

République Algérienne Démocratique et Populaire  
Ministère de l'Enseignement Supérieur  
et de la Recherche Scientifique

## THESE

présentée à

**l'Ecole Nationale Polytechnique**  
**Département de Génie Chimique**

pour l'obtention du Diplôme de Magister en Génie chimique  
المدرسة الوطنية للتكنولوجيا

**BIBLIOTHEQUE — المكتبة**  
**Ecole Nationale Polytechnique**

Nadia BEDDEK  
Ingénieur d'Etat à l'ENP

*Extraction de l'essence des  
graines de Coriandrum sativum L. par  
différents procédés.*

Soutenue le 30 Janvier 1995 devant la commission d'examen

C.E. CHITOUR	Professeur à l'ENP-Alger	Président
S. CHARCHARI	Docteur d'Etat à l'ENP-Alger	Examineur
R. DERRICHE	Chargée de cours à l'ENP-Alger	Examineur
M.H. GUERMOUCHE	Professeur à l'USTHB-Alger	Examineur
R. BELABBES	Professeur à l'ENP-Alger	Rapporteur
E.H. BENYOUSSEF	Maître assistant à l'ENP-Alger	Rapporteur
J.M. BESSIERE	Professeur à l'ENSCM-France	Invité

## **DEDICACES**

*A la mémoire de mon beau-père,  
A mes très chers parents qui m'ont permis de mener à bien mes études,  
A mon frère Karim pour son soutien moral malgré son éloignement,  
A mes chères soeurs Sabiha, Linda et l'adorable Samou,  
A mon grand-père, mes oncles et tantes,  
A mon mari,  
A toute ma belle famille, en particulier ma belle-mère et Mounia,  
A tous ceux qui me sont chers.*

*En signe de reconnaissance et de profonde affection.*

*Nadia*

## REMERCIEMENTS



*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. Belabbes et de Monsieur E.H. Benyoussef. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude et de mes vifs remerciements pour m'avoir confié ce sujet, de m'avoir aidé et encouragé.*

*J'exprime mes respectueux remerciements à Monsieur le Professeur C.E. Chitour, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique-Alger, pour l'honneur qu'il me fait de présider le jury.*

*Que Madame S. Charchari, docteur d'état à l'Ecole Nationale Polytechnique-Alger, Madame R. Derriche, chargée de cours à L'école Nationale Polytechnique, Monsieur M.H. Guermouche, professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediène d'Alger, trouvent ici l'expression de mes vifs remerciements d'avoir accepté de juger ce travail.*

*Je remercie vivement Monsieur le Professeur J.M. Bessière, Professeur à l'Institut National Supérieur de Chimie de Montpellier, pour m'avoir accueillie dans son laboratoire et pour son aide, ses précieux conseils et les marques d'intérêt et de bienveillance qu'il n'a cessé de me prodiguer.*

*Que les membres de l'équipe de recherche du laboratoire de valorisation des ressources végétales régionales du département de Génie-chimique de l'ENP, pour leur soutien moral, leur aide et leurs encouragements, en particulier Mesdames S. Charchari et R. Derriche, trouvent ici l'expression de tous mes remerciements et ma profonde reconnaissance.*

*Je ne saurai jamais assez remercier toute ma famille pour les sacrifices et l'amour qu'elle témoigne à mon égard. Que ma belle famille soit vivement remerciée pour son soutien moral.*

# SOMMAIRE

	<i>Page</i>
<i>INTRODUCTION</i> _____	<i>1</i>
<i>CHAPITRE.I :MATIERE VEGETALE</i> _____	<i>3</i>
<i>CHAPITRE.II :ETUDE ANALYTIQUE</i> _____	<i>18</i>
<i>CHAPITRE.III:HYDRODISTILLATION</i> _____	<i>43</i>
<i>CHAPITRE.IV :ENTRAINEMENT A LA VAPEUR D'EAU</i> __	<i>56</i>
<i>CHAPITRE.V :EXTRACTION PAR SOLVANTS</i> _____	<i>73</i>
<i>CONCLUSION</i> _____	<i>84</i>
<i>BIBLIOGRAPHIE</i>	
<i>ANNEXES</i>	

