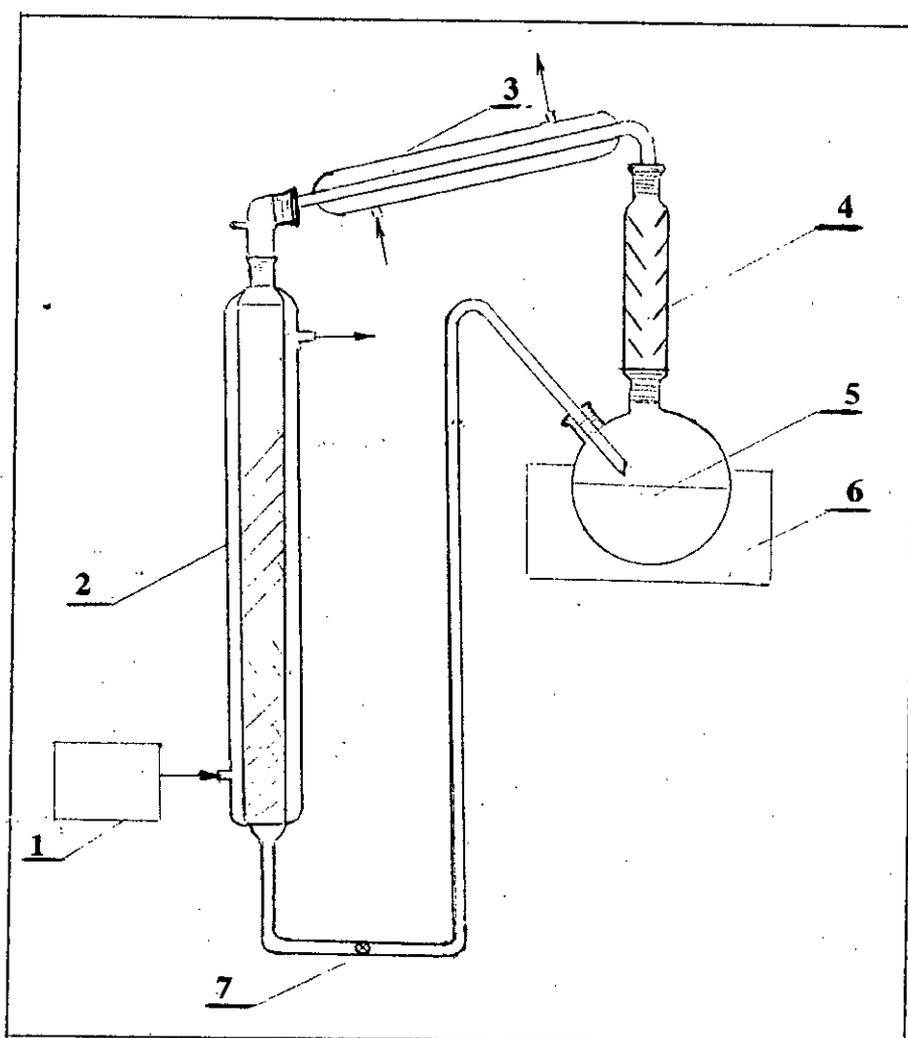
V.4.2. Extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée

Les inconvénients du procédé en batch nous ont amené à expérimenter la technique d'extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée (144).

Le dispositif expérimental, présenté à la figure 34, est constitué d'une colonne thermostatée, de longueur 500mm et de diamètre 60mm, faisant office d'extracteur, dans laquelle est tassée la

matière végétale baignant dans le solvant. La partie inférieure de la colonne est reliée par une conduite, munie d'un système de réglage de débit, à un ballon dans lequel est recueillie la miscella sortant de la colonne. Le ballon est surmonté d'une colonne Vigreux et d'un réfrigérant descendant dont l'extrémité est connectée à l'extracteur. Celui-ci est alimenté avec du solvant issu de la distillation atmosphérique de la miscella contenue dans le ballon. Bien que la zone d'extraction soit distincte de celle de distillation, celle-ci dépend du flux de distillation pour son alimentation.

Ce dispositif assure en permanence un gradient de concentration dans le système solide-liquide et permet d'atteindre un degré élevé d'épuisement de la matière végétale qui dépend du taux d'humidité de la plante et de la température d'extraction. Le processus est arrêté au moment où l'indice de réfraction du solvant quittant l'extracteur devient égal à celui du solvant pur.



1: bain thermostaté; 2: extracteur; 3: réfrigérant; 4: colonne Vigreux;
5: ballon contenant la miscella; 6: chauffe-ballon; 7: vanne de réglage de débit

Figure 34: Schéma du dispositif expérimental d'extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée

Les essais préliminaires ont montré que cette technique d'extraction conduit à des rendements nettement supérieurs à ceux auxquels nous sommes parvenus par extraction en batch. Cependant, si l'allure des chromatogrammes des échantillons de concrètes d'*Artemisia herba-alba* Asso., obtenus par les deux techniques, est identique, leurs spectres infra-rouges sont différents. Ainsi, dans le spectre de l'échantillon issu de l'extraction en lit fixe avec circulation de solvant en boucle fermée, présenté à la figure 35, l'apparition d'une bande d'absorption très intense et centrée à 1730 cm^{-1} masque celle due à l'absorption du camphre et des thuyones. Ceci rend impossible le dosage de ces composés par spectroscopie infra-rouge.

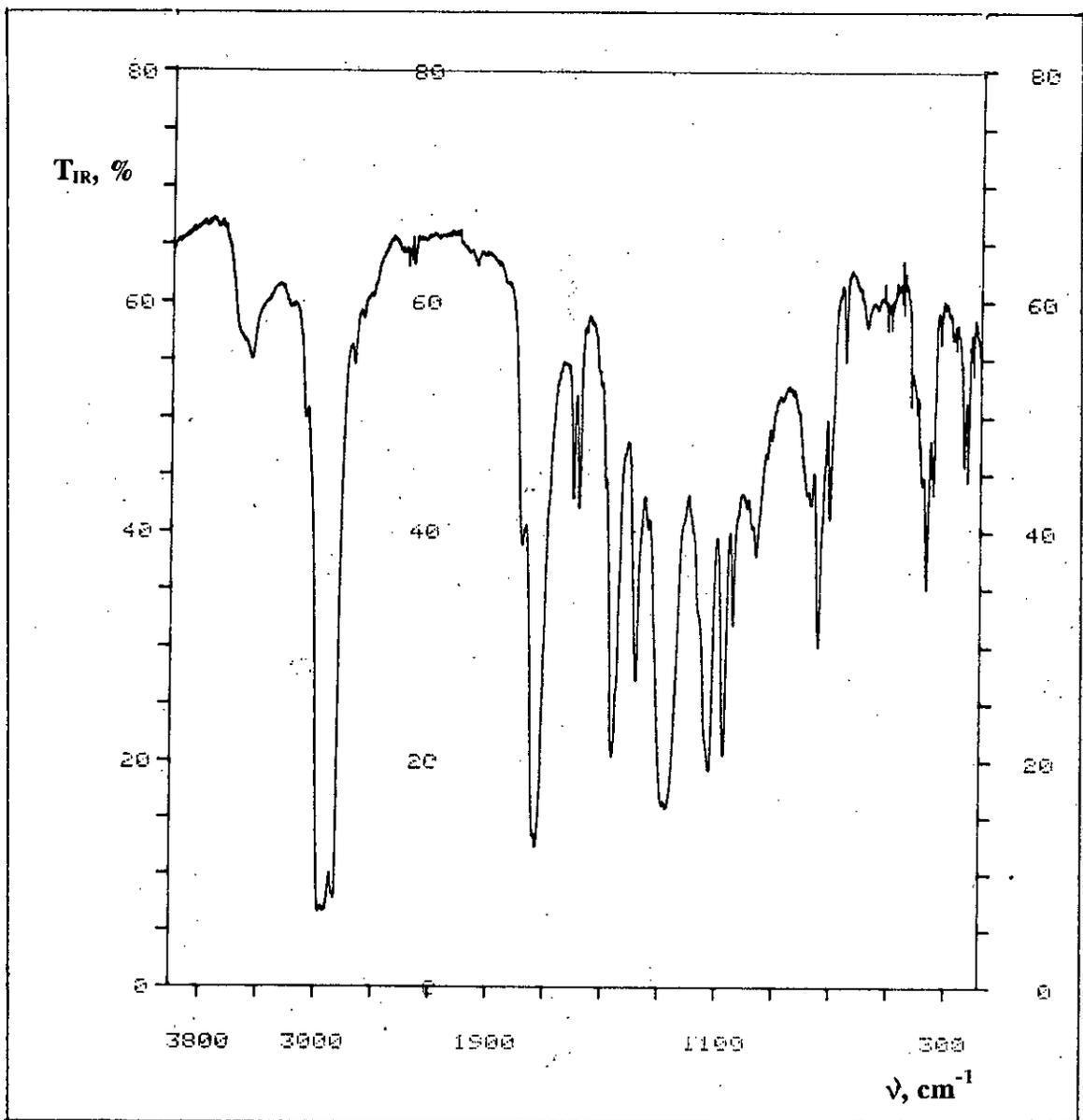


Figure 35: Spectre infra-rouge de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. obtenue par extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée

En revanche, les spectres IR des échantillons de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. obtenus par les deux techniques ont la même allure. La bande d'absorption de la pipéritone est de forte intensité et permet le dosage de ce composé dans la concrète. Aussi, avons-nous pu estimer la masse maximale de pipéritone que le solvant est en mesure d'extraire de la plante en fonction des conditions opératoires.

A travers les essais réalisés par cette technique, nous avons étudié l'incidence sur le rendement en concrète de deux paramètres: la température d'extraction **T** et le taux d'humidité de la plante **H**.

Deux températures d'extraction, 20 et 40°C, ont été retenues: la première étant proche de l'ambiante, la deuxième en raison des limitations dues à la fragilité thermique de la concrète et à la sécurité de l'installation. Quant au domaine de variation du taux d'humidité **H**, il est imposé par la variation naturelle de ce paramètre lors du stockage de la matière végétale à l'air libre et à l'obscurité. **H** est compris entre 36,93 % et 11,48 % pour *Artemisia herba-alba* Asso. et 19,48 % et 4,75 % pour *Artemisia judaïca* L. Pour chacun des essais, nous avons évalué le rendement en concrète **R_c** par rapport à la matière végétale humide.

L'analyse des échantillons de concrètes d'*Artemisia judaïca* L., par spectroscopie infra-rouge, nous a permis d'accéder à leurs teneurs relatives en pipéritone et de déterminer les masses de ce composé, récupérées lors des différents essais. Le rendement en pipéritone **R_p** est exprimé par le rapport, en %, de sa masse dans la concrète à la masse de matière végétale utilisée. Les tableaux V.9 et V.10 regroupent les résultats obtenus.

Tableau V.9: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole. Rendements en concrète **R_c obtenus par extraction à 20°C en lit fixe avec circulation de solvant en boucle fermée**

| | | | | |
|--|--------------|--------------|--------------|--------------|
| Taux d'humidité H, % | 36,93 | 31,93 | 17,96 | 11,48 |
| Rendement en concrète R_c, % | 1,64 | 1,68 | 1,73 | 1,75 |

Un essai a été effectué à **T** = 40°C et le rendement obtenu avec un taux d'humidité **H** de 31,93% atteint 3,65%.

Tableau V.10: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole. Rendements en concrète R_c et en pipéritone R_p obtenus par extraction en lit fixe avec circulation de solvant en boucle fermée

| H, % | T, °C | R_c , % | R_p , % |
|-------|-------|-----------|-----------|
| 19,48 | 20 | 4,76 | 0,30 |
| 12,48 | 20 | 6,86 | 0,41 |
| 10,00 | 20 | 7,68 | 0,43 |
| 10,00 | 40 | 7,80 | 0,44 |
| 4,75 | 20 | 9,16 | 0,50 |
| 4,75 | 40 | 9,45 | 0,58 |

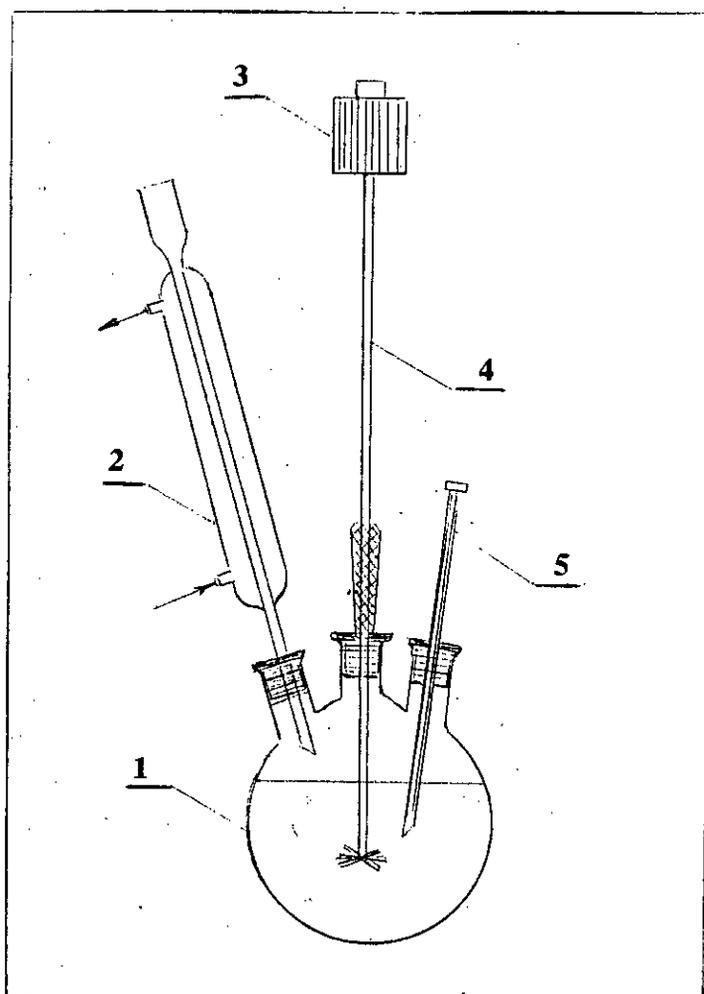
Nous constatons que les rendements en concrète R_c et en pipéritone R_p , obtenus à la température d'extraction de 40°C, sont supérieurs à ceux des échantillons de même taux d'humidité, mais traités à 20°C. L'effet favorable de la température, souvent observé en extraction solide-liquide, a pour origine l'augmentation de la solubilité du soluté et de sa diffusivité. Par ailleurs, de récentes études (145) évoquent le fait que l'apport thermique provoque l'élargissement des pores du solide et facilite aussi bien la pénétration du solvant, que la migration de la miscella vers la surface. Cependant, il semble que l'effet de la température s'estompe avec la diminution du taux d'humidité de la matière végétale. Le même phénomène a été observé lors de l'extraction de la concrète de *Pinus sylvestris* L. (146).

Quant à l'incidence sur le rendement du taux d'humidité de la plante, l'on peut conclure que sa diminution améliore les rendements en concrète et en pipéritone. Ce résultat traduit le fait que l'eau, contenue dans le tissu végétal, de par sa non miscibilité dans l'éther de pétrole, constitue un obstacle au cheminement du solvant au sein du solide et freine donc la diffusion. Enfin, le fait que le rendement en pipéritone croît avec la diminution du taux d'humidité d'*Artemisia judaïca* L. est important à souligner, dans la mesure où il pourrait être considéré comme une preuve de la localisation intracellulaire de l'huile essentielle dans la plante.

V.4.3. Extraction à charge dispersée

L'extraction à charge dispersée consiste en la mise en mouvement du solide dans le liquide, par action mécanique dans des réacteurs agités (142). L'agitation assure le contact intime entre les deux phases et l'homogénéisation du système. Elle a toujours un effet favorable sur l'extraction (147). Le dispositif expérimental utilisé lors de nos expériences est schématisé à la figure 36.

Un ballon thermostaté à trois cols, muni d'un agitateur mécanique à six pales et d'un réfrigérant à reflux, a servi de réacteur agité. Le troisième col a été prévu pour effectuer des prélèvements de phase liquide en cours d'extraction afin d'en étudier sa cinétique.



1: ballon contenant la matière végétale; 2: réfrigérant;
3: moteur; 4: agitateur mécanique; 5: seringue

Figure 36: Schéma du dispositif expérimental d'extraction à charge dispersée

Avant d'exposer la totalité des résultats obtenus à l'aide de cette technique d'extraction, nous présenterons tout d'abord ceux relatifs à l'influence de la vitesse d'agitation sur le rendement en concrète R_c .

Les essais ont été réalisés à 20°C avec les sommités fleuries d'*Artemisia herba-alba* Asso. L'hydromodule h_m a été fixé à 0,007 m³/kg, correspondant à 35 g de matière végétale et 245 ml d'éther de pétrole [65-95°C]. La durée des extractions a été fixée à quatre heures pour l'ensemble des expériences. Nous avons fait varier la vitesse d'agitation de 0 à 150 tr/mn. Les rendements en concrète R_c obtenus sont réunis dans le tableau V.11 ci-dessous.

Tableau V.11: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Influence de la vitesse d'agitation sur le rendement en concrète R_c

| Vitesse d'agitation, tr/mn | 0 | 50 | 100 | 150 |
|---------------------------------|------|------|------|------|
| Rendement en concrète R_c , % | 0,94 | 1,02 | 1,05 | 1,05 |

Nous constatons que l'augmentation de la vitesse d'agitation jusqu'à 100 tr/mn améliore le rendement en concrète. Au-delà de cette valeur, les rendements obtenus sont du même ordre de grandeur. Cette stabilisation du rendement s'explique par le fait qu'il existe un seuil de vitesse d'agitation au-delà duquel la résistance au transfert de matière dans la phase liquide est éliminée et le processus est régi par la seule diffusion interne.

V.5. Cinétique de l'extraction d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole

L'étude cinétique d'un système tendant vers un état d'équilibre consiste à déterminer son évolution en fonction du temps (148). Lorsqu'il s'agit d'étudier la cinétique d'un système solide-liquide, il est admis de suivre l'évolution en fonction du temps de la concentration moyenne du soluté dans la phase solide \bar{C}_s :

$$\bar{C}_s = f(t) \quad [32]$$

Dans la plupart des cas cependant, il est procédé à l'évaluation de la concentration du soluté dans la phase liquide C_l au cours de l'extraction, grandeur expérimentalement accessible:

$$C_l = f(t)$$

[33]

L'on retrouvera alors la relation [32] en faisant un bilan matière.

L'expérience montre que, mis à part du temps, ces relations dépendent aussi d'autres paramètres, tels que température d'extraction T , taux d'humidité H du solide, teneur initiale du soluté dans la phase liquide, agitation, etc. Par conséquent, elles ne sont valables que dans les conditions de l'expérience qui a servi à leur détermination. Ceci a suscité alors la recherche de relations mathématiques générales permettant d'approcher la cinétique dans les systèmes solide-liquide. A ce sujet, un certain nombre d'expressions furent proposées comme solutions des équations de diffusion, en faisant notamment des approximations relatives à la forme et aux dimensions des particules du solide, à la distribution du soluté dans la phase solide (149), ou encore, à la concentration du soluté dans la phase liquide (150).

Dans le cadre de cette étude, nous avons déterminé, en premier lieu, la relation $C_l=f(t)$ pour chacune des deux *Artemisia*, soumises à extraction à l'éther de pétrole dans différentes conditions opératoires. En second lieu et sur la base des résultats obtenus, nous avons exprimé la cinétique d'extraction à aide de deux fonctions, initialement définies dans le cas d'extraction de solides de nature minérale (150 -153), mais appliquées récemment à l'extraction de solides d'origine végétale (154 -157). Il s'agit des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$.

V.5.1 Evolution de la concentration du soluté dans la phase liquide en fonction du temps

Dans les deux systèmes solide-liquide étudiés, nous avons assimilé le soluté respectivement à la concrète, dans le cas de l'extraction à l'éther de pétrole d'*Artemisia herba-alba* Asso. et à la pipéritone, dans le cas d'*Artemisia judaïca* L.

Les essais ont été réalisés dans le réacteur agité précédemment décrit. La vitesse d'agitation a été fixée à 100 tr/mn afin d'éliminer la résistance dans la phase liquide. Des échantillons représentatifs de deux lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. et d'*Artemisia judaïca* L., constitués de leurs sommités fleuries, ont été utilisés. Le lot d'*Artemisia herba-alba* Asso. a été récolté en Décembre 1991 dans la région de Bordj Bou Arréridj; celui d'*Artemisia judaïca* L., cueilli en Mars 1991, provient du peuplement de Tamanrasset. L'éther de pétrole [65-95°C] Merck a été utilisé comme solvant.

Durant les extractions, nous avons effectué des prélèvements séquentiels de phase liquide. Les volumes ainsi prélevés ont été pris suffisamment petits pour éviter une variation importante de l'hydromodule; celle-ci a été estimée à environ 6 % pour l'ensemble des essais. La concentration de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. a été déterminée en évaluant sa masse dans la fraction prélevée rapportée au volume de cette dernière. La concentration de la pipéritone dans la phase

liquide a été déterminée par spectroscopie infra-rouge. En raison de leur utilisation ultérieure, nous avons représenté les résultats obtenus par l'évolution, en fonction du temps, des rendements en concrète et pipéritone. Exprimés en kilogrammes de soluté par kilogramme de matière végétale, ces rendements sont directement proportionnels à la concentration du soluté dans la phase liquide. Nous pouvons donc écrire les expressions suivantes:

$$R_c = h_m \cdot C_c \quad [34]$$

$$R_p = h_m \cdot C_p \quad [35]$$

dans lesquelles R_c et R_p désignent respectivement les rendements, en kg/kg, en concrète et en pipéritone, C_c et C_p les concentrations de la concrète et de la pipéritone dans la phase liquide à l'instant t , en kg/m³, h_m les valeurs de l'hydromodule à l'instant t , en m³/kg, estimées en tenant compte des volumes prélevés de phase liquide au cours de l'extraction.

Les valeurs expérimentales obtenues nous ont permis de tracer les courbes cinétiques moyennes donnant l'évolution de ces rendements en fonction du temps. Il s'est avéré que dans l'intervalle de temps étudié (5 à 240 minutes), l'expression de cette dernière peut être représentée correctement par des équations du type:

$$R = A + B e^{-bt} \quad [36]$$

A , B et b sont des constantes déterminées expérimentalement qui tiennent compte des paramètres intervenant dans l'extraction.