## LISTE DES ABREVIATIONS

<i>Ac.</i>	:	<i>Acétate</i>
<i>C.G.</i>	:	<i>Chromatographie en phase gazeuse</i>
<i>C.G./S.M</i>	:	<i>Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse</i>
<i>DBPI</i>	:	<i>Polydiméthylsiloxane</i>
<i>tr</i>	:	<i>traces</i>
<i>THF</i>	:	<i>tétrahydrofuranne</i>
<i>R<sub>H</sub></i>	:	<i>Rendement en huile essentielle obtenue par hydrodistillation</i>
<i>t</i>	:	<i>Durée d'extraction</i>
<i>M</i>	:	<i>Masse de matière végétale</i>
<i>D</i>	:	<i>Débit de vapeur d'eau</i>
<i>H</i>	:	<i>Taux d'humidité</i>
<i>m<sub>HE</sub></i>	:	<i>Masse d'huile essentielle</i>
<i>v<sub>H</sub></i>	:	<i>Vitesse d'hydrodistillation</i>
<i>C(t)</i>	:	<i>Rendement en essence à l'instant t</i>
<i>C<sub>oo</sub></i>	:	<i>Rendement en essence à l'équilibre</i>
<i>R<sub>E</sub></i>	:	<i>Rendement en huile essentielle obtenue par entraînement à la vapeur d'eau</i>
<i>v<sub>E</sub></i>	:	<i>Vitesse d'entraînement à la vapeur d'eau</i>
<i>a<sub>1</sub></i>	:	<i>Effet individuel de la masse de matière végétale sur le rendement</i>
<i>a<sub>2</sub></i>	:	<i>Effet individuel du débit de la vapeur d'eau sur le rendement</i>
<i>a<sub>12</sub></i>	:	<i>Effet conjugué de la masse de matière végétale et du débit de vapeur d'eau sur le rendement</i>
<i>b<sub>1</sub></i>	:	<i>Effet individuel de la masse de matière végétale sur la vitesse d'entraînement</i>

- $b_2$  : *Effet individuel du débit de la vapeur d'eau sur la vitesse d'entraînement*
- $b_{12}$  : *Effet conjugué de la masse de matière végétale et du débit de vapeur d'eau sur la vitesse d'entraînement*
- $R_C$  : *Rendement en essence obtenue lors de l'extraction par solvant*
- $v_C$  : *vitesse d'extraction par solvant*

# ***INTRODUCTION***

Le monde végétal offre des ressources inépuisables et l'Homme, depuis les temps les plus anciens, a appris à utiliser les végétaux avec opportunité pour ses besoins élémentaires, en ramassant tout d'abord les racines, les feuilles, les graines et les fruits sauvages et en se consacrant ensuite à la culture des espèces plus intéressantes pour être sûr d'obtenir une récolte abondante.

L'une des valorisations possibles de cette richesse naturelle, que sont les plantes, est l'extraction de leurs essences, produits très recherchés par les industries de l'aromatization, de la parfumerie, des cosmétiques, de la pharmacie, de la chimie fine...

De nos jours, une activité économique considérable se développe tant pour les arômes artificiels que naturels, et la recherche d'une production élevée et variée pose le problème de valorisation de nouvelles espèces végétales et de mise en oeuvre de procédés d'extraction plus efficaces.

C'est dans ce contexte que nous nous proposons d'apporter une contribution à la valorisation d'une de ces espèces: *Coriandrum sativum* L., plante n'ayant jusqu'à présent pas fait objet de travaux dans notre pays et ce, en menant des études, analytique de son essence et cinétique de son extraction.

Dans un premier chapitre introductif, rappelant notamment les travaux antérieurs menés sur la coriandre, nous présenterons la matière végétale utilisée et plus précisément son fruit.

Dans un second chapitre nous nous intéresserons à l'analyse, par chromatographie en phase gazeuse (C.G.) et par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (C.G./S.M.), des huiles essentielles obtenues par hydrodistillation et par entraînement à la vapeur d'eau et des parties volatiles des extraits obtenus au moyen de différents solvants.

Après établissement des compositions des essences de graines de coriandre obtenues par différents procédés, nous passerons à l'étude de l'influence de deux paramètres opératoires, en l'occurrence, le broyage de la matière végétale et de la durée d'extraction sur le rendement et la composition de l'huile essentielle, lors de l'hydrodistillation.

Par ailleurs, pour l'entraînement à la vapeur d'eau, comme autre procédé d'extraction, nous évaluerons, au moyen de la technique de planification factorielle des expériences, l'influence individuelle et conjuguée de certains paramètres opératoires (masse de matière végétale et débit de vapeur d'eau) sur le rendement et la vitesse d'entraînement de l'huile essentielle.

Enfin, dans une dernière partie, réservée à l'extraction par solvants volatils, nous étudierons l'influence de la nature du solvant, du broyage de la matière végétale et de la durée de traitement sur le rendement et la composition des extraits.

# **CHAPITRE I:**

## **MATIERE VEGETALE**

	<i>Page</i>
<b><i>1.1 - DESCRIPTION BOTANIQUE</i></b> _____	<b>3</b>
<b><i>1.2 - UTILISATION DE LA CORIANDRE</i></b> _____	<b>5</b>
<b><i>1.3 - TRAVAUX ANTERIEURS</i></b> _____	<b>6</b>

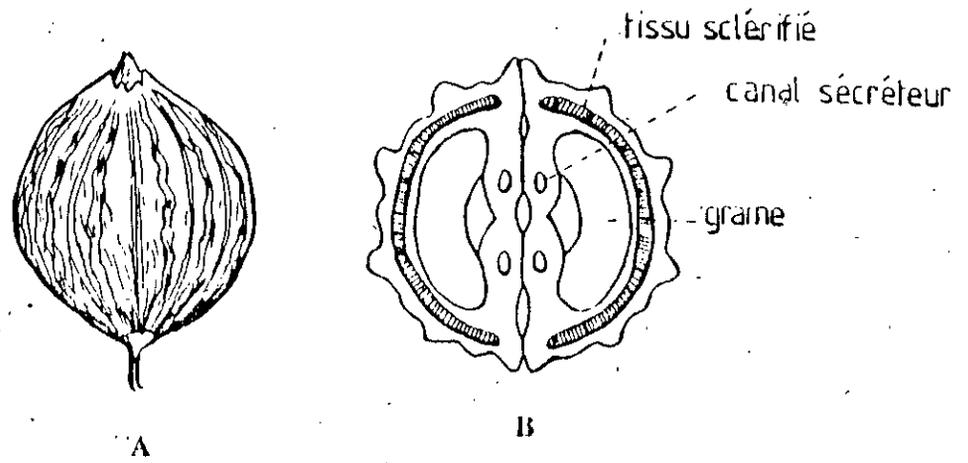
## ***1.1 - DESCRIPTION BOTANIQUE***

La coriandre, *Coriandrum sativum L.*, appartient à la famille des ombellifères. C'est une plante herbacée, haute de 20 à 80 centimètres et originaire du moyen orient [1,2]. Elle est reconnaissable au paradoxal contraste de ses deux odeurs: fraîche, elle exhale au froissement une odeur fétide de punaise, tandis que ses fruits mûrs et la plante sèche possèdent une odeur balsamique particulièrement agréable. Le nom dérivé du grec *koris*, punaise, fait allusion à cette fétidité caractéristique [3-5].

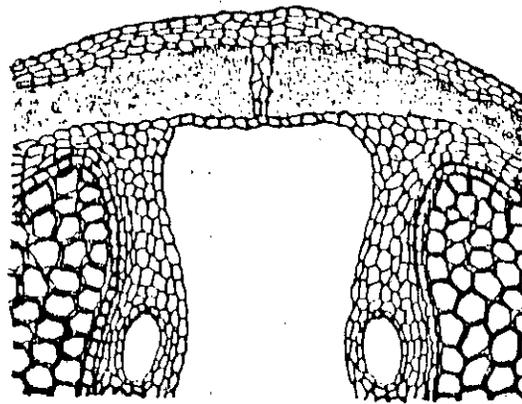
En plus de sa double odeur, la coriandre se distingue parmi les nombreuses espèces de la même famille, par la double forme de ses feuilles, les plus inférieures sont brillantes, dentées et divisées en segments ovales, les autres sont filiformes [3-6]. De plus, les fleurs, d'un blanc rosé, formées en ombelles de 5 à 8 rayons [7], sont de deux sortes, les unes larges de 6 à 8 millimètres avec des pétales en coeur et inégaux lorsqu'elles sont en périphérie, les autres, plus centrales, sont à pétales égaux [3,6-11].