Parmi ces paramètres, le taux d'humidité de la matière végétale H , la température d'extraction T et l'hydromodule h_m ont retenu notre attention. L'intervalle de variation du taux d'humidité étudié est compris entre 36,93 % et 11,48 % pour *Artemisia herba-alba* Asso. et entre 12,48 % et 4,75 % pour *Artemisia judaïca* L. Par ailleurs, les essais ont été effectués à 20 et 40°C avec des hydromodules respectivement de 0,007, 0,008 et 0,009 m³/kg pour *Artemisia herba-alba* Asso. et de 0,005, 0,007 et 0,01 m³/kg pour *Artemisia judaïca* L. Tout d'abord, nous avons regroupé dans les tableaux V.12 et V.13, les résultats des essais réalisés sur les deux *Artemisia*, avec un hydromodule h_m de 0,007 m³/kg et à différents taux d'humidité H de la matière végétale et températures d'extraction T .

Tableau V.12: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution en fonction du temps du rendement en concrète R_c , en g/kg, à différents taux d'humidité H , températures d'extraction et pour un hydromodule h_m de 0,007 m³/kg

| t, mn | H, % T, °C | 36,93 20 | 31,93 20 | 31,93 40 | 17,96 20 |
|-------|---------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| 5 | | 3,50 | 3,57 | 8,16 | 7,29 |
| 10 | | 3,72 | 5,65 | 10,58 | 7,73 |
| 20 | | 4,28 | 6,43 | 11,72 | 7,88 |
| 30 | | 5,21 | 7,65 | 18,20 | 8,89 |
| 45 | | 7,21 | 8,40 | 18,35 | 10,15 |
| 60 | | 7,95 | 9,02 | 19,47 | 9,80 |
| 90 | | - | - | 20,26 | 10,27 |
| 120 | | 8,89 | 9,88 | - | - |
| 180 | | 9,46 | 10,21 | 21,47 | 10,50 |
| 240 | | 9,39 | 10,24 | 22,00 | 10,53 |

Tableau V.13: Extraction de la concrète d'Artemisia judaïca L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution en fonction du temps du rendement en pipéritone R_p , en g/kg, à différents taux d'humidité H , températures d'extraction et pour un hydromodule h_m de 0,007 m³/kg

| t, mn | H, % T, °C | 12,48 20 | 10,00 20 | 10,00 40 | 4,75 20 | 4,75 40 |
|-------|---------------|-------------|-------------|-------------|------------|------------|
| 5 | | 1,42 | 1,10 | 1,42 | 0,89 | 2,39 |
| 10 | | 1,84 | 1,48 | 1,70 | 1,40 | 2,57 |
| 20 | | 2,84 | 2,35 | 2,24 | 2,09 | 3,11 |
| 30 | | 2,94 | 2,43 | 2,38 | 2,44 | 3,43 |
| 45 | | 2,98 | 3,02 | 2,75 | 2,97 | 3,87 |
| 60 | | 3,33 | 3,32 | 2,98 | 3,40 | 3,98 |
| 90 | | 3,25 | 3,40 | 3,47 | 3,80 | 3,99 |
| 120 | | 3,17 | 3,45 | 3,48 | 4,04 | 4,37 |
| 180 | | 3,20 | 3,40 | 3,60 | 4,05 | 4,61 |

Sur la base de ces résultats obtenus, nous avons tracé les courbes cinétiques moyennes, donnant l'évolution des rendements R_c et R_p en fonction du temps et avons établi leurs équations.

Ainsi, pour un même hydromodule h_m de $0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$, nous avons pour

* *Artemisia herba-alba* Asso.

$$R_{c1} = 9,40 - 9,34 e^{-0,0303t} \quad H=36,93\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [37]$$

$$R_{c2} = 10,20 - 9,82 e^{-0,0363t} \quad H=31,93\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [38]$$

$$R_{c3} = 22,00 - 19,40 e^{-0,0358t} \quad H=31,93\% ; T=40^\circ\text{C} \quad [39]$$

$$R_{c4} = 10,50 - 10,23 e^{-0,0620t} \quad H=17,96\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [40]$$

* *Artemisia judaïca* L.

$$R_{p1} = 3,20 - 3,00 e^{-0,0787t} \quad H=12,48\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [41]$$

$$R_{p2} = 3,40 - 3,10 e^{-0,0538t} \quad H=10,00\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [42]$$

$$R_{p3} = 3,50 - 3,40 e^{-0,0547t} \quad H=10,00\% ; T=40^\circ\text{C} \quad [43]$$

$$R_{p4} = 4,00 - 3,98 e^{-0,0382t} \quad H= 4,75\% ; T=20^\circ\text{C} \quad [44]$$

$$R_{p5} = 4,60 - 3,80e^{-0,0372t} \quad H= 4,75\% ; T=40^\circ\text{C} \quad [45]$$

Ces équations semblent traduire correctement l'évolution des rendements en fonction du temps, comme le montrent les figures 37 et 38, où sont représentés les points expérimentaux et les courbes calculées à partir des équations établies.

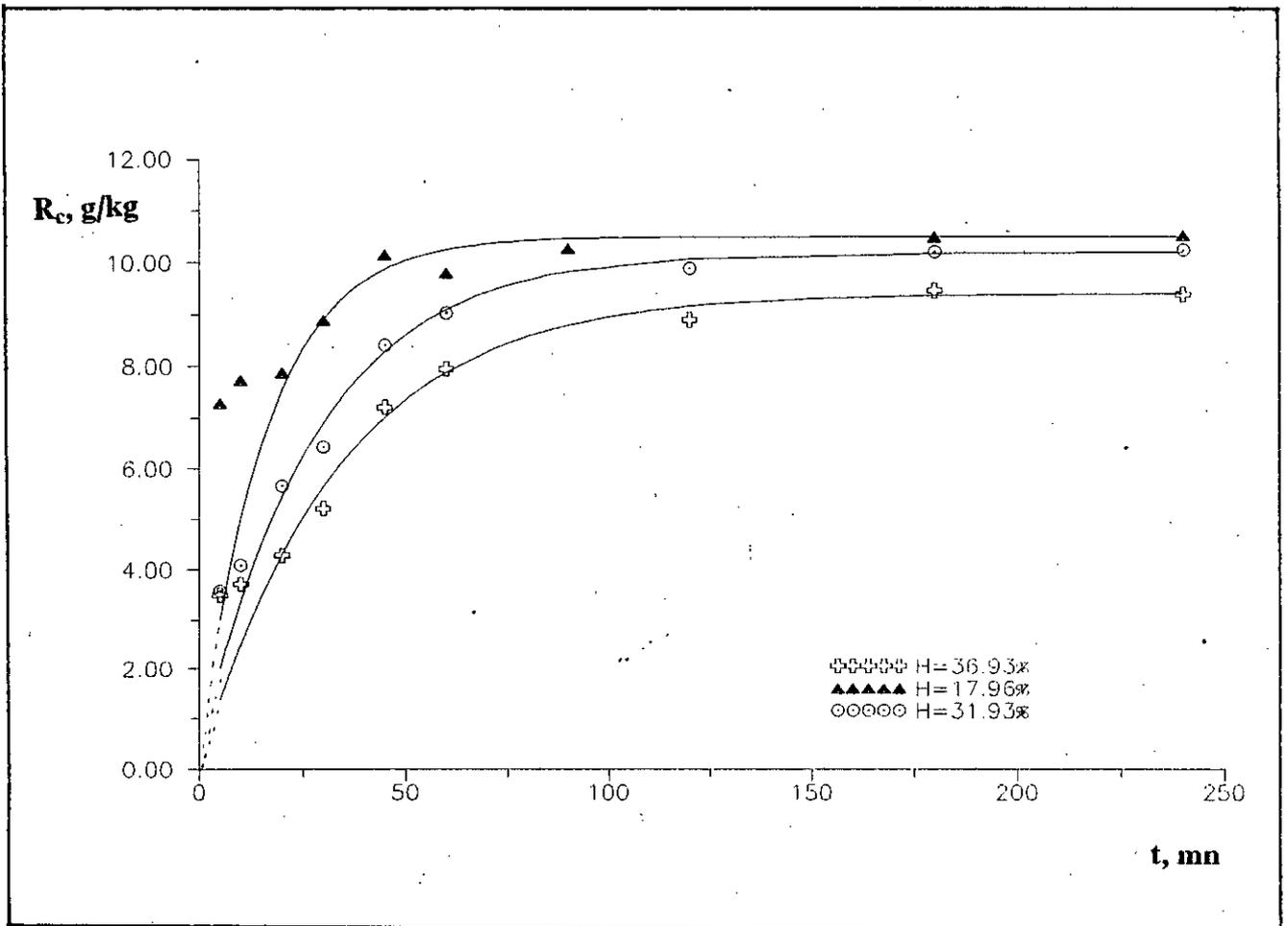


Figure 37: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_c en concrète, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale

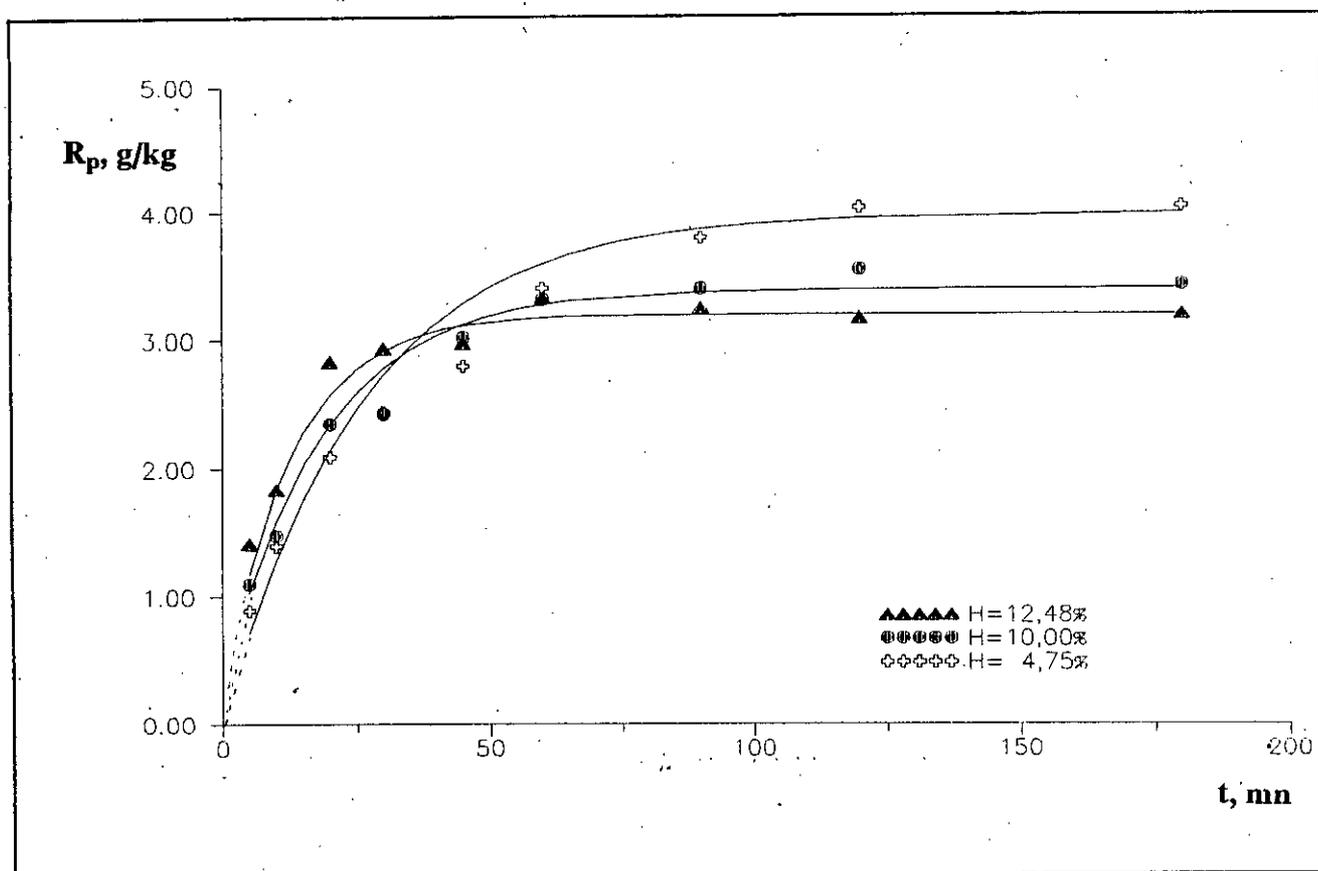


Figure 38: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole.
 Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale

L'allure de ces courbes cinétiques révèle que, de manière générale, les rendements en concrète et en pipéritone augmentent avec la diminution du taux d'humidité de la matière végétale. L'on remarque également que, lors de l'extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso., l'établissement de l'équilibre dans le système est d'autant plus rapide que la teneur en eau de la plante est faible. Le cas contraire est observé, lors de l'extraction de la pipéritone d'*Artemisia judaïca* L. En effet, au cours de la première heure d'extraction, l'évolution du rendement en pipéritone est plus lente lorsque le taux d'humidité est faible. Ce fait trouve une explication logique si l'on admet que l'eau contenue dans la matière végétale freine la pénétration du solvant et ne lui permet d'atteindre que les sites extracellulaires de stockage de l'huile essentielle. La diminution de

la teneur en eau permet au solvant de pénétrer plus en profondeur le tissu végétal et de récupérer l'huile située dans les dépôts intracellulaires. Aussi, le rendement en pipéritone obtenu pour un taux d'humidité de 4,75 % est plus élevé, mais le temps nécessaire à l'établissement de l'équilibre est plus long.

Par ailleurs, il est à noter que le processus d'extraction est accéléré à la température de 40°C et ce, d'autant plus que la teneur en eau dans la matière végétale est faible. Ceci est bien illustré sur les courbes de la figure 39.

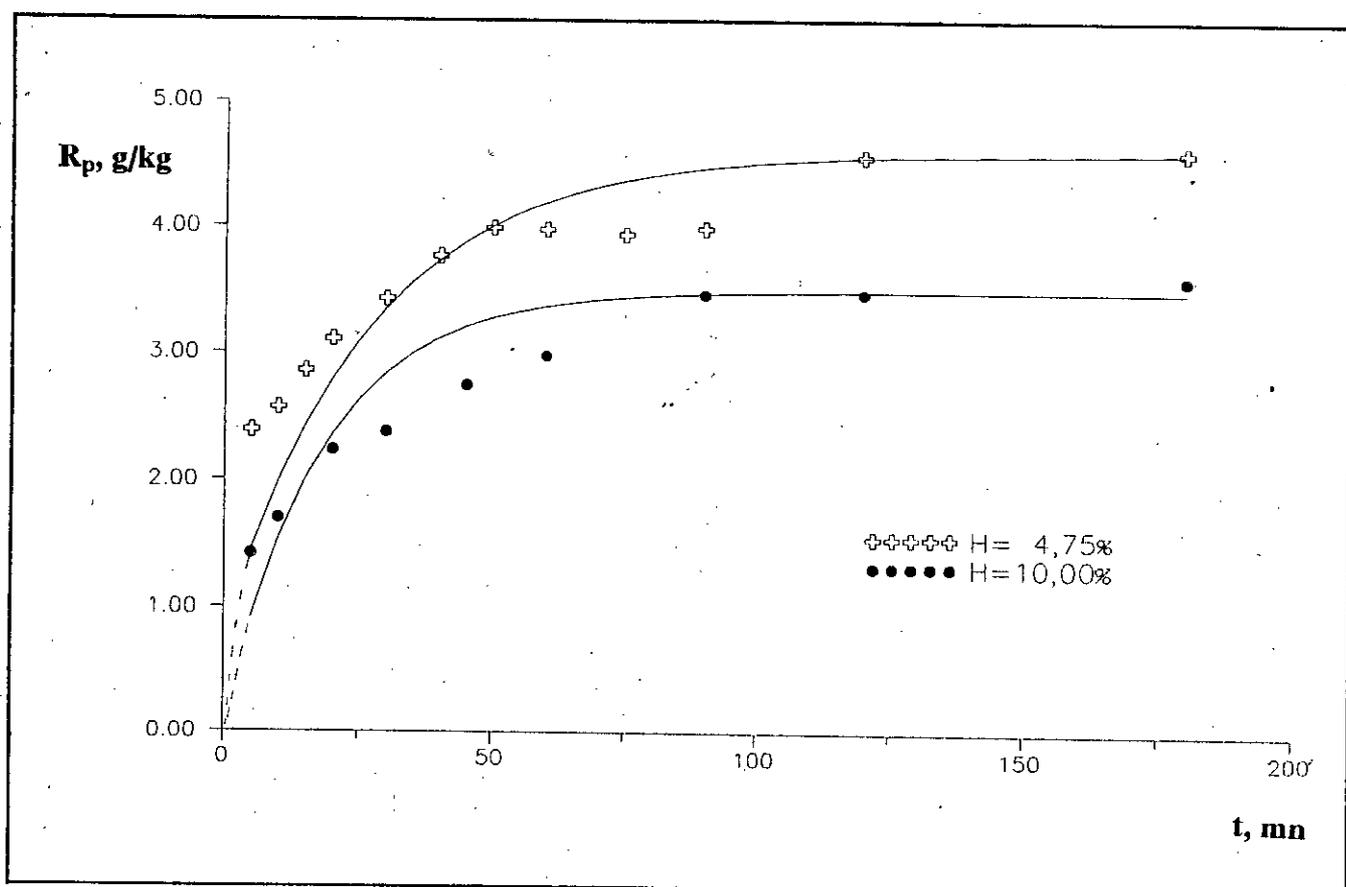


Figure 39: Extraction de la concrète d'Artemisia judaïca L. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=40^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale

Cependant, si les courbes calculées à partir des équations correspondantes reflètent l'allure globale de l'évolution en fonction du temps du rendement en pipéritone, les points expérimentaux semblent décrire deux paliers, mettant ainsi en évidence les étapes du mécanisme d'extraction évoquées précédemment.

Des essais d'extraction menés à 20°C sur des échantillons ayant les mêmes taux d'humidité (11,48 % pour *Artemisia herba-alba* Asso. et 10,00 % pour *Artemisia judaïca* L.) en faisant varier l'hydromodule, nous ont permis d'établir les équations des courbes cinétiques expérimentales d'extraction. Ces équations sont respectivement les suivantes: pour

* *Artemisia herba-alba* Asso.

$$R_{c5} = 10,50 - 10,05 e^{-0,0647t} \quad h_m = 0,007 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [46]$$

$$R_{c6} = 9,70 - 9,39 e^{-0,0591t} \quad h_m = 0,008 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [47]$$

$$R_{c7} = 9,20 - 9,09 e^{-0,0540t} \quad h_m = 0,009 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [48]$$

* *Artemisia judaïca* L.

$$R_{p6} = 3,50 - 3,06 e^{-0,0570t} \quad h_m = 0,005 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [49]$$

$$R_{p7} = 3,40 - 3,10 e^{-0,0538t} \quad h_m = 0,007 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [50]$$

$$R_{p8} = 2,90 - 2,60 e^{-0,0350t} \quad h_m = 0,010 \text{ m}^3/\text{kg} \quad [51]$$

Ces équations représentent convenablement es courbes cinétiques expérimentales d'extraction comme le montrent les figures 40 et 41.

Ces figures permettent de faire remarquer la faible variation des rendements en concrète et pipéritone observée dans l'intervalle d'hydromodules étudié. Il semblerait donc que les hydromodules utilisés soient suffisamment élevés, de sorte qu'en aucun cas la diffusion du soluté ne peut être freinée par une saturation de la phase liquide ou par un gradient de concentration insuffisant.

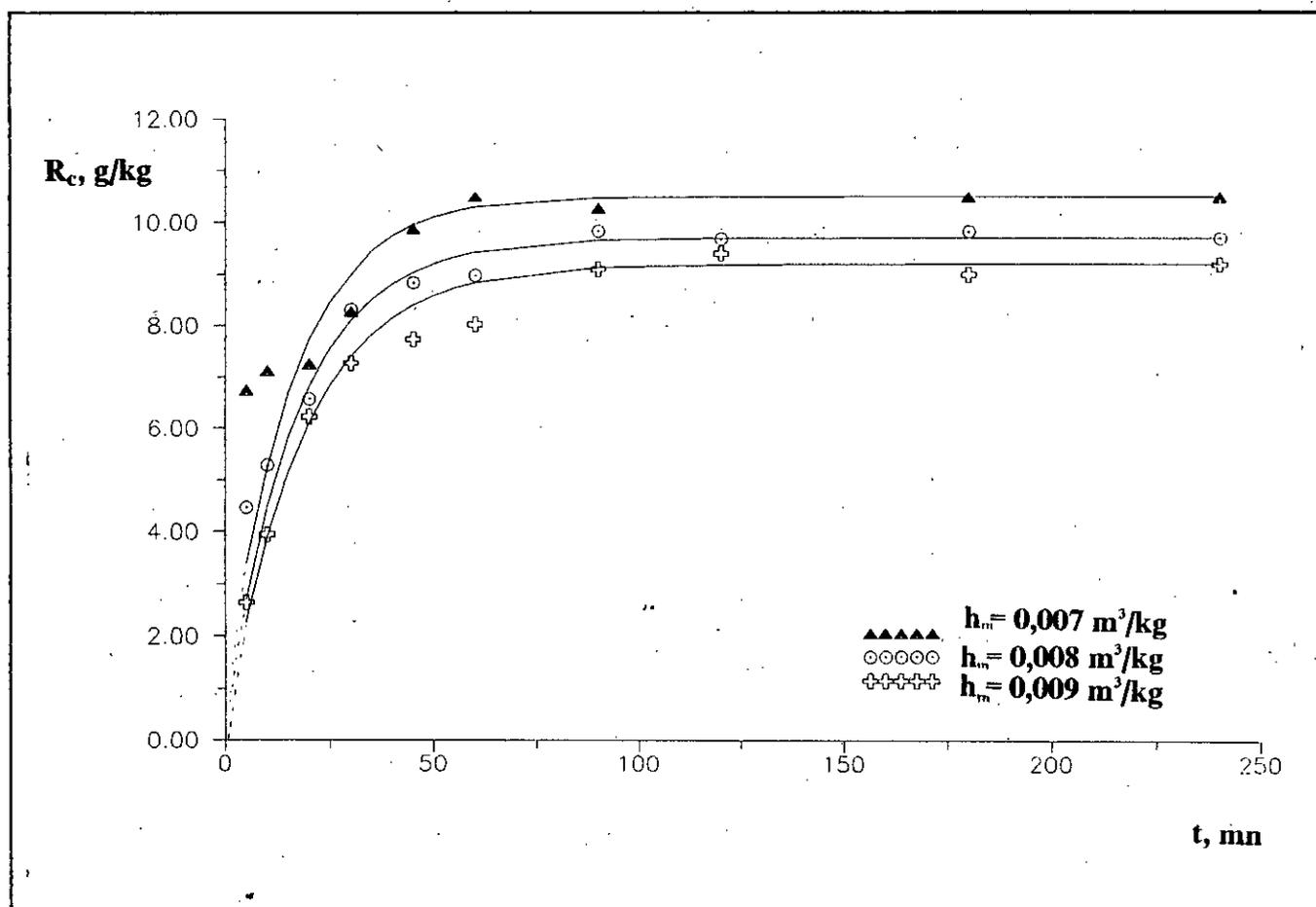


Figure 40: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_c en concrète, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un taux d'humidité H de matière végétale de 11,48 % et différents hydromodules h_m .

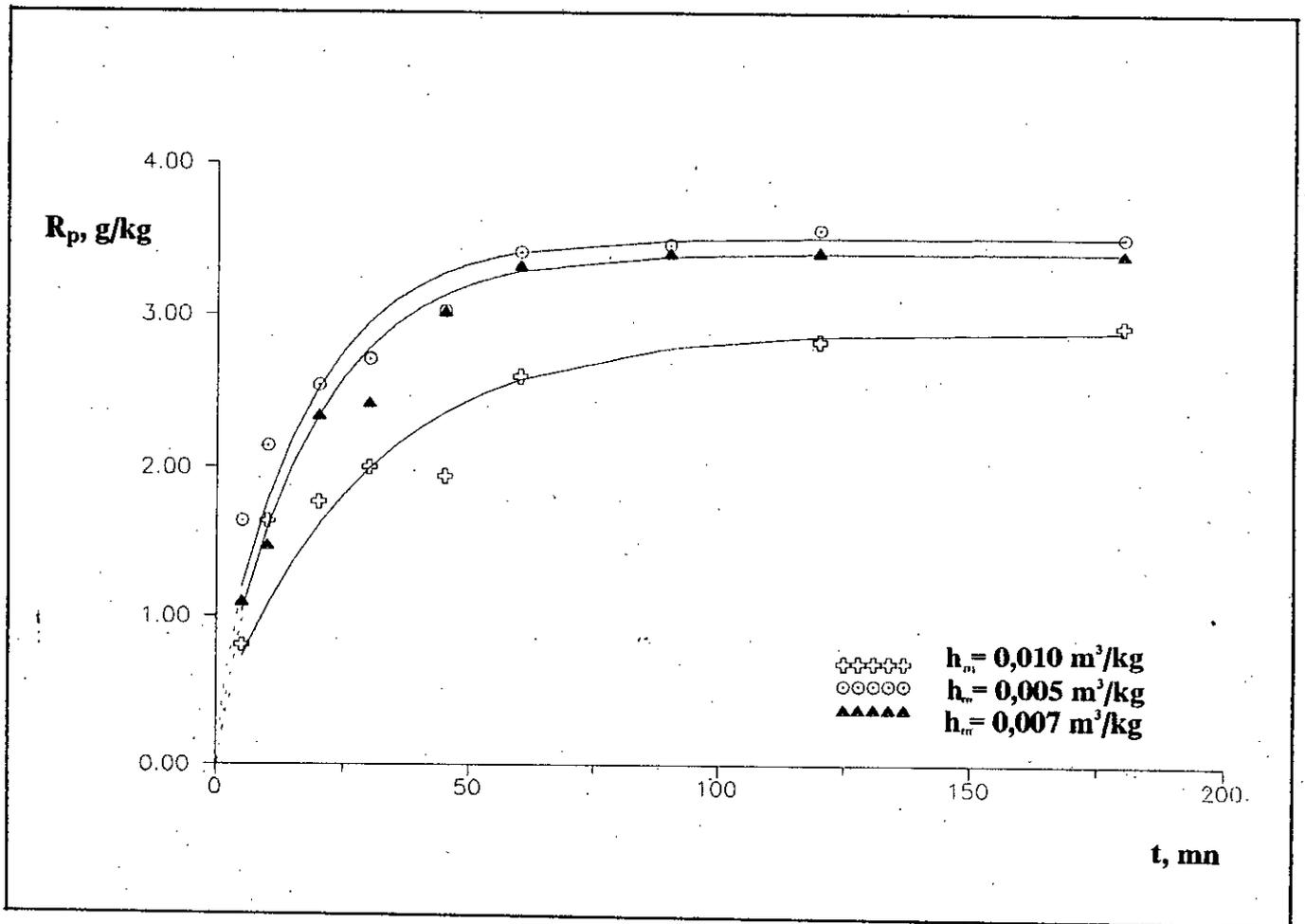


Figure 41: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaica* L. à l'éther de pétrole.
Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un taux d'humidité H de matière végétale de 10,00% et différents hydromodules h_m

Comme nous venons de le constater, les coefficients des équations représentant les courbes expérimentales ont des valeurs différentes, selon les conditions opératoires de l'extraction. Par conséquent, aucune de ces équations n'est en mesure de représenter l'évolution du système en fonction du temps, indépendamment des autres paramètres intervenant dans l'extraction solide-liquide. Aussi, avons-nous mis à profit de telles équations, pour déterminer les expressions mathématiques des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$. Ces deux fonctions exprimant l'évolution en fonction du temps de la concentration du soluté dans la phase solide présentent l'avantage d'être indépendantes de certains paramètres d'extraction.

V.5.2. La fonction cinétique γ

V.5.2.1. Définition

La fonction cinétique γ traduit l'évolution de la proportion de soluté non extrait de la phase solide en fonction du temps relatif, \bar{t} (157). Son expression s'écrit:

$$\gamma = f(\bar{t}) \quad [52]$$

Par ailleurs, on définit \bar{t} et un $\gamma(t)$ par les rapports suivants:

$$\bar{t} = \frac{t}{t_e} \quad [53]$$

$$\gamma(t) = \frac{m_s(t)}{m_0} \quad [54]$$

Par t est désigné le temps d'extraction et t_e le temps nécessaire à l'établissement de l'équilibre dans le système, tous deux exprimés en minutes. Au-delà de ce temps t_e , la variation de la concentration C_l du soluté dans la phase liquide devient négligeable.

$\gamma(t)$ désigne la proportion de soluté non extrait de la phase solide à l'instant t , $m_s(t)$ la masse de soluté dans la phase solide à l'instant t et m_0 celle initialement contenue dans le solide, en kg.

$\gamma(t)$ peut être également exprimé par la concentration C_l du soluté dans la phase liquide à l'instant t et par sa teneur initiale dans la phase solide C_0 , valeurs toutes deux expérimentalement accessibles. En effet, nous pouvons écrire:

$$\gamma(t) = \frac{m_s(t)}{m_0} = \frac{M.C_0 - V.C_l}{M.C_0} = 1 - \frac{V.C_l}{M.C_0}$$

ou encore:

$$\gamma(t) = 1 - \frac{h_m.C_l}{C_0} = 1 - \frac{R}{C_0} \quad [55]$$

Dans ces relations, M désigne la masse du solide, en kg, V le volume de la phase liquide, en m^3 , h_m l'hydromodule, en m^3/kg , et R le rendement en soluté, en kg/kg .

Le temps d'équilibre t_e peut être estimé à partir des équations des courbes expérimentales. Pour cela, il est nécessaire de trouver une valeur du terme Be^{-bt} de l'équation [36] qui soit négligeable par rapport à A . En effet, à l'instant t_e , le rendement R ne varie plus et tend vers A . Nous écrirons donc:

$$Be^{-bte} = aA \quad [56]$$

où a est un nombre infiniment petit, de sorte que le produit aA est nettement inférieur à A .

L'équation [56] permettra ainsi le calcul de ce temps d'équilibre t_e :

$$t_e = \frac{1}{b} \operatorname{Lg} \frac{B}{aA} \quad [57]$$

Ce temps d'équilibre t_e une fois déterminé, donnera accès au temps relatif \bar{t} .

Rappelons, par ailleurs que:

$$\begin{aligned} \text{à } t = 0, & \quad \bar{t} = 0 & \text{ et } & \gamma(t) = 1; \\ \text{à } t = t_e, & \quad \bar{t} = 1 & \text{ et } & \gamma(t_e) = \gamma_e = 1 - \frac{R_e}{C_0} \end{aligned} \quad [58]$$

à t compris entre 0 et t_e , $\gamma(t)$ prendra une valeur comprise entre 1 et γ_e .

R_e désigne le rendement en soluté à l'équilibre.

Pour vérifier que la valeur de aA choisie est suffisamment petite, on prend une autre valeur $a'A$, inférieure à la précédente et on calcule $\gamma'e$. Il faudrait que $\gamma'e \approx \gamma_e$.

V.5.2.2. Détermination de la fonction cinétique

A partir des équations [37] à [45], nous avons calculé le temps d'équilibre t_e , en attribuant à la constante a de l'équation [56] la valeur de 0,001. Il s'avère que pour cette valeur de a , les temps

d'équilibre t_e estimés permettent d'approcher de très près la valeur de A pour l'ensemble des équations. Les valeurs de t_e ainsi calculées sont regroupés dans les tableaux V.14 et V.15 ci-dessous.

Tableau V.14: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Valeurs des temps d'équilibre t_e calculées pour différents taux d'humidité H et températures d'extraction T

| | | | | | |
|-----------------------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| H, % | 36,93 | 31,93 | 31,93 | 17,96 | 11,48 |
| T, °C | 20 | 20 | 40 | 20 | 20 |
| t_e, mn | 228 | 189 | 189 | 111 | 106 |

Tableau V.15: Extraction de la concrète d'Artemisia judaïca L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Valeurs des temps d'équilibre t_e calculées pour différents taux d'humidité H et températures d'extraction T

| | | | | | |
|-----------------------------|--------------|--------------|--------------|-------------|-------------|
| H, % | 12,48 | 10,00 | 10,00 | 4,75 | 4,75 |
| T, °C | 20 | 20 | 40 | 20 | 40 |
| t_e, mn | 87 | 126 | 126 | 181 | 181 |

Les valeurs de ces tableaux montrent que le temps d'équilibre t_e est indépendant de la température d'extraction T et varie uniquement en fonction du taux d'humidité H de la plante. Cette variation est illustrée sur les figures 42 et 43.

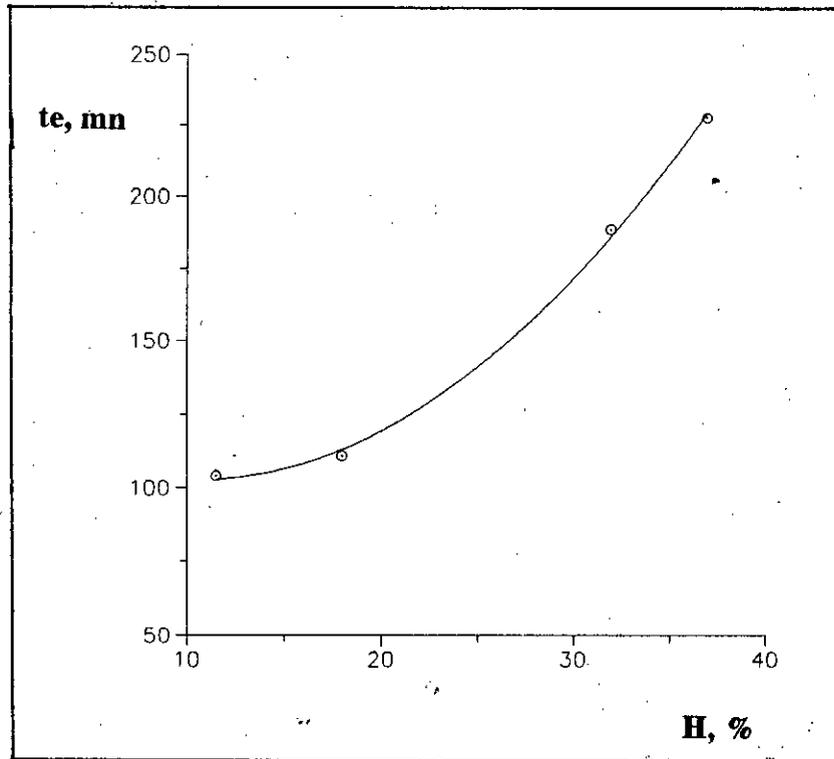


Figure 42: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Variation du temps d'équilibre t_e , en fonction du taux d'humidité H de la matière végétale ($h_m=0,007\text{m}^3/\text{kg}$)

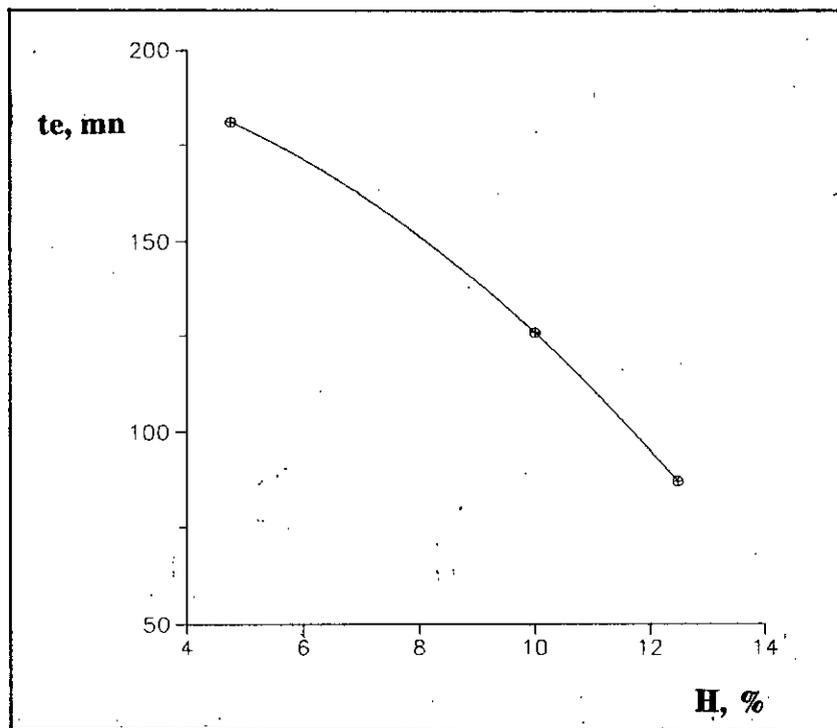


Figure 43: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Variation du temps d'équilibre t_e , en fonction du taux d'humidité H de la matière végétale ($h_m=0,007\text{m}^3/\text{kg}$)

Les temps d'équilibre t_e ainsi calculés permettent donc d'estimer les temps relatifs \bar{t} à tout instant t , en cours d'extraction. D'autre part, à partir de l'expression [55] de $\gamma(t)$ et des équations [37] à [45] des courbes expérimentales, nous pouvons évaluer γ , à condition de connaître la teneur initiale C_0 du soluté dans la phase solide, à différentes valeurs du taux d'humidité H de la matière végétale. A cet effet, nous avons utilisé les résultats obtenus à l'issue d'extractions menées sur nos deux plantes, en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Cette technique (144) permet ainsi de récupérer, de la matière végétale, la totalité des produits extractibles à l'éther de pétrole, dans des conditions opératoires données. La figure 44 donne la variation en fonction du taux d'humidité H de la teneur initiale C_{c0} de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. Quant à la variation de la teneur initiale C_{p0} en pipéritone dans la concrète d'*Artemisia judaïca* L. en fonction du taux d'humidité H , elle est présentée à la figure 45.

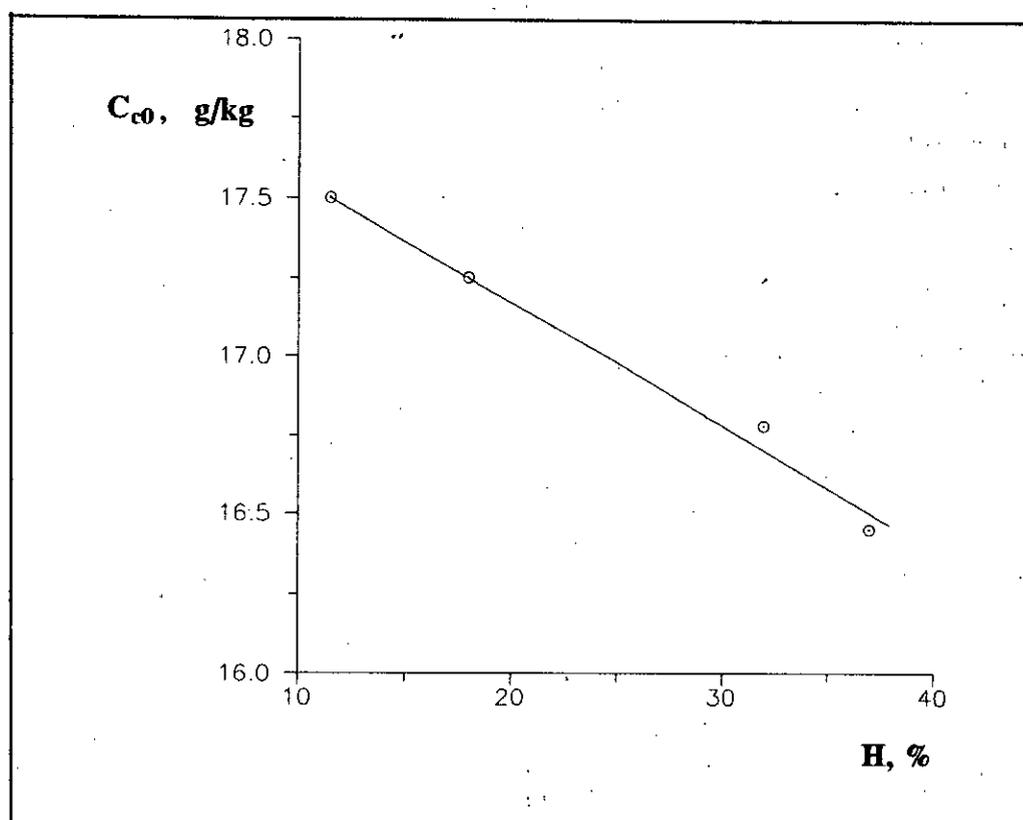


Figure 44: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Variation de la teneur initiale en concrète C_{c0} dans la plante en fonction du taux d'humidité H à $T=20^\circ\text{C}$

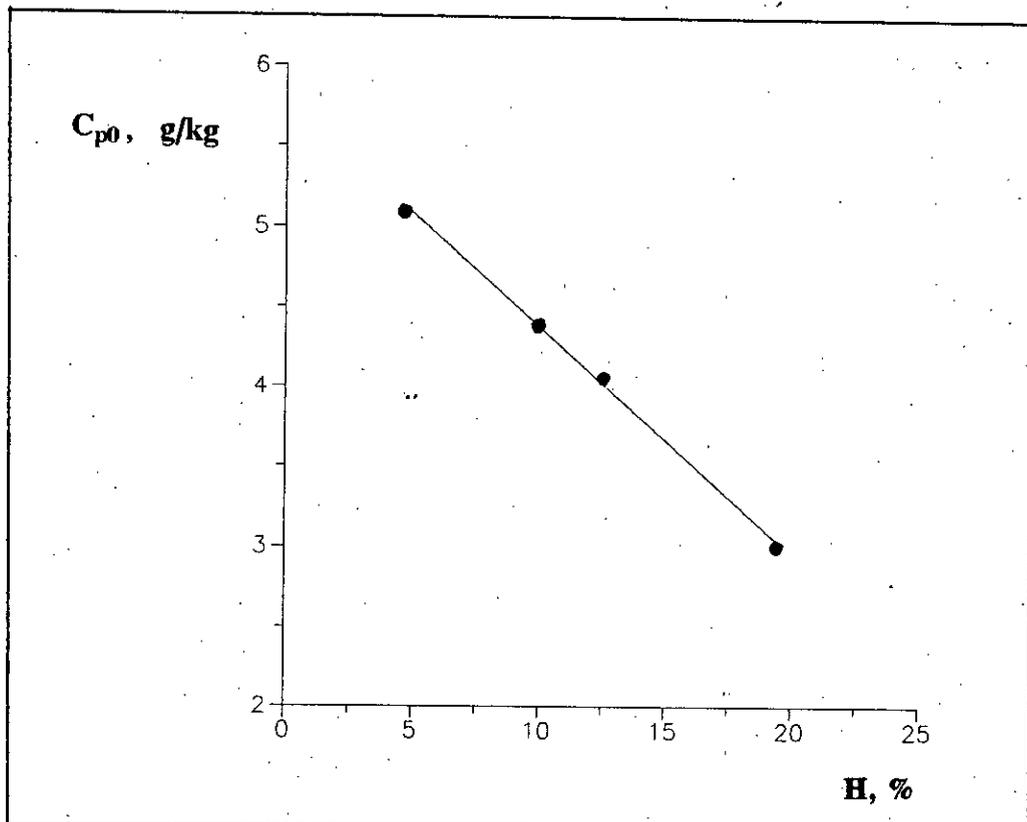


Figure 45: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaica* L. à l'éther de pétrole, dans un réacteur en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Variation de la teneur initiale en pipéritone C_{p0} dans la plante en fonction du taux d'humidité H à $T=20^{\circ}\text{C}$

Ainsi, nous avons pu calculer pour chaque courbe expérimentale les valeurs de $\gamma(t)$ et de \bar{t} . Ces valeurs sont présentées sur des graphes $\gamma=f(\bar{t})$ des figures 46 et 47.