Les fleurs de coriandre donnent des fruits très caractéristiques, sphériques et striés, appelés schizocarpes [2]. Ceux-ci, verts d'abord, puis d'un brun clair, mesurent en moyenne 3 à 5 millimètres de diamètre [12]. Ils sont formés de deux méricarpes étroitement unis et portant chacun cinq côtes primaires, flexueuses et quatre côtes secondaires saillantes qui s'étendent de la base au sommet [13].

La section transversale (figure 1), de forme circulaire, est caractérisée par la présence dans le péricarpe d'une assise plus ou moins large de tissu lignifié, formé de cellules fibreuses à parois épaisses (figure 2). La graine est réniforme et présente sur le milieu de sa face concave une proéminence de chaque côté de laquelle sont symétriquement placés deux larges canaux sécréteurs [7,13].



**FIGURE 1 :** *Coriandre (Coriandrum sativum L.). A: fruit; B: coupe transversale.*



**FIGURE 2 :** *Fruit de coriandre - Structure anatomique.*

### ***I.3 - TRAVAUX ANTERIEURS***

L'huile essentielle issue du fruit de coriandre a donné lieu à de nombreuses études sur sa composition chimique en raison de ses multiples applications dans l'industrie alimentaire (produits carnés, boissons alcooliques, confiserie) ainsi que dans les industries du tabac et du parfum.

Parmi les travaux effectués dans les années 60, citons ceux réalisés par Mahran et coll.[17] sur des fruits de coriandre collectés dans diverses régions d'Égypte. Les auteurs ont constaté que le linalol est le constituant principal de l'huile essentielle (65 à 72%) et qu'il est accompagné de limonène, d' $\alpha$ -pinène, de décanal, d' $\alpha$ -terpinéol, de bornéol, et de géraniol.

A la même époque, Schratz et Qadry [18-20] effectuent une étude de la biosynthèse des constituants volatils dans les différents organes de la plante, menée par analyses des huiles essentielles extraites successivement au cours de la maturation.

En 1971, Karlsen et coll.[21], analysant une huile essentielle produite avec des fruits acquis sur le marché bulgare, estiment, comme le montre le tableau I-1, que l'huile essentielle contient 30% d'hydrocarbures et 70% de composés oxygénés. Parmi les hydrocarbures, l' $\alpha$ -pinène, le limonène et le p-cimène sont prédominants. En revanche, dans la fraction oxygénée, le linalol est majoritaire suivi du camphre et de l'acétate de géranyle. Par ailleurs, ils réussirent à identifier plusieurs composants de moindres proportions que les précédents: le myrcène, le  $\beta$ -phellandrène, le camphène, le  $\beta$ -pinène, le terpinolène et le sabinène dans la fraction hydrocarbonée; le géraniol, le bornéol, l' $\alpha$ -terpinéol, le terpinène-4-ol et l'acétate de linalyle dans la fraction oxygénée.

**TABLEAU.I-1: Composition de l'huile essentielle des graines de coriandre selon Karlsen et coll.[21].**

Hydrocarbures (30%)	Composés oxygénés (70%)
$\alpha$ -pinène	linalol
camphène	bornéol
$\beta$ -pinène	$\alpha$ -terpinéol
sabinène	terpinène-4.ol
$\alpha$ -phellandrène	géraniol
myrcène	acétate de linalyle
$\alpha$ -terpinène	acétate de géranyle
limonène	camphre
$\beta$ -phellandrène	
$\gamma$ -terpinène	
terpinolène	
cis-ocimène	
trans-ocimène	

En 1977, l'équipe de Gupta [22], travaillant sur des graines indiennes, trouve que l'huile essentielle contient 41,5% de linalol et 21% d'acétate de linalyle. Les autres terpènes fonctionnalisés significatifs sont le thymol (7%), le bornéol (2,7%), le 1,8-cinéol, le citronellol, l'acétate de géranyle (1,5 à 2%), le géraniol, l'oxyde de caryophyllène, et l'éléamol (inférieur à 1%). Parmi les principaux hydrocarbures terpéniques, ils citent le  $\beta$ -caryophyllène (5,5%), l' $\alpha$ -pinène (5%), le limonène et le  $\beta$ -phellandrène (2%). La même équipe, étudiant les extraits chloroformiques des graines soumis à un fractionnement chromatographique sur silice, a pu identifier trois composants non volatils: le psoralène, l'angélicine, et le coriandrinol.