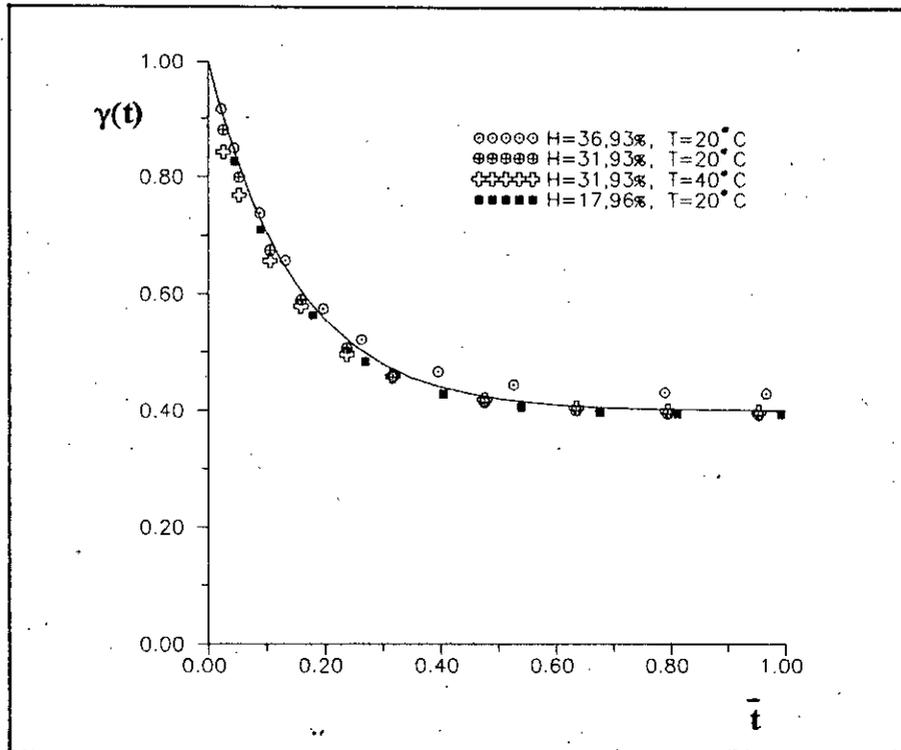


Figure 46: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution de la fonction cinétique γ en fonction du temps relatif \bar{t} , pour divers taux d'humidité H et températures d'extraction et un hydromodule h_m de $0,007\text{m}^3/\text{kg}$

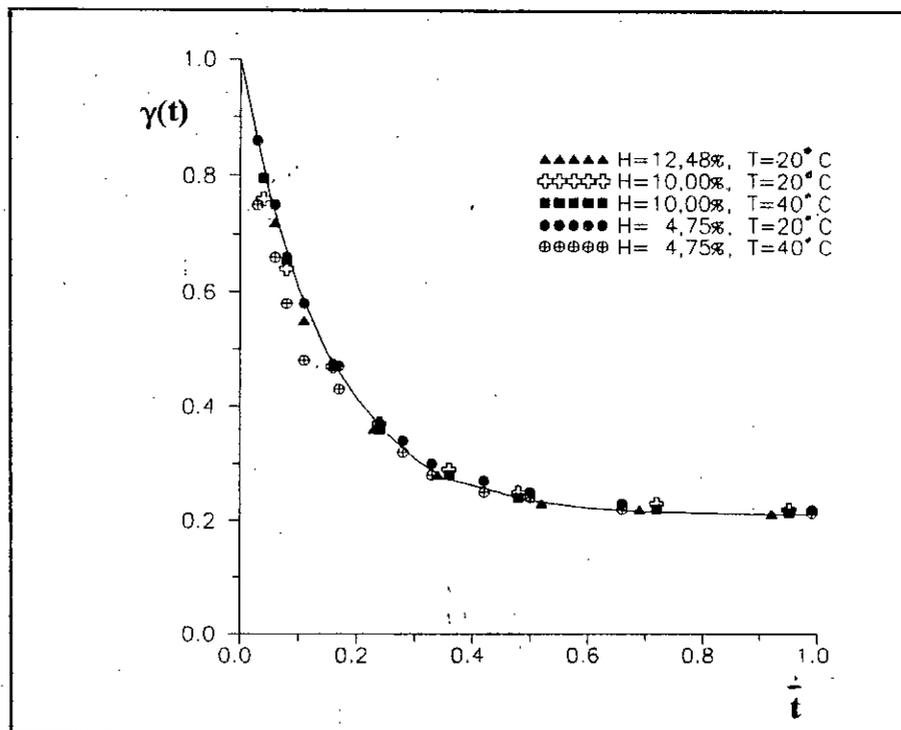


Figure 47: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaica* L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution de la fonction cinétique γ en fonction du temps relatif \bar{t} , pour divers taux d'humidité H et températures d'extraction et un hydromodule h_m de $0,007\text{m}^3/\text{kg}$

Nous observons que tous les points décrivent des courbes qui vérifient les équations suivantes respectivement pour:

* *Artemisia herba-alba* Asso.:

$$\gamma = 0,40 + 0,60 e^{-6,73t} \quad [59]$$

* *Artemisia judaïca* L.:

$$\gamma = 0,21 + 0,79 e^{-6,89t} \quad [60]$$

Les expressions [59] et [60] ci-dessus sont les équations de la fonction cinétique de l'extraction respectivement de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. et de la pipéritone d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole [65-95°C], avec un hydromodule de 0,007 m³/kg.

Les résultats obtenus montrent que quels que soient le taux d'humidité H du solide et la température T d'extraction dans le domaine étudié, la proportion de soluté non extrait suit la même évolution en fonction du temps relatif. La fonction cinétique est donc indépendante de ces deux paramètres, mais varie en fonction de l'hydromodule h_m . Aussi, peut-elle être utilisée pour le calcul des équations des courbes cinétiques $R=f(t)$ pour une même valeur de l'hydromodule.

V.5.3. La fonction standard ϕ^*

V.5.3.1. Rappel théorique (157)

La théorie de la fonction standard a vu le jour dans les années 1960 (150). Elle a été définie dans le but de décrire le phénomène de transfert de matière dans le système solide-liquide en ne tenant compte que des particularités de la phase solide. Son expression mathématique a été proposée comme l'une des solutions possibles du système à deux équations de diffusion (moléculaire et par convection) et dans le cas particulier où la concentration du soluté dans la phase liquide $C_l(t)$ reste constante au cours de l'extraction.

$$\left. \begin{aligned} \frac{dC_s(t)}{dt} &= Da \nabla^2 C_s(t) \\ - Da \frac{dC_s(t)}{dn} &= k [C_s(t)_N - C_l(t)] \end{aligned} \right\} [61]$$

où $C_s(t)$ désigne la concentration du soluté dans la phase solide à l'instant t , Da le coefficient

de diffusion moléculaire apparent, k le coefficient de diffusion par convection et N l'interface.

Rappelons que ces équations ne peuvent décrire le transfert de matière en milieu hétérogène que si ce dernier est assimilé à un milieu homogène équivalent, dans lequel les particules de solide ont la même forme régulière et des dimensions identiques, le soluté est uniformément réparti au sein de chaque particule et sa concentration identique en tout point de l'espace.

Si pour certains solides de nature minérale, en raison de leur structure cristalline, ces simplifications peuvent être envisagées, le cas des solides d'origine végétale est bien plus complexe. En effet, il est impossible d'assimiler les particules de matière végétale à une sphère, à un cylindre ou à un cube, du moment que les différents organes de la plante (tiges, feuilles, fleurs,...) sont traités en même temps, lors de l'extraction. D'autre part, il est difficile d'admettre une distribution uniforme du soluté au sein du végétal, sachant qu'il s'y trouve en faible proportion et que la plus grande partie de la matière végétale reste inerte vis-à-vis du solvant. Aussi, le coefficient de diffusion ne pouvant être considéré constant dans toutes les directions, l'équation de diffusion moléculaire dans une particule i de matière végétale pourra s'écrire sous la forme développée comme suit:

$$\frac{dC_{s,i}(x,y,z,t)}{dt} = \frac{d^2[D_x C_{s,i}(x)]}{dx^2} + \frac{d^2[D_y C_{s,i}(y)]}{dy^2} + \frac{d^2[D_z C_{s,i}(z)]}{dz^2} \quad [62]$$

où D_x, D_y et D_z sont les coefficients de diffusion dans les trois directions x, y et z de l'espace.

La résolution de cette équation peut être envisagée, tout en considérant que le solide est constitué de particules de forme et de dimensions différentes, mais en admettant constante la concentration du soluté dans la phase liquide. En pratique, cette situation se présente lorsque la phase liquide est très diluée, de sorte que la concentration du soluté y est infiniment petite et sa variation peut être négligée. Dans ce cas de dilution infinie de la phase liquide le coefficient de diffusion peut être considéré constant (149) et

$$D_a = D_x = D_y = D_z \quad [63]$$

Ainsi, si le solide est constitué de p particules de forme et de dimensions différentes et que la phase liquide est infiniment diluée, pour décrire le processus de diffusion, nous devons établir et résoudre le système à p équations suivant:

$$\left. \begin{aligned} \frac{dC_{s,i}(x,y,z,t)}{dt} &= D_a \nabla^2 C_{s,i}(x,y,z,t) \\ - D_a \frac{dC_{s,i}(x,y,z,t)}{dn} &= k [C_{s,i}(x,y,z,t)_N - C_l(0)] \end{aligned} \right\} \quad [64]$$

$i = 1, 2, 3, \dots, p$

$C_l(0)$ est la concentration initiale du soluté dans la phase liquide, supposée constante.

La solution de ce système d'équations [64] peut être représentée sous la forme:

$$\phi^* = \frac{C_0 - C_s(t)}{C_0 - C_l(0)} \quad [65]$$

Cette équation [65] est l'expression mathématique de la fonction standard ϕ^* , dans laquelle C_0 désigne la teneur initiale en soluté dans les p particules constituant le solide et $\bar{C}_s(t)$ la concentration moyenne du soluté dans une particule, identique pour l'ensemble de particules p du solide.

ϕ^* est la solution du système d'équations [64] dans les conditions limites suivantes:

$$\begin{array}{llll} \text{à } t = 0, & C_s(t) = C_0, & C_l(t) = C_l(0) & \text{et } \phi^* = 0 \\ \text{à } t > 0, & 0 < C_s(t) < C_0, & C_l(t) = C_l(0) & \text{et } \phi^* > 0 \\ \text{quand } t \rightarrow \infty, & C_s(t) \rightarrow 0, & C_l(t) = C_l(0) & \text{et } \phi^* \rightarrow 1 \end{array} \quad [66]$$

Vu les conditions pour lesquelles la fonction standard a été définie, sa détermination expérimentale est difficile, voire impossible. En effet, la concentration du soluté dans la phase solide étant expérimentalement inaccessible, l'on a généralement recours à la détermination de l'évolution de la concentration du soluté dans la phase liquide et au bilan matière. A cette démarche s'oppose le fait que l'expérience doit être réalisée avec un hydromodule très élevé, afin d'assurer la condition qu'à $t > 0$, $C_l(t) = C_l(0) = \text{constante}$, voire nulle si le solvant de départ est pur.

Vers les années 1970, ce problème a été résolu de manière originale. En effet, en faisant appel à la transformée de Laplace, le traitement mathématique des données expérimentales a permis d'établir l'équation de la fonction standard. Les propriétés de la transformée de Laplace (158) permettent ainsi de substituer la variable temps dans les équations de diffusion et d'exprimer la concentration du soluté en fonction des coordonnées de l'espace. Cette expression est ensuite transformée de manière à aboutir à une relation qui satisfasse les conditions aux limites (149).

La démarche expérimentale consiste donc à réaliser l'extraction avec un hydromodule permettant la mesure de la concentration du soluté dans la phase liquide et à établir l'équation de la courbe expérimentale $C_l(t) = f(t)$. D'autre part, l'expérience devra être menée jusqu'à l'établissement de l'équilibre, afin d'atteindre la concentration du soluté dans la phase liquide à

l'équilibre $C_l(te)$. Celle-ci est supposée égale à la concentration du même soluté dans la phase solide à l'instant $t=te$:

$$C_l(te) = C_s(te) = C_e \quad [67]$$

Enfin, il est nécessaire de déterminer la teneur initiale C_0 en soluté dans la phase solide. Ces données étant recueillies, il ne reste plus à établir le bilan matière dans le système solide-liquide:

$$m_0 - m_s(t) = m_l(t) - m_l(0) \quad [68]$$

où m_0 et $m_s(t)$ désignent respectivement les masses initiale et à tout instant t du soluté dans la phase solide, en kilogrammes, $m_l(0)$ et $m_l(t)$ respectivement les masses initiale et à tout instant t , du soluté dans la phase liquide, en kilogrammes.

Si au départ le solvant utilisé est pur, $m_l(0) = 0$ soit $C_l(0) = 0$.

Exprimée à l'aide des concentrations du soluté dans les deux phases, de la masse du solide et du volume de la phase liquide, l'équation du bilan matière s'écrit encore:

$$M.C_0 - M.C_s(t) = V.C_l(t) - V.C_l(0) \quad [69]$$

Cependant, si l'on tient compte du fait que seule une fraction ϵ de la masse totale du solide renferme le soluté, le reste se comportant comme un support inerte, dépourvu de soluté, la valeur de M dans l'équation [69] doit être corrigée:

$$\epsilon M [C_0 - C_s(t)] = V [C_l(t) - C_l(0)],$$

ou encore:

$$C_0 - C_s(t) = \frac{V [C_l(t) - C_l(0)]}{\epsilon M}$$

Le rapport V/M dans cette relation n'étant autre que l'hydromodule h_m , l'on pourra écrire alors:

$$C_0 - C_s(t) = \frac{h_m}{\epsilon} [C_l(t) - C_l(0)]$$

En posant
$$\beta = \frac{\varepsilon}{h_m} \quad [70]$$

l'équation du bilan matière deviendra :

$$C_0 - C_s(t) = \frac{1}{\beta} [C_I(t) - C_I(0)] \quad [71]$$

A un instant t , β sera donné par la relation:

$$\beta = \frac{C_I(t) - C_I(0)}{C_0 - C_s(t)}$$

Lorsque le système tend vers un état d'équilibre, β approche une valeur limite exprimée par le rapport:

$$\beta = \frac{C_I(te) - C_I(0)}{C_0 - C_s(te)}$$

Or, d'après la relation [67], $C_I(te) = C_s(te) = C_e$, il en vient:

$$\beta = \frac{C_e - C_I(0)}{C_0 - C_e} \quad [72]$$

Ainsi exprimée, la valeur de β peut être déterminée à partir des données expérimentales et permettra d'atteindre la valeur de ε qui est une caractéristique intrinsèque du solide:

$$\varepsilon = \beta h_m \quad [73]$$

En outre, les données expérimentales $C_I(t)$, $C_I(0)$ et C_0 permettent de déterminer l'expression analytique du rapport $G(t)$ suivant:

$$G(t) = \frac{C_0 - C_I(t)}{C_0 - C_I(0)} \quad [74]$$

En posant:

$$\phi_i(x,y,z,t) = \frac{C_0 - C_{si}(x,y,z,t)}{C_0 - C_i(0)} \quad [75]$$

et en introduisant ces deux dernières expressions dans l'équation du bilan matière [71], on obtient:

$$G(t) + \beta\phi_i(x,y,z,t) = 1 \quad [76]$$

D'autre part, le système d'équations de diffusion [64], peut s'exprimer à l'aide de ces rapports, $G(t)$ et $\phi_i(x,y,z,t)$ comme suit:

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\phi_i(x,y,z,t)}{dt} &= Da \nabla^2 \phi_i(x,y,z,t) \\ - Da \frac{d\phi_i(x,y,z,t)}{dn} &= k [\phi_i(x,y,z,t)_N - G(t)] \end{aligned} \right\} \quad [77]$$

Par ailleurs, si $\phi_i^*(x,y,z,t)$ est la solution du système d'équations [64], dans lequel $C_i(0)$ est une constante, ce dernier prendra la forme:

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\phi_i^*(x,y,z,t)}{dt} &= Da \nabla^2 \phi_i^*(x,y,z,t) \\ - Da \frac{d\phi_i^*(x,y,z,t)}{dn} &= k [\phi_i^*(x,y,z,t)_N - G(t)] \end{aligned} \right\} \quad [78]$$

La résolution de ces deux systèmes d'équations passe en posant $N(s)$, $M_i(x,y,z,s)$, $M_i^*(x,y,z,s)$ et $M^*(s)$ respectivement les transformées de Laplace de $G(t)$, $\phi_i(x,y,z,t)$, $\phi_i^*(x,y,z,t)$ et de la fonction standard ϕ^* :

$$N(s) = \mathcal{L}\{ G(t) \}$$

$$M_i(x,y,z,s) = \mathcal{L}\{ \phi_i(x,y,z,t) \}$$

[79]

$$M_i^*(x,y,z,s) = \mathcal{L}\{ \phi_i^*(x,y,z,t) \}$$

$$M^*(s) = \mathcal{L}\{ \phi^* \}$$

Ainsi la transformée de Laplace des systèmes d'équations [77] et [78] sera donnée respectivement par les équations [80] et [81]:

$$\frac{sM_i(x,y,z,s)}{dt} = Da \nabla^2 M_i(x,y,z,s) \quad [80]$$

$$- Da \frac{dM_i(x,y,z,s)}{dn} = k [M_i(x,y,z,s)_N - N(s)]$$

$$\frac{sM_i^*(x,y,z,s)}{dt} = Da \nabla^2 M_i^*(x,y,z,s) \quad [81]$$

$$- Da \frac{dM_i^*(x,y,z,s)}{dn} = k [M_i^*(x,y,z,s)_N - \frac{1}{s} N(s)]$$

En multipliant les deux termes de l'équation de diffusion par convection du système d'équations [81] par $s \cdot N(s)$, l'on obtient:

$$- Da \cdot sN(s) \frac{dM_i^*(x,y,z,s)}{dn} = k [M_i^*(x,y,z,s)_N \cdot sN(s) - N(s)] \quad [82]$$

La comparaison de l'équation obtenue [82] avec la transformée de Laplace de l'équation de diffusion par convection du système [80], permet de déduire que:

$$M_i(x,y,z,s)_N = M_i^*(x,y,z,s)_N \cdot sN(s) \quad [83]$$

En outre, la transformée de Laplace de l'équation [76] du bilan matière, exprimée en fonction de $G(t)$ et $\phi_i(x,y,z,t)$, s'écrit:

$$N(s) + \beta M_i(x,y,z,s) = \frac{1}{s} \quad [84]$$

En remplaçant $M_i(x,y,z,s)$ par son expression donnée par l'équation [83], l'on obtient:

$$N(s) + \beta M_i^*(x,y,z,s) N(s) = \frac{1}{s}$$

ou encore:

$$M_i^*(x,y,z,s) = \frac{1}{\beta s} \left[\frac{1}{sN(s)} - 1 \right]$$

La moyenne de $M_i^*(x,y,z,s)$ par rapport au système de coordonnées de l'espace s'écrit alors:

$$\bar{M}^*(s) = \frac{1}{\beta s} \left[\frac{1}{sN(s)} - 1 \right] \quad [85]$$

$\bar{M}^*(s)$ étant définie comme transformée de Laplace de la fonction standard ϕ^* , [79], cette dernière sera donc égale à:

$$\phi^* = \mathcal{L}^{-1} \{ \bar{M}^*(s) \} \quad [86]$$

La figure 48 résume les étapes du calcul de la fonction standard.

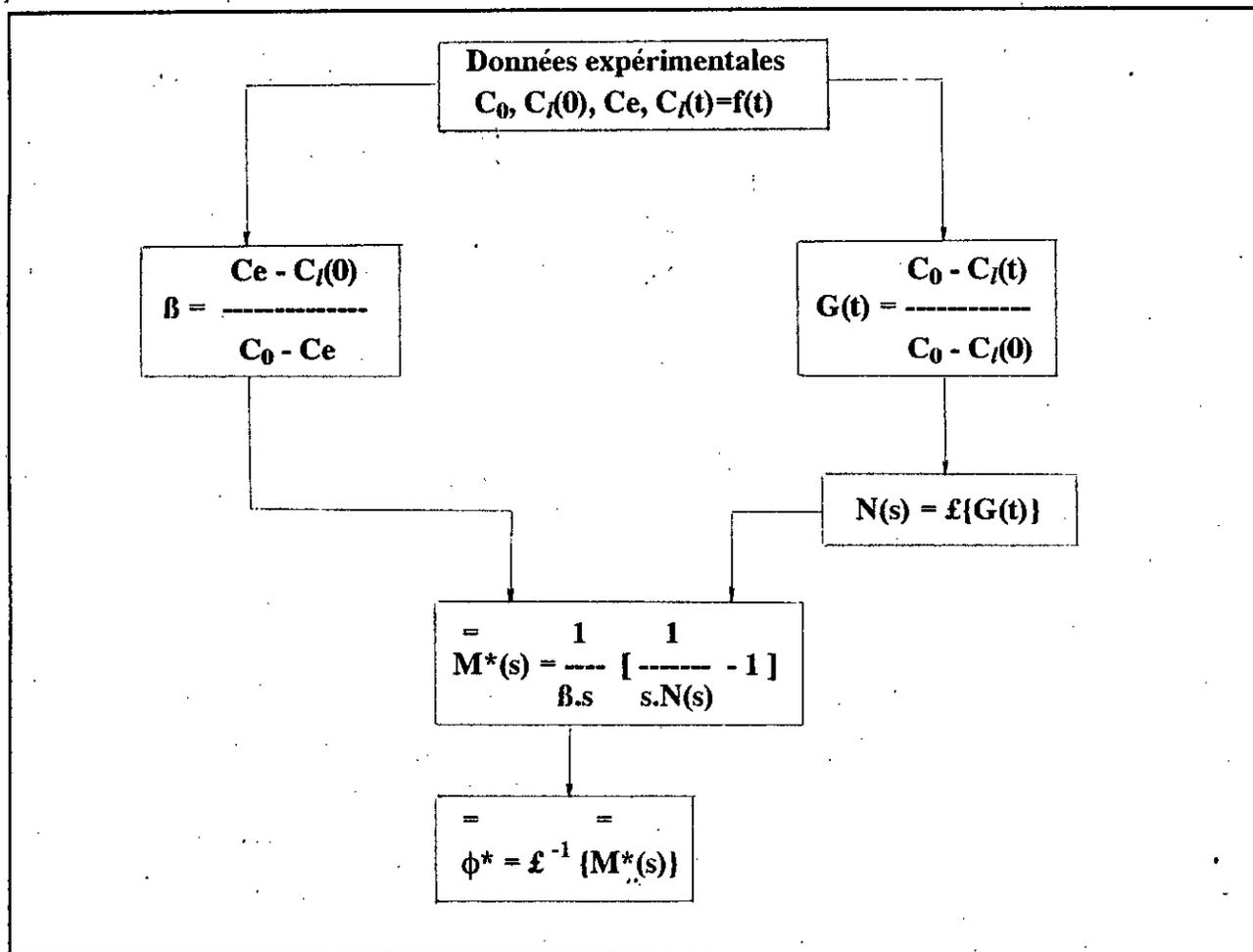


Figure 48: Schéma général présentant les différentes étapes de calcul de la fonction standard ϕ^*

L'intérêt d'établir la fonction standard pour un système solide-liquide réside dans le fait qu'elle permet de déterminer les équations donnant l'évolution du rendement en soluté en fonction du temps, pour une valeur donnée de ε et c_e , quelle que soit la valeur de l'hydromodule h_m .