Toujours en 1977, Juknevičienė et coll.[23] se sont, pour leur part, intéressés à la composition de l'huile essentielle produite à partir des graines russes. L'analyse de cette huile a montré qu'elle était riche en linalol (70 à 75%) et qu'elle contenait les produits

**TABLEAU.I-5: Variabilité inhérente à la maturité du fruit de coriandre dans la composition chimique des principaux constituants, selon Lawrence [33].**

Composé	Teneur (%)
$\alpha$ -pinène	0.5 - 6.5
camphène	0.4 - 1.1
$\beta$ -pinène	0.3 - 0.4
sabinène	t** - 0.2
$\delta$ 3-carène	t - 0.6
myrcène	0.2 - 0.7
$\alpha$ -terpinène	t - 0.1
$\alpha$ -phellandrène	t - 0.5
limonène	1.7 - 3.1
$\beta$ -phellandrène	t - 0.1
$\gamma$ -terpinène	6.9 - 10.1
p-cymène	2.1 - 3.7
terpinolène	t - 0.1
nonalal	t - 0.1
cis-oxyde de linalol	t - 0.1
trans-oxyde de linalol	t - 0.1
décanal	t - 0.3
linalol	60.0-80.0
acétate de linalyle	t - 5.1
camphre	1.2 - 5.0
$\beta$ -caryophyllène	t - 0.5
undécanal	t - 0.1
terpinène-4ol	t - 0.3
trans-décanal-2	t - 0.1
bornéol	0.1 - 1.5
$\alpha$ -terpinéol	0.1 - 0.3
acétate d' $\alpha$ -terpényle	t - 0.2
dodécanal	0.1 - 0.2
acétate de géranyle	2.3 - 7.9
géraniol	0.8 - 9.5
nérolidol	t - 0.1

\*\* : traces inférieures à 0.1%

Par ailleurs, lors de ce même travail, Lawrence identifia un certain nombre de composés infiniment minoritaires, reportés dans le tableau I-6 ci-dessous:

**TABLEAU. I-6: Composés infiniment minoritaires de l'huile essentielle des graines de coriandre, identifiés par Lawrence [33].**

COMPOSES	
citronellol	dodécanol
trans-2-dodécanal	heptanal
myristicine	isovaléraldéhyde
$\alpha$ -thujène	valéraldéhyde
cis-ocimène	methyl-chavicol
trans-ocimène	trans-anethole
heptadécane	safrol
nérol	trans,cis-allo-ocimène
géraniol	trans,trans-allo-ocimène
octadécane	$\alpha$ -p-diméthylstyrène

Lawrence, qui s'est intéressé longuement à la coriandre, a étudié la composition des graines immatures [35]. Il a noté que l'huile issue de ces graines contient relativement peu de linalol (25.8%), mais qu'elle est particulièrement riche en aldéhydes aliphatiques; ainsi, le E décénal-2 représente 27% du mélange, comme le montre le tableau.I-7.

**TABLEAU I-7: Composition chimique et teneur relative des constituants de l'huile essentielle des graines de coriandre immatures, selon Lawrence [35].**

Composé	Teneur(%)	Composé	Teneur(%)
pentanal	0.4	linalol + octanol	25.8
$\alpha$ -pinène	2.1	$\beta$ -caryophyllène	0.1
camphène	0.2	décénal-5	0.3
$\beta$ -pinène	0.2	undécanal	t
sabinène	0.1	menthol	0.2
myrcène	0.2	acétate de menthyle	1.5
limonène	0.7	E décénal-2	27.0
1,8-cinéol	0.1	nonanol	0.2
$\gamma$ -terpinène	3.0	$\alpha$ -humulène	0.1
p-cymène	1.1	dodécanal	0.6
terpinolène	0.6	dodécenal-7	0.4
octanal	0.5	acétate de géranyle	0.2
hexanol	0.1	E undécénal-2	4.8
nonanal	0.1	tridécanal	0.4
menthone	1.3	E dodécénal-2	5.5
décanal	13.2	dodécanol	0.1

Compte tenu de ce résultat surprenant, Lawrence a effectué, en 1991, une étude précise concernant la composition chimique du *coriandrum sativum* à différents stades de sa maturité, présentée dans le tableau.I-8.

**TABLEAU.I-8: Comparaison de la composition chimique du coriandrum sativum à différents stades de sa maturité, selon Lawrence[35].**

Composé	Stades de maturité					
	1	2	3	4	5	6
octanal	1.2	11.2	0.8	10.7	0.4	0.4
nonanal	0.5	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1
décanal	30.0	18.0	11.9	6.3	6.2	1.6
camphre	0.1	t	0.5	1.3	2.2	2.4
E décénal-2	20.6	46.5	46.5	40.6	30.9	3.9
dodécenal	3.3	1.7	1.0	0.6	0.5	0.4
E undécénal-2	2.6	2.2	1.4	--	--	--
tridécenal	3.1	1.9	2.6	0.9	1.1	0.5
dodécénal-2	7.6	8.1	5.9	4.6	4.8	2.5
tétradécenal	0.7	0.3	0.1	0.1	0.1	0.2
E tridécénal-2	0.5	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1
E tétradécénal-2	0.4	2.6	1.7	1.5	1.6	1.7
linalol	0.3	4.3	17.5	30.1	40.9	60.4
géraniol	0.2	0.1	0.3	0.7	0.9	1.4
Acétate de géranyle	4.2	0.8	0.8	0.7	0.7	0.7

**1:Coriandre commençant a fleurir; 2:Floraison presque totale; 3:Plaine floraison; 4:Après floraison (50% fleurs + 50% fruits); 5:Fruits immatures (fructification totale); 6:Fruits mûrs.**

Ce tableau montre nettement que le linalol s'accumule progressivement dans les fruits au fur et à mesure de leur maturation: l'huile issue des fleurs avant ouverture ne contient que 0.3% de linalol et ce taux augmente jusqu'à 60.4% dans les fruits mûrs. Parallèlement, le E décénal-2 évolue de 20.6% à 3.9% en passant par un maximum de 46.5% dans le stade de pleine floraison; de même, le taux de décanal passe de 30% à 1.6%. Les taux du E tétradécénal-2 et le dodécénal-2 évoluent de la même manière. On signalera pour terminer l'apparition progressive du camphre dont le taux passe de 0.1% à 2.4% .

Dans un travail récent, Perineau et coll.[36] se sont intéressés à la technologie de traitement des fruits de coriandre. Les auteurs ont opéré à l'échelle semi-pilote sur des lots de graines en provenance de Bulgarie et d'Argentine. La composition des huiles obtenues est normale; l'agitation des graines et surtout leur broyage dans le turbo-distillateur accélèrent le processus de récupération de l'huile essentielle. Le rendement passe de 0.9% au bout de huit heures pour des graines entières à 1.3% au bout de cinq heures pour des graines broyées et agitées. Parallèlement, les auteurs ont étudié la cinétique de l'hydrodistillation; ils ont ainsi noté que le linalol distille relativement plus vite que les autres composants.

Quelques laboratoires se sont intéressés aux composants organiques non volatils des graines. Nous avons déjà signalé l'identification du psoralène, de l'angélicine et du coriandrinol par Gupta et coll.[22].

Par ailleurs, Rao et coll.[37] ont identifié trois phospholipides: phosphatidycholine, phosphatidylethanolamine et phosphatidylinositol.

Nous venons de voir que la plupart des travaux relatifs à la coriandre ont porté sur les fruits. Cependant, quelques publications font état de la composition chimique des composants volatils de la partie aérienne.

Récemment, Potter et Fagerson [38] ont analysé précisément l'huile essentielle obtenue par hydrodistillation des feuilles de coriandre dans un appareil de Likens-Nickerson. L'huile essentielle est principalement constituée par des aldéhydes dont le E décénal-2 (46%), le E dodécenal-2 (10%) et le E tétradécenal-2 (6%); ces aldéhydes sont accompagnés, comme le montre le tableau.I-9, d'alcools correspondants en moindres quantités.

On rappellera que ces aldéhydes étaient présents dans les fruits immatures et que leurs proportions s'amenuisaient lors de la maturation. A côté de ces composés volatils, les feuilles de coriandre contiennent un certain nombre de coumarines et d'isocoumarines; ces composés, dont la coriandrine, hautement photoactifs, ont fait l'objet d'un certain nombre d'études [39,40].