V.5.3.2. Evaluation de la fonction standard ϕ^*

La fonction standard ϕ^* a été évaluée pour chacun des deux systèmes solide-liquide qui nous intéressent, suivant le schéma présenté à la figure 48. A cet effet, les résultats obtenus, lors des essais d'extraction réalisés dans un réacteur agité avec différents hydromodules, sur des échantillons d'Artemisia ayant le même taux d'humidité, ont été utilisés. Les données expérimentales de base, ainsi que les valeurs et les expressions calculées sont regroupées dans les tableaux V.14 et V.15.

Tableau V.16: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evaluation de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ du système Artemisia herba-alba Asso.-éther de pétrole [65-95°C] (taux d'humidité de la plante H=11,48 % et T=20°C)

| | 0,008 | $h_m, m^3/kg$ | 0,009 |
|--|---|---------------|---|
| Données expérimentales | | | |
| $R_c = f(t)$ | $R_c = 9,70 - 9,39 e^{-0,0591t}$ | | $R_c = 9,20 - 9,09 e^{-0,0540t}$ |
| $C_0, g/kg$ | 17,50 | | |
| $C_l(0), kg/m^3$ | 0 | | |
| Valeurs calculées | | | |
| t_e, mn | 116 | | 128 |
| $R_e, g/kg$ | 9,69 | | 9,19 |
| β | 1,2408 | | 1,1061 |
| ϵ | 0,01 | | 0,01 |
| Expressions calculées | | | |
| $G(t)^{(1)}$ | $G(t) = 0,446 + 0,537 e^{-0,0591t}$ | | $G(t) = 0,474 + 0,519 e^{-0,0540t}$ |
| $N(s)$ | $N(s) = \frac{0,446}{s} + \frac{0,537}{s+0,0591}$ | | $N(s) = \frac{0,474}{s} + \frac{0,519}{s+0,0540}$ |
| $M^*(s)$ | $M^*(s) = \frac{1,003}{s} - \frac{0,989}{s+0,0268}$ | | $M^*(s) = \frac{1,002}{s} - \frac{0,996}{s+0,0258}$ |
| ϕ^* | $\phi^* = 1,003 - 0,989 e^{-0,0268t}$ | | $\phi^* = 1,002 - 0,996 e^{-0,0258t}$ |
| ⁽¹⁾ dans l'expression de G(t) au lieu de C _c (t), la valeur de $R_c = h_m \cdot C_c(t)$ a été utilisée | | | |

Tableau V.17: Extraction de la concrète d'Artemisia judaïca L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evaluation de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ du système Artemisia judaïca L.-éther de pétrole [65-95°C] (taux d'humidité de la plante H=10,00 % et T=20°C)

| | $h_m, m^3/kg$ | |
|--|---|---|
| | 0,010 | 0,005 |
| Données expérimentales | | |
| $R_p = f(t)$ | $R_p = 2,90 - 2,60 e^{-0,0350t}$ | $R_p = 3,50 - 3,06 e^{-0,0570t}$ |
| $C_0, g/kg$ | 4,38 | |
| $C_A(0), kg/m^3$ | 0 | |
| Valeurs calculées | | |
| t_e, mn | 194 | 118 |
| $Re, g/kg$ | 2,89 | 3,49 |
| β | 1,9537 | 3,9576 |
| ϵ | 0,02 | 0,02 |
| Expressions calculées | | |
| $G(t)^{(2)}$ | $G(t) = 0,338 + 0,594 e^{-0,0350t}$ | $G(t) = 0,201 + 0,699 e^{-0,0570t}$ |
| $N(s)$ | $N(s) = \frac{0,338}{s} + \frac{0,594}{s+0,0350}$ | $N(s) = \frac{0,201}{s} + \frac{0,699}{s+0,0570}$ |
| $M^*(s)$ | $M^*(s) = \frac{1,003}{s} - \frac{0,966}{s+0,0127}$ | $M(s) = \frac{1,004}{s} - \frac{0,977}{s+0,0127}$ |
| ϕ^* | $\phi^* = 1,003 - 0,966 e^{-0,0127t}$ | $\phi^* = 1,004 - 0,977 e^{-0,0127t}$ |
| <p>⁽²⁾ dans l'expression de G(t) au lieu de C_p(t), la valeur de $R_p = h_m \cdot C_p(t)$ a été utilisée</p> | | |

Pour nos deux Artemisia, les équations de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ calculées pour deux valeurs différentes d'hydromodule sont représentées graphiquement sur les figures 49 et 50.

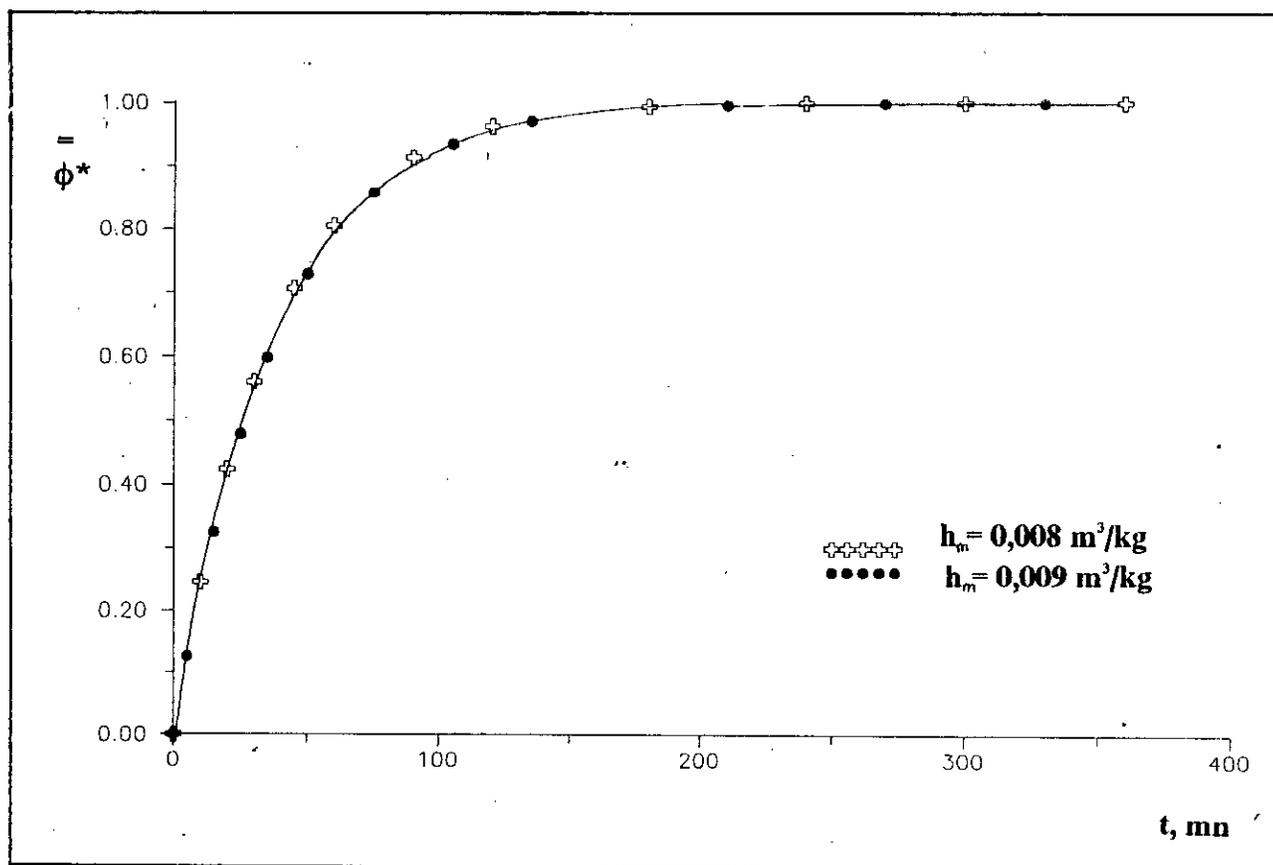


Figure 49: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole [65-95°C] à $T=20^\circ\text{C}$ dans un réacteur agité. Représentation graphique de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ en fonction du temps t , pour deux valeurs d'hydromodule h_m , un même taux d'humidité $H=11,48\%$ correspondant à une fraction ϵ de 0,01

V.5.4. Intérêt pratique d'utilisation des fonctions cinétique γ et standard ϕ^* pour la détermination et la prévision de la cinétique d'extraction des concrètes des deux *Artemisia* à l'éther de pétrole

Les fonctions cinétique γ et standard ϕ^* sont complémentaires. En effet, chacune d'elles permet d'établir les équations donnant l'évolution du rendement en soluté en fonction du temps, pour différentes valeurs des principaux paramètres intervenant dans l'extraction.

C'est ainsi que la fonction cinétique γ , indépendante du taux d'humidité H de la matière végétale et de la température T d'extraction, permet d'accéder aux équations $R=f(t)$, correspondant au hydromodule pour lequel elle a été établie. Par ailleurs, indépendante de l'hydromodule, la fonction standard ϕ^* permet d'établir les équations $R=f(t)$, correspondant aux divers hydromodules et dans les mêmes conditions de température T d'extraction et de taux d'humidité H de la matière végétale, pour lesquelles elle a été déterminée.

Pour illustrer l'intérêt pratique d'utilisation simultanée de ces deux fonctions, prenons les deux cas concrets suivants. Dans chacun d'eux, l'on déterminera et prédira, à l'aide de l'une de ces deux fonctions, l'autre étant préétablie, les équations régissant l'évolution du rendement R en soluté en fonction du temps, dans d'autres conditions opératoires. Ces équations seront comparées à celles déduites de l'expérience.

Dans le premier cas, c'est l'équation de la fonction standard ϕ^* qui est préalablement établie pour un taux d'humidité H de matière végétale et une température T d'extraction donnés; dans le second cas, c'est l'équation de la fonction cinétique γ qui est préalablement établie pour une valeur d'hydromodule donnée.

V.5.4.1. Cas où l'équation de la fonction standard ϕ^* est préalablement établie

$$\text{Soit } \phi^* = 1,004 - 0,977e^{-0,0127t} \quad (\text{Tableau V.17}),$$

l'équation de la fonction standard ϕ^* établie lors de l'extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole [65°-95°C] dans les conditions suivantes: $H=10,00\%$, $T=20^\circ\text{C}$ et $h_m=0,005\text{m}^3/\text{kg}$.

Etablissons les équations donnant l'évolution du rendement en pipéritone R_p en fonction du temps, lorsque l'extraction a lieu à une température T de 40°C, avec différents taux d'humidité H d'*Artemisia judaïca* L. et un hydromodule de 0,007 m³/kg.

Pour ce faire, l'on procédera d'abord à la détermination de l'équation $R_p=f(t)$ correspondant aux mêmes taux d'humidité H et température T d'extraction pour lesquels la valeur de ϵ a été déjà déterminée, $\epsilon=0,02$, mais pour une autre valeur d'hydromodule h_m , en l'occurrence 0,007 m³/kg.

En utilisant le schéma de calcul présenté à la figure 51, l'on aboutit à l'équation suivante:

$$R_p = 3,46 - 2,98 e^{-0,0534t}$$

En se référant à la figure 45, l'on détermine la valeur de la teneur initiale en pipéritone C_{p0} , correspondant à un taux d'humidité H de 10,00%, soit $C_{p0}=4,38$ g/kg. Ensuite, à partir de l'équation [89] et les valeurs de C_{p0} et du temps d'équilibre t_e , on calcule l'expression de $\gamma=f(t)$, puis celle de la fonction cinétique γ :

$$\gamma(t) = 1 - \frac{R_p}{C_{p0}} = 1 - \frac{3,46 - 2,98 e^{-0,0534t}}{4,38}$$

$$\gamma(t) = 0,21 + 0,68 e^{-0,0534t}$$

$$\gamma = 0,21 + 0,68 e^{-6,76t} \quad [90]$$

L'équation ainsi déterminée de cette fonction cinétique γ permet de calculer les équations $R_p=f(t)$ correspondant à un même hydromodule h_m de 0,007 m³/kg mais à différents taux d'humidité H et températures T d'extraction. A titre d'exemple, déterminons l'équation donnant l'évolution du rendement en pipéritone R_p , lorsque l'extraction est réalisée à 40°C, sur un échantillon d'Artemisia judaïca L. ayant un taux d'humidité H de 4,75 %. Pour cela, l'on détermine les valeurs expérimentales de C_{p0} et t_e , correspondant à ce taux d'humidité H de 4,75 % et à cette température T de 40°C. Ces valeurs sont respectivement:

$$C_{p0} = 5,80 \text{ g/kg et } t_e = 181 \text{ mn,}$$

valeurs tirées des tableaux V.10 et V.15:

En introduisant ces valeurs dans l'équation [90] de γ , l'on obtient:

$$\gamma = 0,21 + 0,68 e^{-6,76/181t} = 1 - \frac{R_p}{5,80}$$

$$\text{soit } R_p = 4,58 - 3,94 e^{-0,0373t} \quad [91]$$

Le tableau V.18 regroupe les résultats obtenus.

Tableau V.18: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des équations expérimentales et calculées à partir de la fonction standard $\bar{\phi}^*$

| Equations expérimentales | Equations calculées | Ecart relatif de coefficients, % | | |
|---------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|------|------|
| | | A | B | b |
| $R_p = 3,40 - 3,10e^{-0,0538t}$ | $R_p = 3,46 - 2,98e^{-0,0534t}$ | 1,76 | 3,87 | 0,07 |
| $R_p = 4,60 - 3,80e^{-0,0372t}$ | $R_p = 4,58 - 3,94e^{-0,0373t}$ | 0,43 | 3,68 | 0,26 |

La comparaison (Tableau V.18) des équations ainsi calculées à partir de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ avec celles déterminées expérimentalement dans les mêmes conditions opératoires (les équations [42] et [45]) montre un bon accord. En effet, l'écart relatif des coefficients A, B et b des équations, estimé en prenant comme référence ceux des équations expérimentales n'excède pas 4% d'erreur.

V.5.42. Cas où l'équation de la fonction cinétique γ est préalablement établie

$$\text{Soit } \gamma = 0,40 + 0,60 e^{-6,73t}, \quad [59]$$

l'équation de la fonction cinétique γ établie lors de l'extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole [65-95°C] avec un hydromodule h_m de 0,007 m³/kg. Les relations $C_{c0}=f(H)$ et $t_e=f(H)$ sont connues.

Etablissons l'équation donnant l'évolution du rendement en concrète R_c en fonction du temps, lorsque l'extraction a lieu à la même température T de 20°C, sur des échantillons d'*Artemisia herba-alba* Asso. d'un taux d'humidité H de 11,48 %, avec un hydromodule h_m de 0,008 m³/kg. Pour cela, l'on procédera comme suit.

A partir des figures 42 et 44, l'on détermine respectivement les valeurs du temps d'équilibre t_e et de la teneur initiale en concrète C_{c0} correspondant à un taux d'humidité H de 11,48 %. Ces valeurs sont respectivement:

$$t_e = 104 \text{ mn et } C_{c0} = 17,50 \text{ g/kg}$$

En utilisant ces valeurs de t_e et C_{c0} et l'équation précédente [59] de la fonction cinétique γ , l'on calculera l'équation $R_c=f(t)$ obtenue dans ces conditions:

$$\gamma = 1 - \frac{R_c}{C_{c0}} \longrightarrow R_c = 10,50 - 10,50e^{-0,0647t}$$

En se référant au schéma de calcul de la figure 48, l'on déterminera l'équation de la fonction standard suivante:

$$\phi^* = 1,002 - 1,002 e^{-0,0259t} \quad [92]$$

La valeur de ϵ correspondant à un taux d'humidité H de 11,48 % étant estimée à 0,01 permet de calculer la valeur de β pour un hydromodule h_m de 0,008 m³/kg:

$$\beta = \frac{\epsilon}{h_m} = \frac{0,01}{0,008} = 1,2375$$

Enfin, en utilisant cette valeur de β , l'équation de la fonction standard [92] et le schéma de calcul présenté à la figure 51, l'on calculera l'équation du rendement R_c correspondant. Celle-ci s'écrit dans les conditions précitées:

$$R_c = 9,70 - 9,70 e^{-0,0580t} \quad [93]$$

Comme dans le cas précédent, nous avons comparé les équations calculées avec celles déterminées expérimentalement. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau V.19 ci-dessous.

Tableau V.19: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des équations expérimentales et calculées à partir de la fonction cinétique γ

| Equations expérimentales | Equations calculées | Ecart relatif de coefficients, % | | |
|-----------------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|------|------|
| | | A | B | b |
| $R_c = 10,50 - 10,05e^{-0,0640t}$ | $R_c = 10,50 - 10,50e^{-0,0647t}$ | 0,00 | 3,52 | 1,35 |
| $R_c = 9,70 - 9,37e^{-0,0591t}$ | $R_c = 9,70 - 9,70e^{-0,0580t}$ | 0,00 | 3,52 | 1,35 |

Les valeurs de ce tableau montrent que les équations calculées et expérimentales sont en bon accord puisque l'erreur commise n'excède pas celle déjà estimée ($\pm 6\%$) en considérant la valeur de l'hydromodule h_m constante.

Sur la base de ces résultats, nous pouvons conclure que l'utilisation des fonctions cinétique et standard permet de conforter le choix des conditions opératoires tout en limitant considérablement le nombre d'expériences, ce qui présente un réel intérêt pratique. Voyons cependant leurs limites d'utilisation.

V.5.5. Limites d'utilisation des fonctions cinétique γ et standard ϕ^*

Au cours de cette même étude nous nous sommes intéressés également aux possibilités d'utiliser ces deux fonctions dans les cas où une autre fraction d'éther de pétrole est utilisée comme solvant d'extraction ou encore un autre lot de matière végétale, de période et de lieu de végétation différents, est soumis à l'extraction de la concrète. Une telle étude est à notre avis justifiée, car dans les expressions mathématiques des deux fonctions figure le rapport $C_I(t)/C_0$ qui pourrait s'avérer indépendant soit de la nature du solvant soit de la période et du lieu de végétation de la plante.

Pour cela, nous avons effectué deux séries d'essais. Dans une première série, des échantillons d'*Artemisia herba-alba* Asso. fleurie, récoltés aux environs de la ville de Bordj Bou Arréridj, ont été soumis à extraction avec une fraction d'éther de pétrole Merck [45-65°C]. Une deuxième série d'essais intéressa l'extraction à l'éther de pétrole Merck [65-95°C], d'échantillons d'*Artemisia herba-alba* Asso. récoltés en période de formation de boutons floraux, aux environs de la ville d'Aflou. Rappelons que l'huile essentielle de ces deux peuplements d'*Artemisia herba-alba* Asso. est du même type camphre-thuyone-chrysanthénone. Toutefois, l'aspect extérieur de la plante de ces deux lots laissait supposer une texture différente, la formation du bois étant bien avancée dans la plante fleurie.

Les essais d'extraction à charge dispersée ont tous été réalisés à 20°C avec un hydromodule h_m de 0,007 m³/kg. Les résultats expérimentaux nous ont permis d'établir les équations des courbes $R_c=f(t)$ et d'en déduire les valeurs de t_e et ϵ . Quant aux teneurs initiales en concrète C_{c0} elles ont été déterminées par extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau V.20.

Tableau V.20: Paramètres $R_c=f(t)$, C_{c0} , t_e et ϵ , déterminés lors des essais d'extraction de différents lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. par différentes fractions d'éther de pétrole Merck

| Solvant | Ether de pétrole [45-65°C] | Ether de pétrole [65-95°C] |
|-----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| Provenance de la matière végétale | Bordj Bou Arréridj | Aflou |
| Taux d'humidité H, % | 12,97 | 14,42 |
| C_{c0} , g/kg | 11,74 | 14,85 |
| $R_c=f(t)$ | $R_c = 6,30 - 5,72 e^{-0,0395t}$ | $R_c = 5,00 - 4,63 e^{-0,0502t}$ |
| t_e , mn | 172 | 136 |
| ϵ | 0,008 | 0,003 |

Ces résultats suscitent les remarques suivantes.

- Les relations $C_{c0}=f(H)$ et $t_e=f(H)$ établies précédemment, ne sont plus valables dans les cas présents. En effet, un important écart est observé entre les valeurs déterminées expérimentalement et celles, déduites des figures 42 et 44 pour ces taux d'humidités.

- La valeur de ϵ reste sensiblement la même ($\approx 0,01$) pour la plante en provenance de Bordj Bou Arréridj, mais en revanche, elle est nettement inférieure pour la plante d'Aflou. L'écart observé témoigne donc de la différence de texture de ces deux échantillons.

Par conséquent, à l'aide des équations des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$ déjà établies, la tentative de retrouver les équations $R_c=f(t)$ notamment pour la plante d'Aflou a échoué.

Cependant, il a été constaté que les équations [59] et [87] des fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$ permettent d'établir avec une précision satisfaisante, l'équation donnant l'évolution du rendement en concrète en fonction du temps lorsque le matériel végétal est le même que celui utilisé pour leur détermination, et que le solvant est différent. En effet, les coefficients de l'équation [94] de la fonction cinétique, déterminée à partir des données expérimentales du tableau V.20 et relative à l'extraction de la plante de Bordj Bou Arréridj à l'éther de pétrole [45-65°C], que l'on désignera, par γ^* , sont du même ordre de grandeur que ceux de l'équation [59]:

$$\gamma^* = 0,46 + 0,54 e^{-6,79t} \quad [94]$$

$$\gamma = 0,40 + 0,60 e^{-6,73t} \quad [59]$$

Cela signifie que dans les deux systèmes solide-liquide étudiés, le rapport $C_f(t)/C_0$ est sensiblement constant et ce, quelle que soit la fraction d'éther de pétrole utilisée.

Par ailleurs, à partir de l'équation [87] de la fonction standard $\bar{\phi}^*$, établie pour le système Artemisia herba-alba Asso.(BBA)-éther de pétrole [65-95°C], nous avons calculé l'équation $R_c^*=f(t)$ correspondant à l'extraction de ce même solide mais à l'éther de pétrole [45-65°C]. Celle-ci s'écrit:

$$R_c^* = 6,27 - 6,06 e^{-0,0556t} \quad [95]$$

La figure 52 réunit la courbe calculée à partir de l'équation [95] et les points expérimentaux.

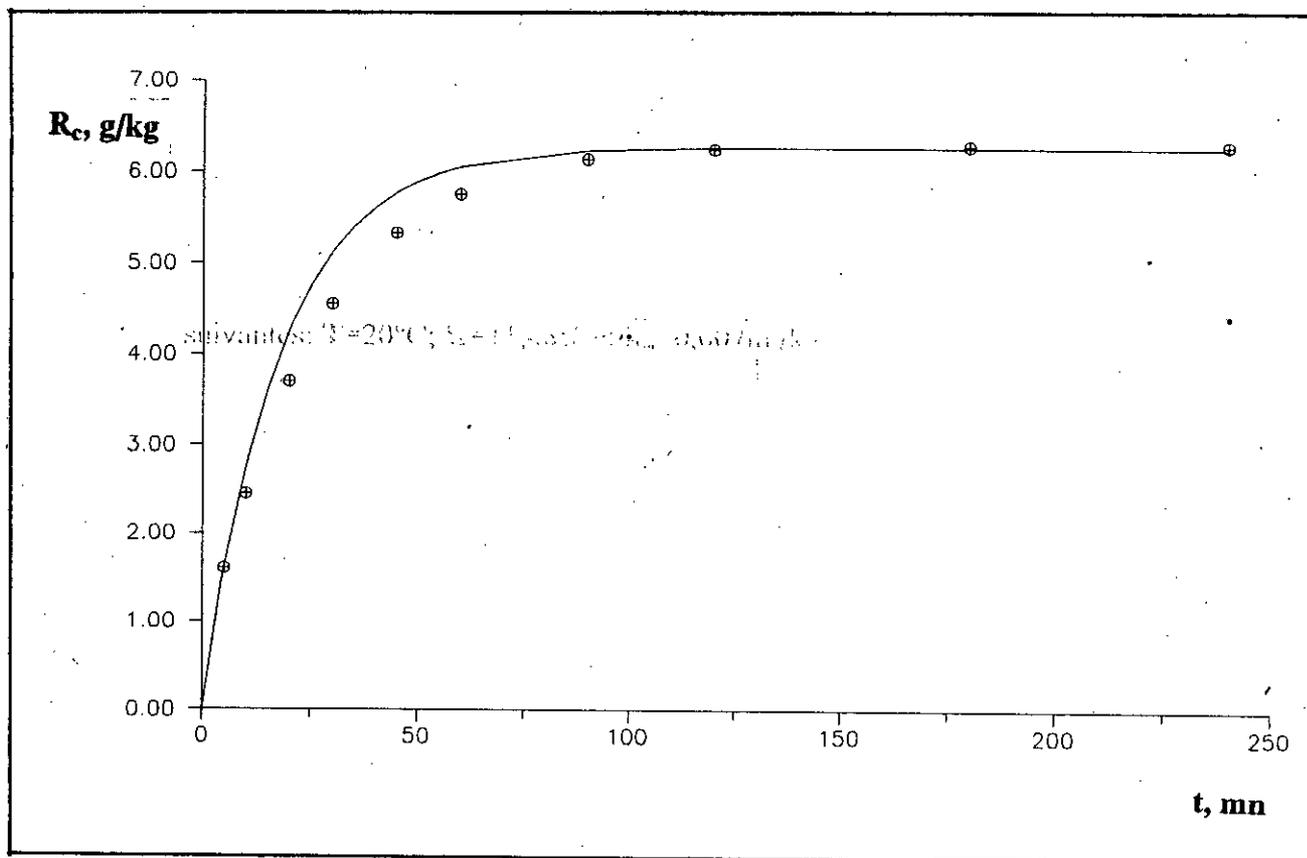


Figure 52: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des courbes $R_c=f(t)$

- calculée à partir de la fonction standard $\bar{\phi}^*$ du système Artemisia herba-alba Asso.-éther de pétrole [65-95°C]
- ⊙⊙⊙⊙⊙ expérimentale obtenue à l'éther de pétrole [45-65°C] dans les conditions suivantes: $T=20^\circ\text{C}$; $H=11,48\%$ et $h_{m,0}=0,007\text{m}^3/\text{kg}$

Nous constatons que la courbe calculée représente assez correctement l'évolution du rendement R_c en concrète en fonction du temps t déterminée expérimentalement. L'écart observé notamment en début d'extraction pourrait être attribué à l'étape de solubilisation des constituants de la concrète situés à la surface de la matière végétale, l'étape prédominante pendant cette phase du processus.

Les résultats de cette étude nous amènent à conclure que les fonctions cinétique γ et standard $\bar{\phi}^*$ sont indépendantes de la nature du solvant, mais ne peuvent être utilisées que pour la phase solide pour laquelle elles ont été établies. Cette conclusion corrobore la définition même de ces deux fonctions puisqu'elles ne tiennent compte en effet que des particularités de la phase solide.

V.6. Dimensionnement d'un extracteur à vis convoyeuse destiné à l'extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso.

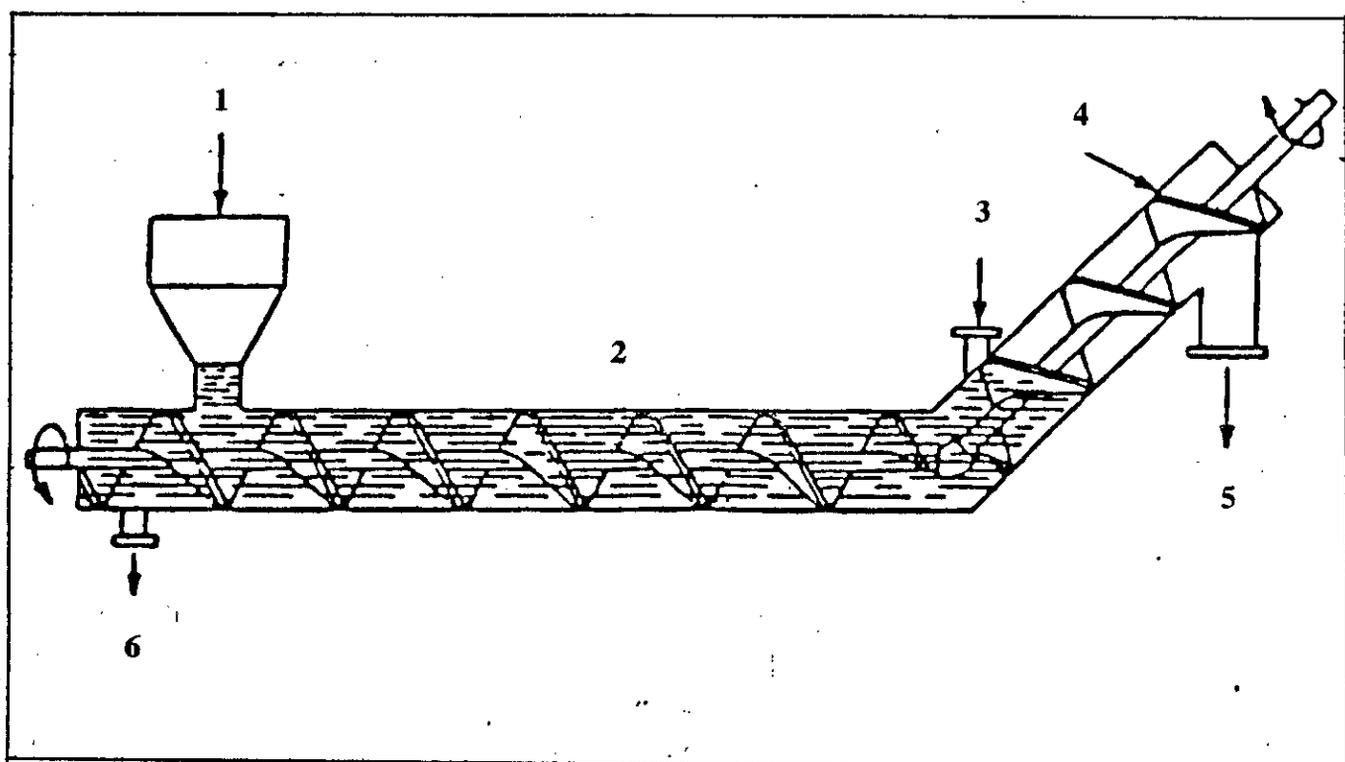
Le caractère périodique des récoltes et l'évolution de la composition chimique de l'huile essentielle lors de stockage imposent aux unités d'extraction de traiter, dans les meilleurs délais, d'importantes quantités de matière végétale. Pour y parvenir, il est fait de plus en plus appel aux extracteurs fonctionnant en continu. Les procédés existants d'extraction solide-liquide en continu sont pour la plupart inspirés par les techniques de convoyage de solides (vis convoyeuse, tapis roulants, godets).

A travers cette étude nous avons recherché à adapter un fonctionnement en continu du procédé d'extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. Pour ce faire, nous avons envisagé l'utilisation d'un extracteur à vis convoyeuse. Ce dernier est schématisé à la figure 53.

La mise en oeuvre d'un tel extracteur est simple. La matière végétale, introduite en tête de l'appareil, est entraînée par le mouvement sans fin de la vis convoyeuse à travers l'extracteur et s'achemine vers l'élévateur d'où elle est évacuée sous forme de résidu solide.

Lors d'un fonctionnement à contre-courant (figure 53), le solvant est introduit en tête de l'élévateur, alors que la miscella est évacuée en tête de l'extracteur. Pour un fonctionnement à courant, la matière végétale et le solvant alimentent la tête de l'extracteur et la récupération de la miscella se fait au niveau de l'élévateur.

Ce type d'extracteur est bien adapté au traitement des solides ayant une mauvaise tenue mécanique ou formant des fines en cours d'extraction. La souplesse de son utilisation constitue l'autre avantage. En effet, la vitesse de rotation de la vis peut être modifiée afin de limiter la dégradation du solide. D'autre part, le rapport massique solide-liquide n'est pas critique et le débit de solvant peut être réglé de manière à prévenir l'entraînement des fines.



1: entrée de la matière végétale; 2: réacteur d'extraction; 3: entrée du solvant;
4: élévateur; 5: sortie du résidu solide; 6: sortie de la miscella

**Figure 53: Schéma de l'extracteur à vis convoyeuse fonctionnant à contre-courant
tiré de Chem. Eng., March, 15, 1965**

Son principal inconvénient est l'absence d'autofiltration, ce qui impose l'utilisation d'un système de clarification de l'extrait à la sortie de l'appareil.

Dans ce qui suit, nous proposons un exemple de dimensionnement d'un tel extracteur à vis convoyeuse destiné à l'extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'échelle semi-pilote.

V.6.1. Formulation du problème

L'on se propose de déterminer la longueur d'un extracteur à vis convoyeuse pouvant traiter un kilogramme par heure de sommités fleuries d'*Artemisia herba-alba* Asso. L'extraction sera effectuée à l'éther de pétrole [65°-95°C], à une température de 20°C et avec un hydromodule de 0,007 m³/kg.

Par ailleurs, l'on dispose des données suivantes:

* Données expérimentales

- taux d'humidité de la matière végétale, $H=11,48 \%$;
- rapport des volumes occupés par la plante compactée et non compactée, $r=0,0875$, soit $8,75\%$
- masse volumique de la matière végétale, $\rho =984 \text{ kg/m}^3$;
- équation de la fonction cinétique: $\gamma = 0,40 - 0,60 e^{-6,73t}$

* Données admises (157)

- diamètre de la vis convoyeuse, $d=0,12 \text{ m}$
- pas de la vis convoyeuse, $l=0,06 \text{ m}$

V.6.2. Bilan matière

Etablissons les bilans matière sur une tranche de l'extracteur de longueur x fonctionnant à co- et contre-courant tels que schématisés sur les figures 54 et 55 ci-dessous.

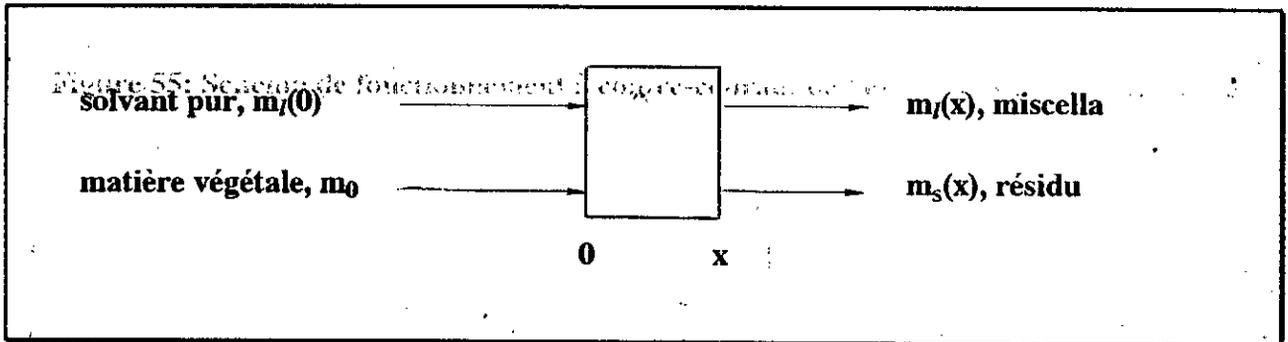


Figure 54: Schéma de fonctionnement à co-courant de l'extracteur à vis convoyeuse

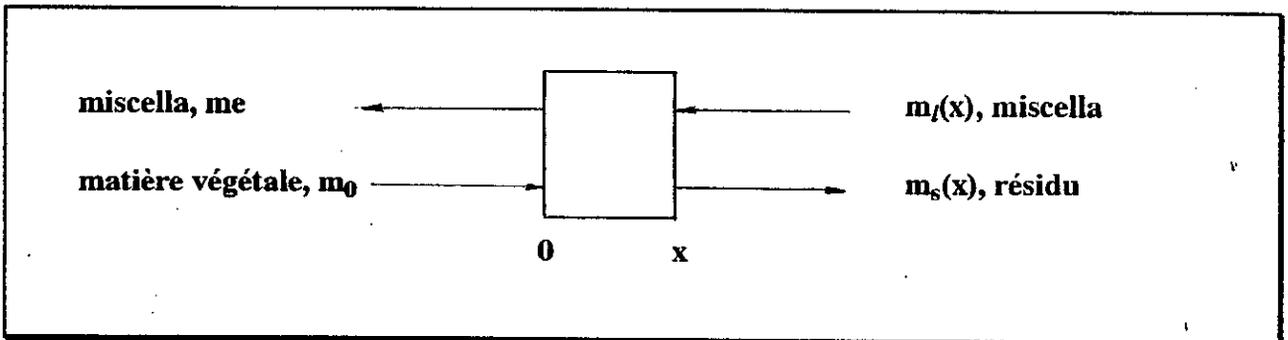


Figure 55: Schéma de fonctionnement à contre-courant de l'extracteur à vis convoyeuse

* Fonctionnement à co-courant

Le bilan matière s'écrit:

$$m_0 - m_s(x) = m_f(x) - m_f(0)$$

En divisant par m_0 les deux membres de cette équation, l'on obtient:

$$\frac{m_s(x)}{m_0} = 1 - \frac{m_f(x) - m_f(0)}{m_0}$$

Le rapport $m_s(x)/m_0$, que l'on désignera par $\gamma(x)$, représente l'évolution de la proportion de soluté non extrait de la phase solide en fonction de la longueur. Par ailleurs, si le solvant introduit en tête de l'extracteur est pur, $m_f(0) = 0$ et $\gamma(x)$ s'écrit alors:

$$\gamma(x) = 1 - \frac{m_f(x)}{m_0}$$

ou encore en utilisant les concentrations:

$$\gamma(x) = 1 - \frac{h_m C_f(x)}{C_0} \quad [96]$$

Les conditions aux limites sont les suivantes:

$$\text{pour } x = 0, \quad C_f(x) = 0 \quad \text{et} \quad \gamma(0) = 1$$

$$\text{pour } x > 0, \quad C_f(x) > 0 \quad \text{et} \quad \gamma(x) < 1$$

En posant la condition qu'à la sortie de l'extracteur, $x = L$, la concentration du soluté $C_f(L)$ dans la miscella est égale à la concentration du soluté C_e à l'équilibre, on pourra écrire:

$$\gamma(L) = 1 - \frac{h_m C_e}{C_0} = \gamma_e \quad [97]$$

* Fonctionnement à contre-courant

Le bilan matière s'écrit:

$$m_0 - m_s(x) = m_e - m_f(x)$$

soit

$$\frac{m_s(x)}{m_0} = 1 - \frac{m_e - m_f(x)}{m_0}$$

La proportion $\gamma(x)$ de soluté non extrait de la phase solide s'écrira donc:

$$\gamma(x) = 1 - \frac{h_m [C_e - C_f(x)]}{C_0} \quad [98]$$

Les conditions aux limites dans ce cas sont les suivantes:

pour $x = 0$, $C_f(x) = C_e$ et $\gamma(0) = 1$

pour $x > 0$, $C_f(x) < C_e$ et $\gamma(x) < 1$

pour $x = L$, $C_f(L) = 0$ et $\gamma(L) = \gamma_e$

Les équations [96] et [98] permettent ainsi de déterminer le profil de concentration en concrète $C_f(x)$ dans l'extracteur pour les deux modes de fonctionnement. Ce profil s'écrit:

- pour un fonctionnement à co-courant:

$$C_f(x) = \frac{C_0}{h_m} [1 - \gamma(x)] \quad [99]$$

- pour un fonctionnement à contre-courant:

$$C_f(x) = C_e - \frac{C_0}{h_m} [1 - \gamma(x)] \quad [100]$$

Exprimons à présent les différents débits massique et volumique.

- Débit massique D_M de matière végétale par unité de surface d'extracteur

$$D_M = \frac{M}{t.S^o} \quad [101]$$

où M désigne la masse de matière végétale en kg, t le temps en minutes et S^o la section de l'extracteur, en m^2 . Dans notre cas, ce débit D_M vaut:

$$D_M = \frac{1}{60.\pi.(0,06)^2} = 1,47 \text{ kg/m}^2\text{mn}$$

- Débit volumique D_L de la phase liquide

Ce débit D_L s'écrit pour un hydromodule h_m donné

$$D_L = D_M.h_m \quad [102]$$

et dans notre cas, $D_L = 1,47.0,007 = 0,01 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{mn}$

- Débit volumique D_V de matière végétale par unité de surface d'extracteur

En considérant la matière végétale comme un solide compact, le débit volumique D_V de cette dernière s'exprimera par le rapport de son débit massique D_M à sa masse volumique ρ , soit:

$$D_V = \frac{D_M}{\rho} \quad [103]$$

et dans notre cas, $D_V = \frac{1,47}{984} = 1,49.10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2\text{mn}$

Or les mesures effectuées au laboratoire ont montré que le volume occupé par la matière végétale compactée ne représente que 8,75% de celui qu'elle occupe à l'état naturel. L'on désignera donc par V_1 le débit volumique de matière végétale par unité de surface d'extracteur corrigé, compte tenu de ce rapport, soit:

$$V_1 = \frac{1,49 \cdot 10^{-3}}{0,0875} = 0,017 \text{ m/mn}$$

Cette valeur V_1 n'est autre en réalité que la vitesse linéaire de déplacement de la matière végétale dans l'extracteur. Aussi, à l'aide de cette vitesse V_1 , pouvons-nous estimer la longueur L de l'extracteur pour un temps de séjour t_s de la matière végétale.

V.6.3. Estimation de la longueur L de l'extracteur et du temps de séjour t_s de la matière végétale

La longueur de l'extracteur L et le temps de séjour t_s sont tous deux liés à la vitesse linéaire V_1 de déplacement de la matière végétale par la relation:

$$L = V_1 \cdot t_s \quad [104]$$

et dans notre cas $L = 0,017 \cdot t_s$

L'estimation du temps de séjour t_s de la matière végétale dans l'extracteur résulte généralement d'un compromis entre le rendement et la qualité de la concrète d'une part, et le coût de fonctionnement de l'installation d'autre part. Dans notre cas, nous pouvons estimer le temps de séjour en déterminant le profil de concentration $C_l(x)$ de la concrète dans la phase liquide, lorsque l'extracteur fonctionne à co- et à contre-courant. Pour ce faire, l'évolution de la concentration $C_l(x)$ du soluté dans la phase liquide en fonction du temps a été établie en ayant recours à l'équation de la fonction cinétique γ et aux valeurs de t_e et C_0 correspondant au taux d'humidité H de la plante traitée. Par ailleurs, à l'aide des expressions [99] et [100] nous avons calculé les concentrations $C_l(x)$ de la concrète correspondant à différents temps compris entre 0 et t_e que nous avons portés sur un graphe à double échelle en x et t .

La figure 56 réunit les profils de concentration $C_l(x)$ et de fonction cinétique γ , correspondant aux deux modes de fonctionnement de l'extracteur.

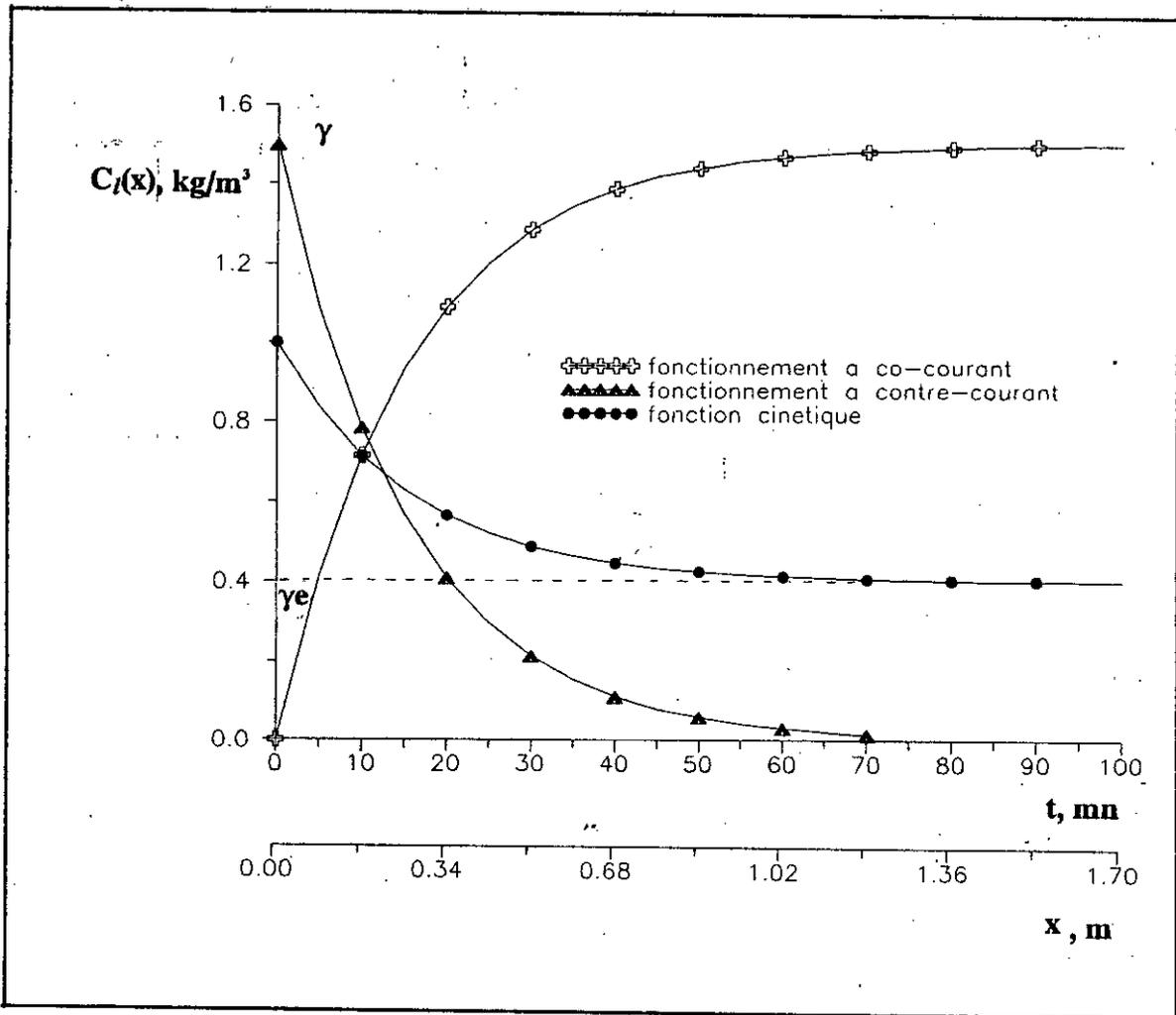


Figure 56: Extraction de la concrète d'Artemisia herba-alba Asso. à l'éther de pétrole, dans un extracteur à vis convoyeuse. Profils de la concentration $C_I(x)$ en concrète et de la fonction cinétique γ déterminés pour les deux modes de fonctionnement de l'extracteur (à co- et contre-courant)

Le temps de séjour t_s a été assimilé au temps pour lequel les courbes $C_f(x)$ atteignent asymptotiquement:

- pour le fonctionnement à co-courant, la concentration à l'équilibre C_e soit un temps de séjour t_s de **90 mn**

- pour le fonctionnement à contre-courant, l'axe des abscisses soit un temps de séjour t_s de **70 mn**.