**TABLEAU.I-9: Composition chimique et teneur relative des constituants de l'huile essentielle des feuilles de coriandre, selon Potter et Fagerson [38].**

Composé	Teneur(%)	Composé	Teneur(%)
nonane	0.2	methyl-8 nonéanal-2	1.3
octanal	0.5	C <sub>12</sub> -éanal	0.1
nonanal	0.2	methyl-9 décéanal-2	0.1
E nonéanal-2	0.3	dodécéanal-11	0.2
C <sub>10</sub> -éanal	0.3	dodécanal	1.6
Z décéanal-4	0.3	E dodécéanal-2	10.3
décéanal-9	0.8	dodécène-2ol-1	1.4
décanal	4.4	tridécanal	0.1
undécanol-1	0.2	E tridécéanal-2	0.7
E décéanal-2	46.1	tétradécéanal-13	0.1
décène-2ol-1	9.2	tétradécanal	0.7
décanol-1	4.3	E tétradécéanal-2	5.8
undécéanal-10	0.1	tétradécène-2ol-1	0.6
undécanal	0.5	pentadécanal	0.1
dodécéanal-4	0.1	pentadécéanal-2	0.7
E undécéanal-2	5.6	hexadécéanal-2	0.4
undécène-2ol-1	0.9	heptadécanal	0.3

## CHAPITRE II:

### ETUDE ANALYTIQUE

	<i>Page</i>
<b>II.1 - ETUDE ANALYTIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE OBTENUE PAR HYDRODISTILLATION DES GRAINES DE CORIANDRE _____</b>	<b>19</b>
<b>II.1.1 - Préparation de l'échantillon d'huile                   essentielle _____</b>	<b>19</b>
<b>II.1.2 - Composition chimique de l'huile essentielle                   des graines de coriandre _____</b>	<b>21</b>
<b>II.2 - ETUDE ANALYTIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE DES GRAINES DE CORIANDRE OBTENUE PAR ENTRAÎNEMENT A LA VAPEUR D'EAU _____</b>	<b>25</b>
<b>II.2.1 - Préparation de l'échantillon d'huile                   essentielle _____</b>	<b>25</b>
<b>II.2.2 - Composition chimique de l'huile essentielle                   obtenue par entraînement à la vapeur d'eau                   des graines de coriandre _____</b>	<b>27</b>
<b>II.3 - ETUDE ANALYTIQUE DES ESSENCES ISSUES DE L'EXTRACTION PAR SOLVANTS DES GRAINES DE CORIANDRE _____</b>	<b>30</b>
<b>II.3.1 - Préparation de la concrète _____</b>	<b>30</b>
<b>II.3.2 - Etude analytique de la concrète _____</b>	<b>32</b>

De compositions très complexes, les huiles essentielles contiennent un nombre très important de constituants appartenant en majeure partie à la classe des terpènes [41].

La complexité de ces mélanges naturels volatils a nécessité d'avoir des techniques de séparation et d'analyse très performantes. En effet, depuis quelques années, la chromatographie en phase gazeuse (C.G.) et la chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (C.G./S.M.) ont donné une efficacité nouvelle à l'analyse des substances volatiles [42,43].

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 [44,45].

Une huile essentielle est très fluctuante dans sa composition, sur laquelle intervient un grand nombre de paramètres qu'ils soient d'ordre naturel, soit d'origine intrinsèque (génétique, localisation, maturité), soit d'origine extrinsèque (sol, climat,...), ou d'ordre technologique c'est à dire liés au mode d'exploitation du matériel végétal [46].

En vue d'apprécier la qualité de notre substrat végétal, nous nous sommes intéressés, dans ce chapitre, à l'étude analytique d'une part, des huiles essentielles de coriandre obtenues par hydrodistillation et par entraînement à la vapeur d'eau et d'autre part, des fractions volatiles des extraits produits par différents solvants.

L'ensemble de la matière végétale utilisée pour nos travaux est issue d'un même lot de graines, acheté sur le marché local, et provenant de la région de *SETIF*, située dans le Nord-Est algérien. Tous les essais ont été réalisés à l'échelle laboratoire.

## **II.1 - ETUDE ANALYTIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE OBTENUE PAR HYDRODISTILLATION DES GRAINES DE CORIANDRE**

Traditionnellement, les graines de coriandre sont hydrodistillées afin de récupérer l'huile essentielle riche en linalol [17-33].