Notons que pour les temps de séjour ainsi déterminés la valeur de la fonction cinétique γ tend vers sa valeur d'équilibre γ_e .

Enfin, à l'aide de la relation [104] la longueur L de l'extracteur est estimé

- pour un fonctionnement à co-courant à **1,53 m** soit environ **1,60 m**,

- pour un fonctionnement à contre-courant à **1,19 m** soit environ **1,20 m**

De chacune de ces valeurs de L , nous pouvons déduire le nombre de pas de vis Z et la vitesse de rotation N de cette vis convoyeuse. En effet, Z et N s'écrivent respectivement:

$$Z = \frac{L}{l} \quad [105]$$

$$N = \frac{L}{l \cdot t_s} \quad [106]$$

Ainsi,

- pour un fonctionnement à co-courant, $Z=27$ et $N=0,296$ tr/mn soit environ **0,3 tr/mn**

- pour un fonctionnement à contre-courant, $Z=20$ et $N=0,285$ tr/mn soit environ **0,3 tr/mn**

Pour plus de clarté les valeurs ainsi déterminées du temps de séjour t_s et des caractéristiques de cet extracteur à vis convoyeuse sont réunies dans le tableau V. 21 ci-dessous .

Tableau V. 21: Temps de séjour et caractéristiques de l'extracteur à vis convoyeuse

| Paramètres | Fonctionnement | |
|---------------------------------|----------------|----------------|
| | co-courant | contre-courant |
| Temps de séjour t_s , mn | 90 | 70 |
| Longueur de la vis L , m | 1,60 | 1,20 |
| Nombre de pas de vis Z | 27 | 20 |
| Vitesse de rotation N , tr/mn | 0,3 | 0,3 |

L'on constate que le mode de fonctionnement à contre-courant est le plus avantageux. Cependant, il est important de rappeler que les calculs effectués sont tous basés sur des concepts idéaux. En pratique, il est certain que l'extracteur réel n'aura pas les caractéristiques du modèle idéal. A titre d'exemple, le temps de séjour de la matière végétale estimé dans notre extracteur n'est qu'une valeur moyenne de la distribution des temps de séjour de chacune des particules du solide. Ceci présente donc l'une des raisons pour laquelle le comportement de l'extracteur réel s'écartera du modèle idéal. Parmi les écarts que l'on pourrait observer, la formation de "bouchons" de matière végétale, est la plus fréquente. Toutefois, dans la mesure où le fonctionnement de l'extracteur réel s'approche suffisamment du modèle idéal, l'écart par rapport à l'idéalité pourrait être réduit par addition de termes correctifs, déterminés expérimentalement (142).

Conclusion

Notre travail, axé sur la récupération de l'huile essentielle et de la concrète de deux espèces végétales endémiques, en l'occurrence, *Artemisia herba-alba* Asso. et *Artemisia judaïca* L., a mis en relief les problèmes auxquels est confrontée la mise en oeuvre de l'entraînement à la vapeur d'eau et de l'extraction par solvants volatils de solides d'origine végétale. L'essentiel de ces problèmes est lié au caractère évolutif de la matière végétale. Aussi, l'évolution du rendement et de la composition de l'huile essentielle, au cours du cycle végétatif et pendant le stockage, met en évidence la nécessité d'une approche expérimentale dans chaque cas concret et du choix à faire quant à la valorisation d'un tel peuplement plutôt qu'un autre. Ce choix est d'autant plus difficile, qu'il doit tenir compte des possibilités d'approvisionnement en matière végétale, de son conditionnement, des moyens à mettre en oeuvre pour son traitement et des exigences du marché.

Loin d'avoir apporté les réponses à toutes ces questions, cette étude a levé néanmoins le voile sur certaines d'entre elles. Aussi, l'étude de la composition chimique de l'huile essentielle des neuf peuplements d'*Artemisia herba-alba* Asso. et des deux peuplements d'*Artemisia judaïca* L., auxquels nous avons eu accès, a permis de les situer par rapport aux types déjà définis et de mettre en évidence leurs particularités. Nous sommes parvenus, en outre, à localiser les entités productrices d'huile essentielle des deux espèces. Les observations microscopiques de l'épiderme et du parenchyme des deux *Artemisia* ont révélé le caractère exclusivement exogène de la structure sécrétrice d'*Artemisia herba-alba* Asso. et l'existence de sites extra- et intracellulaires d'huile dans *Artemisia judaïca* L.

En outre, nous avons évalué l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle et de la concrète des deux *Artemisia*. Bien que partiels, les résultats obtenus sont encourageants et peuvent ouvrir la voie à l'utilisation de nos produits en pharmacie.

A travers des essais effectués à l'échelle semi-pilote, nous avons abordé certains aspects technologiques du procédé d'entraînement à la vapeur d'eau appliqué à la récupération de l'huile essentielle des deux *Artemisia*. L'optimisation classique et par planification des expériences des paramètres du procédé accessibles expérimentalement, nous a permis d'une part, d'étudier l'incidence de leurs variations sur le rendement et la composition de l'huile essentielle et d'autre part, d'atteindre les conditions optimales de fonctionnement de l'installation utilisée lors de nos expériences.

L'extraction de la concrète des deux plantes, un domaine inexploré jusqu'à présent, a nécessité l'expérimentation de différentes techniques et la mise au point d'une méthode originale de dosage des principaux constituants de l'huile essentielle de la concrète.

Les informations recueillies lors des essais d'extraction en statique et en lit fixe avec circulation continue du solvant en boucle fermée, nous ont renseignés sur le mécanisme du processus, dans ce cas précis où le solide est d'origine végétale. Par ailleurs, les essais d'extraction à charge dispersée nous ont permis d'accéder à la cinétique du processus et d'établir les équations mathématiques des fonctions cinétique et standard pour chacun des systèmes solide-liquide étudiés. A travers des exemples concrets, nous avons montré l'intérêt d'utiliser de telles fonctions pour la

maîtrise des paramètres intervenant dans le procédé d'extraction.

Les résultats des essais au laboratoire ont servi de données de base pour le dimensionnement d'un extracteur à vis convoyeuse, fonctionnant à co- et contre-courant, à l'échelle semi-pilote.

Ce travail ouvre de larges perspectives d'une recherche plus étendue aussi bien dans le domaine des connaissances fondamentales, que dans celui des sciences appliquées, avec pour objectif, la valorisation économique des deux *Artemisia*, ou *Chih*, représentatives de la flore spontanée de notre pays.

Bibliographie

1. **E. Perrot**
Matières premières usuelles du règne végétal, Thérapeutique, hygiène, industrie, tome II, Masson & Cie, 1944
2. **A. A. El-Gadi**
Usages of some plants in Libyan folk-medicine, tome II, National Book House Benghazi, Tripoli, 1989
3. **M. Paris, M. Hurabielle**
Abrégé de matière médicale, Pharmacognosie, tome I, Masson & Cie, 1981
4. **Y. Delanges**
Les végétaux des milieux arides, Science et découvertes, Ed. Le Rocher, Monaco, 1988
5. **R. Paris, H. Moyse**
Matière médicale, tome III, Masson & Cie, 1971
6. **L. Bielle**
Précis de botanique pharmaceutique, 2^{ème} édition, Editions médicales Norbert Maloine, Paris, 1935
7. **H. Harant**
Guide du naturaliste dans le Midi de la France, tome I, Ed. Delachaux et Niestlé, Neuchâtel, 1983
8. **P. Dorvault**
La nouvelle officine, Répertoire général de pharmacie pratique, tome III, Paris, 1955
9. **A. Engler, K. Prantl**
Die Natürlichen Pflanzenfamilien, 4(5), 281-282, 1894
10. **P. Quezel, S. Santa**
Nouvelle flore de l'Algérie et des régions méridionales, tome II, Ed. CNRS, 1963
11. **P. Ozenda**
Flore du Sahara, 2^{ème} édition, CNRS, Paris, 1977
12. **Ibn El Bitar**
Mophradat Ibn El Bitar, 3, 4, 75
13. **Dawood El Antaki**
Tazkaret Oli-El-Albar, 3^{ème} édition, 1, 202, 1925
14. **A. Kaiser**
The Horticular Rewiew of the Egyptian Horticular Society, 11, 1939
15. **D. Hutz**
Flore of West tropical Africa, 152, 1931
16. **A. Pampan**
Atti. R. Ist. Veneto. Sclett., 92, 23, 1932

17. **S. M. Khafagy, A. A. Seif El Din, J. Jakupovic, C. Zdero, F. Bohlman**
Phytochemistry, vol. 27, N° 4, 1125-1228, 1988
18. **E. Gueorguiev**
Produits aromatiques naturels et synthétiques, Ed. de l'Institut de technologie alimentaire, Plovdiv, Bulgarie, 1980
19. **A. Balinova- Zvetkova, G. Diakov**
Plant Science, N°2, 79-85, Sofia, Bulgarie, 1974
20. **M. I. Goryaev, V. S. Baslitzkaya, P. P. Polyakov**
Composition chimique des Armoises, Alma Ata, 1962
21. **L. Trabut**
Précis de botanique médicale, 2^{ème} édition, Masson & Cie, Paris, 1988
22. **R. Fourment, M. Roques**
Plantes médicinales et aromatiques d'Algérie, Documents et renseignements Agricoles, Bulletin N°1, Direction Générale de l'Agriculture, Alger, 1964
23. **J. C. Celles**
Biologie et écologie végétale des régions arides, Cycle de conférences, Université de Nice, 1990
24. **R. Maire**
Etude sur la flore et la végétation du Sahara central: mission du Hoggar, Mémoires de la Société d'histoire naturelle de l'Afrique du Nord, tome 3, Alger, 1933
25. **Anonyme** Sci. Nat. Algérie, 1972
Bulletin de la Société d'histoire naturelle de l'Afrique du Nord, tome 25, Alger, 1934
26. **P. Fournier**
Le livre des plantes médicinales et vénéimieuses de France, tome 1, 1977
27. **F. Baba Aïssa**
Les plantes médicinales d'Algérie, Ed. Bouchène et Ad Diwan, Alger, 1991
28. **M. S. Karawya, M.S. Hifnawy, S.S.Hawary**
Proceedings of the VIIth International Congress of Essential Oils, Oct. 7-11, 359-361, 1977
29. **E. Gildmeister, F. Hoffmann**
Die Ätherischen Öle, tome III, 2^{ème} édition, Akademie Verlag, Berlin, 1919
30. **M. P. Otto**
L'industrie des parfums d'après les théories de la chimie moderne, 2^{ème} édition, Dunod, Paris, 1924
31. **J. P. Durevelle**
Fabrication des essences et des parfums, 3^{ème} édition, 1929
32. **A. Cohen, J. P. Lavergne, A. Leblanc, P. Viallefont**
Bull. Soc. Sci. Nat. Phys. du Maroc, 52(1-2), 1-9, 1972

33. **B. Benjilali, H. Richard**
Rivista Italiana EPPOS, 2, 69-74, 1980
34. **B. Benjilali, J. Saris, H. Richard**
Sciences des aliments, 2, 515-527, 1982
35. **L. Seymour**
Perfumer and flavorist, vol. 7, 58-63, 1982
36. **Anonyme**
Parfums, cosmétiques, arômes, N°35, 55, 1984
37. **M. Santorini**
Parfums, cosmétiques, arômes, N°51, 77-79, 1983
38. **M. Hurabielle, M. Malsot, M. Paris**
Rivista Italiana EPPOS, 6, 296-299, 1981
39. **R. Segal, A. Breuer, I. Feuerstein**
Phytochemistry, vol. 19, 2761-2762, 1980
40. **I. Feuerstein, D. Müller, K. Hobert, A. Danin, R. Segal**
Phytochemistry, vol. 25, N°10, 2343-2347, 1986
41. **R. Segal, I. Feuerstein, A. Danin**
Biochemical Systematics and Ecology, vol. 15, N°4, 411-416, 1987
42. **I. Feuerstein, A. Danin, R. Segal**
Phytochemistry, vol. 27, N°2, 433-434, 1988
43. **S. M. Khafagy, S. A. Gharbo, M. Sargt**
Planta Medica, 20, 90-96, 1971
44. **J. D. Gomis, J. A. Marko, J. R. U. Leinares, J. S. Parareda, J. M. Sendra, F. Seoan**
Phytochemistry, 18, 1523-1525, 1979
45. **M. M. Gordon, L. H. Zalkow**
J. Nat. Prod., 42, 681, 1979
46. **L. H. Zalkow, M. M. Gordon, C. Dickinson, J.T. Gelbaum**
Planta medica, 39, 265, 1980
47. **M. M. Gordon, D. Van Derveer, L. H. Zalkow**
J. Nat. Prod., 44, N°4, 432-440, 1981
48. **R. Segal, S. Sokoloff, B. Haran, D.V. Zaitschek, D. Lichtenberg**
Phytochemistry, 16, 1237-1240, 1977
49. **R. Segal, I. Feuerstein, H. Duddek, M. Kaiser, A. Danin**
Phytochemistry, 22, N°1, 129-131, 1983
50. **R. Segal, D. Cohen, S. Sokoloff, D. V. Zaitchek**
Lloydia, 36(1), 103-105, 1973
51. **J. A. Marko, J. F. Sanz, M. Carda**
Phytochemistry, 28, N°9, 2505-2506, 1989

52. **J. A. Marko, J. F. Sanz, G. Castellano**
Phytochemistry, 29, N°2, 541-546, 1990
53. **J. A. Marko, J. F. Sanz, E. Falco, J. Jakupovic, J. Ley**
Tetrahedron Letters, 46, 23, 7941-7950, 1990
54. **J. A. Marko, J. F. Sanz**
Planta medica, 57, 1, 74-76, 1991
55. **J. A. Marko, J. F. Sanz, E. Falco**
Journal of Natural Products (Lloydia), 53(4), 940-945, 1990
56. **J. A. Marko**
Phytochemistry, 28, N°11, 3121-3126, 1989
57. **A. M. Saleh, S. I. Negoumy, M. F. Abdallah, M. M. Abou Zaïd, G. Dellamonica, J. Chopin**
Phytochemistry, 24(1), 201-203, 1985
58. **H. Syed Khaquam**
Nat. Prod. Chemistry, Proc. Int. Symp. Pack., U.S. Binatt. Work Shop. 1^a, 133-153, 1986
59. **M. A. Al Yahia**
Fitoterapia, 3, 179-182, 1986
60. **A. Sherif, R. G. Hall, M. El Amany**
Medical Hypothesis, 23, 187-193, 1987
61. **J. Yasphe, R. Segal, A. Breuer, G. Erdriech-Naftali**
Journal of Pharmaceutical Sciences, 68, N°7, 924-925, 1979
62. **J. Yashphe, I. Barel, R. Segal**
Int. J. Crude Drug Res., 25, N°2, 89-96, 1987
63. **S. A. Ross, N. E. El Keltani, S. E. Megalla**
Fitoterapia, 51, 201-205, 1980
64. **B. Benjilali, A. Tantaoui- Elaraki, A. Ayadi, M. Ihlal**
J. Food Prod, 47, 748-752, 1984
65. **B. Benjilali, A. Tantaoui- Elaraki, M. Ismaïli-Alaoui, A. Ayadi**
Plantes médicinales et phytothérapie, 20, N°2, 155-167, 1986
66. **H. A. A. Twaij, S. N; Mahmoud, R. M. Khalid**
Fitoterapia, 60(3), 267-268, 1989
67. **H. A. A. Twaij, E. E. Elisha, R. M. Khalid**
Int. J. Crude Drug Res., 27(2), 109-112, 1989
68. **H. A. A. Twaij, A. A. Al Badr**
Journal of ethnopharmacology, 24(2-3), 123-126, 1988
69. **I. R. Fahmi, Z. F. Ahmed, F. Abdel Moneim**
Egypt. J. Pharm. Sci., 1, 83, 1960
70. **M. S. Karawya, M. S. Hifnawy, S. S. El Hawary**
Egypt. J. Pharm. Sci., 20, N°1-4, 147-152, 1979

71. **M. A. Saleh**
Biochemical Systematics and ecology, 13, N°3, 265-269, 1985
72. **Z. Fleischer, A. Fleischer**
J. Ess. Oil Res., 2, 271-273, 1990
73. **U. Ravid, E. Putievsky, I. Katzir, D. Carmeli, A. Eshel, H. P. Schnek**
Flavor and Fragrance Journal, 7(2), 69-72, 1992
74. **S. M. Khafagy, S. Tosson**
Planta medica, 16, 446-449, 1968
75. **E. E. Galal, A. A. Kandil, M. Abdelatif, T. Kheder, S. M. Khafagy**
Planta medica, 25, 88-90, 1974
76. **M. A. Metwaly, J. Jacupovits, M. T. Youns, F. Bohlman**
Phytochemistry, 24, N°5, 1103-1104, 1985
77. **F. A. Eid**
Pharmazie, 41(9), 674-675, 1986
78. **S. M. Khafagy, E. D. Seif, J. Jacupovits, C. Zdero, F. Bohlman**
Phytochemistry, 27, N°4, 1125-1128, 1988
79. **N. A. M. Salah, S. I. El Negoumi, M. Abou Zaïd**
Phytochemistry, 26, N°11, 3059-3064, 1987
80. **S. S. Abdalla, M. H. Abou Zarga**
Planta medica, 3, 22, 1987
81. **Y. R. Naves**
Parfums, cosmétiques, savons, 9, 200-202, 1966
82. **N. Benisto**
Fleurs d'Algérie, Ed. ENAL, Alger, 1984
83. **C. R. Letor**
L'utilité des huiles essentielles pour les plantes désertiques, Ed. La parfumerie moderne, 1929
84. **A.F.N.O.R**
Les huiles essentielles, 2^{ème} édition, 1986
85. **P.-J. Teissière**
Chimie des substances odorantes, Ed. Techniques et documentataion, Lavoisier, 1991
86. **A. A. Swigar, R. Silverstein**
Monoterpènes, Aldrich Chem. Comp. Inc., Milwaukee, 1981
87. **S. W. Jennings, T. Shibamoto**
Qualitatives analysis of flavor and fragrance volatiles by gas chromatography, Academic Press, New York, 1974
88. **Mass Spectra Data NBS43K of HP 5971 A Mass Chemical Station**

89. **A. Cornu, R. Massot**
Copmilation of Mass Spectral Data, Heyden, London, 1978
90. **E. Stenhagen, S. Abrahamson, F. W. Mc Lafferty**
Atlas of Mass Spectral Data, Wiley Interscience, New York, 1974
91. **Y. Massada**
Analysis of essential oils by gas chromatography and mass spectrometry, Ed. John Wiley, New York, 1976
92. **P. Sandra, C. Bichi**
Capillary Gas Cromatography in essential oils analysis, Hüthig Verlag, Heidelberg, 1987
93. **R. Ryhage, E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 17,N°7, 2025-2035, 1963
94. **B. Willhalm, A. F. Thomas, M. Stoll**
Acta Chem. Scand., 18, N°6, 1573-1576, 1964
95. **E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 19, N°9, 2083-2088,1965
96. **E. Honkanen, T. Moisio, P. Karvonen**
Acta Chem. Scand., 19, N°2, 370-374, 1965
97. **J. Anderson, E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 18, N°5, 1105-1114, 1964
98. **E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 17, N°9, 2504-2512, 1963
99. **E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 18, N°5, 1099-1104, 1964
100. **E. Von Sydow**
Acta Chem. Scand., 18, N°7, 1791-1808, 1964
101. **M. G. Moshonas, E. D. Lund**
The Flavor Industry, 6, 375-378, 1970
102. **P. Weyerstahl, V.K. Kaul, M. Weirauh, H. Marchal-Weyerstahl**
Planta Medica,66, 72, 1987
103. **D. Lamparsky, I. Klimes**
Topics in Flavor Research, Eichhorn-Verlag, Germany, 1985
104. **I. Klimes, D. Lamparsky**
Progress in Essential Oils Research, Walter dez Gruyter & Co., Berlin-New York, 1986
105. **W. W. Epstein, L. A. Gaudioso**
Phytochemistry, vol. 23, N°10, 2257-2262, 1984
106. **A. J. Falk, L. Bauer, C. L. Bell**
Lloydia, vol. 37, N°4, 598-602, 1974

- 107. G. Vernin, J. Metzger**
Perfumer and Flavorist, vol. 11, Oct.-Nov., 1986
- 108. G. Vernin, J. Metzger, K. N. Suon, D. Fraisse, C. Ghiglione, A. Hamouda, C. Parkanyi**
Lebensm.-Wiss. U. Technol., 23, 25-33, 1990
- 109. M. Näf-Müller, W. Pickenhagen, B. Willhalm**
Helvetica Chimica Acta, 64(5), 1424-1430, 1981
- 110. H. Jork, M. Nachtrab**
Arch. Pharm. (Weinheim), 312, 435-445, 1979
- 111. Y. Chrétien-Bessière**
Bull. Soc. Chim. Fr., 2018, 1968
- 112. H. Greger**
Biology and Chemistry of the Compositae, Academic Press, Londres-New York-San Francisco, 1977
- 113. W. W. Epstein, C. D. Poulter**
Phytochemistry, 12, 737-747, 1973
- 114. A. A. Newman**
Chemistry of Terpenes and Terpenoids, Academic Press, New York, 1972
- 115. C. Lokar, V. Maurich, G. Mellerio, M. Moneghim, L. Voldini**
Biochemical Systematics and Ecology, vol. 15, N°3, 327-333, 1987
- 116. A. Codignola**
Allionia, 26, 89-95, 1984
- 117. E. Gueorguiev, N. Guenov, N. Christova**
Plant Science, 18, N°7, 95-102, Sofia, Bulgarie, 1989
- 118. E. Gueorguiev, S. Stilianov, N. Guenov**
IX International Congress of Essential Oils, Essential Oils Technical Paper, Book I, 80-83, Singapor, 1983
- 119. V. A. Shlyapnikov, A. P. Shlyapnikova**
Masleno-jyrovaya promishlenost, N°7, 1980
- 120. E. Gueorguiev**
Thèse de Doctorat d'Etat, Institut Supérieur de Technologie Alimentaire, Plovdiv, Bulgarie, 1988
- 121. A. Mahi**
Les vertus de la médecine verte, Soir d'Algérie, 22 Mars, 1993
- 122. J. Valnet**
Aromathérapie, traitement des maladies par les essences des plantes, Ed. Maloine, 1980
- 123. M. Bouix**
Techniques microbiologiques d'analyse chimique, vol. 2, Ed. Techniques et documentation, 1981

- 124. L. Mouillet, F. M. Luquet**
Antibiotiques, vol. 4, Ed. Technique et documentation, 1981
- 125. J. A. Washington**
Laboratory procedures in chemical microbiology, 2, 79, 1981
- 126. L. Liminor, M. Véron**
Bactériologie médicale, Flammarion Médecine-Sciences, 1982
- 127. M. Pelczar**
Eléments de microbiologie, HRWI-tee, 1982
- 128. M. Y. Boumghar**
Thèse de Magister, Département de Génie chimique, ENP, Alger, 1989
- 129. N. Elenkova**
Evaluation de résultats analytiques, Chimie analytique et méthodes physiques d'analyse, Ed. Technika, Sofia, Bulgarie, 1983
- 130. P. Morin, C. Gunter, L. Peyron, H. Richard**
Bull. Soc. Chim. de France, N°5, 921-930, 1985
- 131. N. Nenov, F. Portarska, A. Tzoutzoulova, B. Apostolova, P. Boyadjiev**
Travaux Scientifiques de l'Institut de l'industrie des huiles essentielles, parfums et cosmétiques, N°1, 51-57, Plovdiv, Bulgarie, 1985
- 132. E. Gueorguiev**
Technologie de l'industrie des huiles essentielles, Ed. de l'Institut Supérieur de Technologie Alimentaire, Plovdiv, Bulgarie, 1980
- 133. I. Voutchkov, H. Yontchev**
Planification et analyse des expériences, Ed. Technika, Sofia, Bulgarie, 1979
- 134. P. Chapouille**
Planification et analyse des expériences, Ed. Masson & Cie, 1979
- 135. R. François**
Chim. Ind. et Génie chimique, 96(6), 1685-1690, 1966
- 136. R. Silverstein, G. Bessler**
Identification spectrométrique des composés organiques, Ed. Masson et Cie, 1966
- 137. S. Bank, W. D. Closson, L.T. Hodsins**
Tetrahedron Letters, 24, 381-387, 1968
- 138. N. L. Alinger, M. P. Cava, D. C. De Jongh, C. R. Johnson, N. A. Le Bel, C. L. Stevens**
Chimie organique, vol. 1, Mc Graw Hill, 1983
- 139. S. Charchari, R. Bélabbès**
Rivista Italiana EPPOS, N°3, 13-16, 1991
- 140. N. Dimov**
Analyse organique, Ed. Technika, Sofia, Bulgarie, 1980

141. **C. Haunold**
Thèse de Doctorat d'Etat, INP, Toulouse, France, 1991
142. **P. Trambouse, J. P. Wauquier**
Développement des procédés de raffinage et pétrochimie, Ed. Technique, 1975
143. **O. M. Angelidis**
Revue des oléagineux, N°8(9), 1968
144. **E. H. Benyoussef**
Thèse de Magister, Département de Génie chimique, ENP, Alger, 1990
145. **J. Q. Cu**
Thèse de Doctorat d'Etat, Institut National Polytechnique, Toulouse, France, 1990
146. **A. Mintchev, S. Minkov**
Journées Scientifiques de VMEI, 7-9 Octobre, Sofia, Bulgarie, 1981
147. **J. Leybros, P. Fremeaux**
Extraction solide-liquide, Technique de l'ingénieur, J2780, Paris, 1990
148. **M. Garic**
Chimie minérale, Ed. Dunod, Paris, 1976
149. **J. J. Crank**
The mathematics of diffusion, 1^{ère} édition, Oxford, 1956
150. **G. A. Axelrooth**
Journal Physicheskoi khimii, 33, N°10, 1959
151. **G. A. Axelrooth, W. M. Lisianski**
Extraction des systèmes solide-liquide, Ed. Chimie, Leningrad, 1976
152. **E. M. Vigdortchik, A. B. Cheynine**
Modélisation mathématique du processus de solubilisation, Ed. Chimie, Leningrad, 1956
153. **G. A. Axelrooth**
Transfert de matière dans le système solide-liquide, Ed. de l'Université de Lvov, 1970
154. **A. Mintchev, S. Minkov**
Pharmazia, 32, N°4, Sofia, Bulgarie, 1982
155. **A. Mintchev, S. Minkov**
Bulletin de la Société chimique de Belgrade, 49(2), 25-29, 1984
156. **A. Mintchev, G. Boyadjiev, I. Totev, S. Minkov**
Pharmazie, 37, 803-804, 1982
157. **A. Mintchev**
Tendances actuelles de la production de produits aromatiques naturels, Ed. de l'Institut Supérieur de Technologie Alimentaire, Plovdiv, Bulgarie, 1983
158. **M. R. Spiegel**
Theory and problems of Laplace transforms, Schaum's outline series, Mc Graw Hill, 1965

Annexes

Annexe I

Liste des tableaux

| | |
|---|----|
| Tableau III.1: Rendement et propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L., provenant de différentes régions d'Algérie | 16 |
| Tableau III.2: Conditions opératoires générales d'analyse de l'huile essentielle par CPG et CG-SM | 18 |
| Tableau III.3: Composés identifiés dans l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. de différentes régions d'Algérie | 19 |
| Tableau III.4: Constituants majoritaires de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso., provenant de différentes régions d'Algérie | 23 |
| Tableau III.5: Composés identifiés dans l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. de la région de Tamanrasset | 29 |
| Tableau III.6: Teneurs relatives en % des constituants majoritaires de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. de deux régions d'Algérie | 32 |
| Tableau III.7: Variation du rendement et de la teneur relative, en %, des constituants majoritaires de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. en fonction de sa période de végétation | 36 |
| Tableau III.8: Variation du rendement et de la teneur relative, en %, des constituants majoritaires de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. en fonction de sa période de végétation | 37 |
| Tableau III.9: Variation de l'hydrosolubilité S des huiles essentielles d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. en fonction de la température T | 39 |
| Tableau III.10: Evaporation E des huiles essentielles d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. en fonction de la température T | 41 |
| Tableau III.11: Diamètres des zones d'inhibition, en mm, obtenus, lors de l'évaluation de l'activité antimicrobienne de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 45 |
| Tableau IV.1: Reproductibilité des résultats obtenus lors de l'extraction de l'huile essentielle d'un même lot d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | 53 |
| Tableau IV.2: Evolution du rendement R_{HE} en huile primaire en fonction de la température T du distillat, lors de l'entraînement à la vapeur d'eau | 63 |
| Tableau IV.3: Teneur relative T_r des constituants majeurs, en %, dans les huiles primaire et secondaire récupérées à différentes températures T du distillat | 64 |

| | |
|---|----|
| Tableau IV.4: Influence du mode et de la durée du stockage d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. sur le rendement R_{HE} en huile essentielle | 65 |
| Tableau IV.5: Teneur relative T_r , en %, de principaux constituants de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. fraîche et stockée dans différentes conditions | 66 |
| Tableau IV.6: Teneur relative T_r , en %, de principaux constituants de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. fraîche et stockée dans différentes conditions | 66 |
| Tableau IV.7: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. Optimisation de la masse M de matière végétale à traiter | 70 |
| Tableau IV.8: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. Optimisation de la vitesse v de distillation | 70 |
| Tableau IV.9: Entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. Optimisation du nombre P de plateaux | 71 |
| Tableau IV.10: Optimisation de l'entraînement à la vapeur d'eau par planification des expériences. Niveaux inférieurs et supérieurs choisis des paramètres étudiés | 72 |
| Tableau IV.11: Optimisation de l'entraînement à la vapeur d'eau par planification des expériences. Rendements R_{HE} en huile essentielle obtenus | 74 |
| Tableau IV.12: Incidence des conditions opératoires de l'entraînement à la vapeur d'eau sur la teneur relative des constituants majoritaires et les propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 76 |
| Tableau V.1: Résultats des dosages du camphre dans les solutions étalons de concentrations connues (solvant CCl_4) | 87 |
| Tableau V.2: Résultats de dosage de la pipéritone dans les solutions étalons de concentrations connues (solvant CCL_4) | 88 |
| Tableau V.3: Résultats des dosages du camphre et des thuyones dans les solutions de concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. (solvant CCl_4) | 89 |
| Tableau V.4: Résultats des dosages de la pipéritone dans les solutions de concrètes d' <i>Artemisia judaïca</i> L. (solvant CCl_4) | 89 |
| Tableau V.5: Diamètres des zones d'inhibition, en mm, observés lors de l'évaluation de l'activité antimicrobienne des concrètes d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 90 |

| | |
|---|-----|
| Tableau V.6: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L. à l'éther de pétrole. Rendement R_c , teneur relative et masse de pipéritone, obtenus à différentes durées d'extraction en batch | 93 |
| Tableau V.7: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole. Rendement R_c , teneur relative et masse de camphre et thuyones, obtenus à différentes durées d'extraction en batch | 94 |
| Tableau V.8: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole. Rendement en concrète R_c , teneur relative et masse en camphre et thuyones obtenues lors d'extractions successives d'une heure chacune, en batch | 96 |
| Tableau V.9: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole. Rendements en concrète R_c obtenus par extraction à 20°C en lit fixe avec circulation de solvant en boucle fermée | 99 |
| Tableau V.10: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L. à l'éther de pétrole. Rendements en concrète R_c et en pipéritone R_p obtenus par extraction en lit fixe avec circulation de solvant en boucle fermée | 100 |
| Tableau V.11: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Influence de la vitesse d'agitation sur le rendement en concrète R_c | 102 |
| Tableau V.12: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution en fonction du temps du rendement en concrète R_c , en g/kg, à différents taux d'humidité H , températures d'extraction et pour un hydromodule h_m de 0,007 m ³ /kg | 105 |
| Tableau V.13: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution en fonction du temps du rendement en pipéritone R_p , en g/kg, à différents taux d'humidité H , températures d'extraction et pour un hydromodule h_m de 0,007 m ³ /kg | 105 |
| Tableau V.14: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Valeurs des temps d'équilibre t_e calculées pour différents taux d'humidité H et températures d'extraction T | 115 |
| Tableau V.15: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Valeurs des temps d'équilibre t_e calculées pour différents taux d'humidité H et températures d'extraction T | 115 |
| Tableau V.16: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evaluation de la fonction standard ϕ^* du système <i>Artemisia herba-alba</i> Asso.-éther de pétrole [65-95°C] (taux d'humidité de la plante $H=11,48$ % et $T=20^\circ\text{C}$) | 129 |

Tableau V.17: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evaluation de la fonction standard ϕ^* du système *Artemisia judaïca* L.-éther de pétrole [65-95°C] (taux d'humidité de la plante $H=10,00\%$ et $T=20^\circ\text{C}$) 130

Tableau V.18: Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des équations expérimentales et calculées à partir de la fonction standard ϕ^* 136

Tableau V.19: Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des équations expérimentales et calculées à partir de la fonction cinétique γ 137

Tableau V.20: Paramètres $R_c=f(t)$, C_{c0} , t_e et ϵ , déterminés lors des essais d'extraction de différents lots d'*Artemisia herba-alba* Asso. par différentes fractions d'éther de pétrole Merck 139

Tableau V. 21: Temps de séjour et caractéristiques de l'extracteur à vis convoyeuse 149

Annexe II

Liste des figures

| | |
|---|----|
| Figure 1: Localisation des sites producteurs d'huile essentielle dans les végétaux | 9 |
| Figure 2: Feuille et tige d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. (Gr: 50 X) | 11 |
| Figure 3: Feuille et tige d' <i>Artemisia judaïca</i> L. (Gr: 10 X) | 11 |
| Figure 4: Surface de la feuille d' <i>Artemisia judaïca</i> L. (Gr: 200X) | 12 |
| Figure 5: Fleur d' <i>Artemisia judaïca</i> L. (Gr: 35X) | 12 |
| Figure 6: Vue de l'épiderme de la feuille d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. (Gr: 80 X) | 13 |
| Figure 7: Glande sécrétrice d'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso.(Gr: 160X) | 13 |
| Figure 8: Coupe transversale de la feuille d' <i>Artemisia judaïca</i> L. (Gr: 80 X) | 14 |
| Figure 9: Coupe transversale de la feuille d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso.(Gr: 25 X) | 14 |
| Figure 10: Schéma du dispositif expérimental de l'entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle laboratoire | 15 |
| Figure 11: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. de la région de Ghardaïa. Type à α -thuyone | 25 |
| Figure 12: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. de la région de Biskra. Type à α -thuyone-camphre-chrysanthénone | 26 |
| Figure 13: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. de la région de Djelfa. Type à chrysanthénone-camphre | 27 |
| Figure 14: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. de la région d'Ain Oussera. Type à tiglate de chrysanthényle-spathuléol | 28 |
| Figure 15: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. de la région de Tamanrasset. Type à pipéritone-chrysanthénone-acétate de chrysanthényle | 33 |
| Figure 16: Chromatogramme de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. de la région d'In Aménas. Type à pipéritone-cinnamate d'éthyle-acétate de chrysanthényle | 34 |
| Figure 17: Variation de l'hydrosolubilité S des huiles essentielles d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. en fonction de la température T | 40 |
| Figure 18: Variation de l'évaporation E des huiles essentielles d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d' <i>Artemisia judaïca</i> L. en fonction de la température T | 42 |
| Figure 19: Schéma de l'installation semi-pilote d'extraction | 49 |

| | |
|---|-----|
| Figure 20: Evolution du rendement R_{HE} en huile des deux <i>Artemisia</i> : <i>A. herba-alba</i> Asso. et <i>A. judaïca</i> L. en fonction du temps t , au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau | 55 |
| Figure 21: Evolution du taux d'extraction τ et de la quantité de vapeur utile Q_{HE} au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau de l' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. | 56 |
| Figure 22: Evolution du taux d'extraction τ et de la quantité de vapeur utile Q_{HE} au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau de l' <i>Artemisia judaïca</i> L. | 57 |
| Figure 23: Courbes de distillation de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. et d'un mélange de terpènes (camphène, cinéol-1,8, camphre et bornéol) | 59 |
| Figure 24: Evolution de la teneur relative T_r en %, des constituants de l'huile essentielle d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau | 60 |
| Figure 25: Evolution de la teneur relative T_r en %, des constituants du mélange de terpènes au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau | 61 |
| Figure 26: Courbes de distillation d' <i>Artemisia judaïca</i> L. fraîche et séchée pendant 20 jours au soleil | 67 |
| Figure 27: Evolution, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau, de la composition de l'huile essentielle d' <i>Artemisia judaïca</i> L. séchée au soleil pendant 20 jours | 68 |
| Figure 28: Extraction par solvants: produits d'extraction des plantes aromatiques selon la nature du solvant et la technique utilisée | 79 |
| Figure 29: Chromatogramme de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso., éluee sur colonne capillaire PEG 20M | 81 |
| Figure 30: Chromatogramme de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L., éluee sur colonne capillaire PEG 20M | 82 |
| Figure 31: Spectre infra-rouge de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. enregistré sous forme de film déposé sur pastille de KBr | 84 |
| Figure 32: Spectre infra-rouge de la concrète d' <i>Artemisia judaïca</i> L. enregistré sous forme de film déposé sur pastille de KBr | 85 |
| Figure 33: Schéma de l'installation semi-pilote d'extraction statique en discontinu | 92 |
| Figure 34: Schéma du dispositif expérimental d'extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée | 97 |
| Figure 35: Spectre infra-rouge de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. obtenue par extraction en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée | 98 |
| Figure 36: Schéma du dispositif expérimental d'extraction à charge dispersée | 101 |
| Figure 37: Extraction de la concrète d' <i>Artemisia herba-alba</i> Asso. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_c en concrète, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007 \text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale | 107 |

- Figure 38:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007\text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale 108
- Figure 39:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=40^\circ\text{C}$, avec un hydromodule $h_m=0,007\text{ m}^3/\text{kg}$ et à différents taux d'humidité H de matière végétale 109
- Figure 40:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_c en concrète, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un taux d'humidité H de matière végétale de 11,48% et différents hydromodules h_m 111
- Figure 41:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole. Evolution en fonction du temps t du rendement R_p en pipéritone, dans un réacteur agité travaillant à $T=20^\circ\text{C}$, avec un taux d'humidité H de matière végétale de 10,00% et différents hydromodules h_m 112
- Figure 42:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Variation du temps d'équilibre t_e , en fonction du taux d'humidité H de la matière végétale ($h_m=0,007\text{ m}^3/\text{kg}$) 116
- Figure 43:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Variation du temps d'équilibre t_e , en fonction du taux d'humidité H de la matière végétale ($h_m=0,007\text{ m}^3/\text{kg}$) 116
- Figure 44:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Variation de la teneur initiale en concrète C_{c0} dans la plante en fonction du taux d'humidité H à $T=20^\circ\text{C}$ 117
- Figure 45:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole, dans un réacteur en lit fixe avec circulation continue de solvant en boucle fermée. Variation de la teneur initiale en pipéritone C_{p0} dans la plante en fonction du taux d'humidité H à $T=20^\circ\text{C}$ 118
- Figure 46:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution de la fonction cinétique γ en fonction du temps relatif t , pour divers taux d'humidité H et températures d'extraction et un hydromodule h_m de $0,007\text{ m}^3/\text{kg}$ 119
- Figure 47:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole dans un réacteur agité. Evolution de la fonction cinétique γ en fonction du temps relatif t , pour divers taux d'humidité H et températures d'extraction et un hydromodule h_m de $0,007\text{ m}^3/\text{kg}$ 119
- Figure 48:** Schéma général présentant les différentes étapes de calcul de la fonction standard ϕ^* 128

- Figure 49:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole [65-95°C] à $T=20^{\circ}\text{C}$ dans un réacteur agité. Représentation graphique de la fonction standard ϕ^* en fonction du temps t , pour deux valeurs d'hydromodule h_m , un même taux d'humidité $H=11,48\%$ correspondant à une fraction ϵ de 0,01 131
- Figure 50:** Extraction de la concrète d'*Artemisia judaïca* L. à l'éther de pétrole [65-95°C] à $T=20^{\circ}\text{C}$ dans un réacteur agité. Représentation graphique de la fonction standard ϕ^* en fonction du temps t , pour deux valeurs d'hydromodule h_m , un même taux d'humidité $H=10,00\%$ correspondant à une fraction ϵ de 0,02 132
- Figure 51:** Schéma général présentant les différentes étapes de calcul du rendement en soluté $R=f(t)$ à partir de ϵ et ϕ^* 133
- Figure 52:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un réacteur agité. Comparaison des courbes $R_c=f(t)$ 140
- Figure 53:** Schéma de l'extracteur à vis convoyeuse fonctionnant à contre-courant 142
- Figure 54:** Schéma de fonctionnement à co-courant de l'extracteur à vis convoyeuse 143
- Figure 55:** Schéma de fonctionnement à contre-courant de l'extracteur à vis convoyeuse 143
- Figure 56:** Extraction de la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'éther de pétrole, dans un extracteur à vis convoyeuse. Profils de la concentration $C_l(x)$ en concrète et de la fonction cinétique γ déterminés pour les deux modes de fonctionnement de l'extracteur (à co- et contre-courant) 148

Annexe III

Publications

1. S. Charchari, R. Bélabbès

Dosage par spectroscopie infra-rouge du camphre et de la thuyone dans l'huile essentielle et la concrète d'*Artemisia herba-alba* Asso.
Rivista Italiana EPPOS, N°3, 13-16, Avril 1991

2. S. Charchari, M. Bichari, S. Hamadi

Contribution à l'étude de la composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L.
Rivista Italiana EPPOS, N°6, 25-27, Avril 1992

3. C. Boutekedjiret, S. Charchari, R. Bélabbès, J.-M. Bessière

Contribution à l'étude de la composition chimique de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso.
Rivista Italiana EPPOS, N°8, 39-42, Novembre 1992

4. S. Charchari

Water solubility and evaporativity of *Artemisia judaïca* L. essential oil and their influence on the oil yield and composition
Journal of Essential Oil Research, soumise pour publication

Communications

1. S. Charchari, M. Bichari

Huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L.: optimisation par planification des expériences de son extraction par entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle semi-pilote
Premier Séminaire Maghrébin sur les plantes aromatiques, Tlemcen, Algérie, 29-31 Mai, 1990

2. S. Charchari, C. Boutekedjiret

Approche des conditions optimales de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso. à l'échelle semi-pilote
Premier Séminaire Maghrébin sur les plantes aromatiques, Tlemcen, Algérie, 29-31 Mai, 1990

3. S. Charchari, C. Boutekedjiret

Approche cinétique de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle d'*Artemisia herba-alba* Asso.
Deuxième Congrès de la Société Algérienne de Chimie, Zéralda, Algérie, 26-28 Avtil 1993

4. S. Charchari

Hydrosolubilité et évaporation de l'huile essentielle d'*Artemisia judaïca* L.
XII^{ème} Journées Internationales "Huiles essentielles" Digne-les-Bains, France
1-3 Septembre 1993