Nous avons reproduit ce travail d'extraction et eu recours à des techniques chromatographiques (C.G. et C.G./S.M.) en vue d'évaluer la qualité de l'huile essentielle extraite et de vérifier ainsi la conformité de notre matériel végétal.

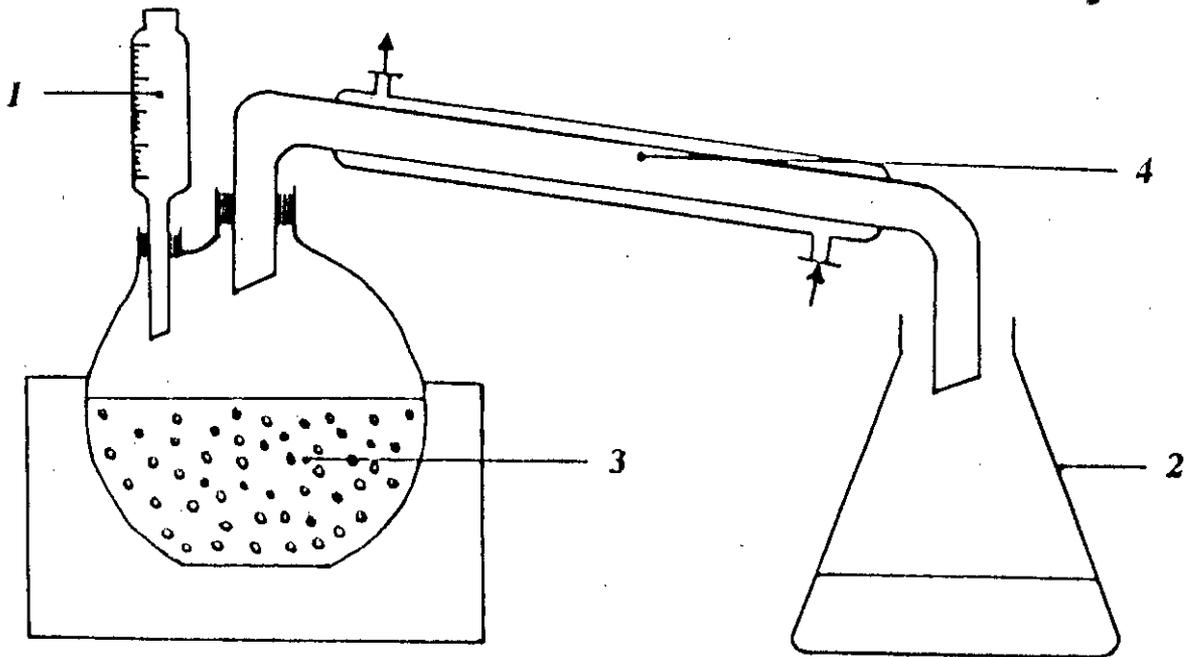
### **II.1.1 - Préparation de l'échantillon d'huile essentielle**

L'hydrodistillation des graines de coriandre a été menée, durant 9 heures, au moyen d'un appareillage schématisé sur la figure 3.

Le matériel végétal, baignant dans l'eau bouillante, est disposé dans un ballon à deux cols, d'une capacité de deux litres, relié à un réfrigérant. La vapeur d'eau produite entraîne les constituants volatils qui, après condensation dans le réfrigérant, sont recueillis dans le récipient de recette. L'huile essentielle est ensuite séparée du distillat par extraction liquide-liquide au moyen de l'éther diéthylique.

D'un point de vue organoleptique, nous avons constaté que l'huile essentielle récupérée, de couleur jaune pâle, restitue fidèlement l'odeur de notre substrat végétal.

- 1 - Alimentation en eau*
- 2 - Récipient de recette*
- 3 - Matière végétale + Eau bouillante*
- 4 - Réfrigérant*



***FIGURE 3 : Schéma du dispositif expérimental de l'hydrodistillation.***

## **II.1.2 - Composition chimique de l'huile essentielle des graines de coriandre**

L'huile essentielle des graines de coriandre récupérée a été soumise, en premier lieu, à une analyse par chromatographie en phase gazeuse. L'appareil utilisé est de marque DELSI instrument, série 330, équipé d'un détecteur à ionisation de flamme et relié à un intégrateur - enregistreur de type SHUMADZU GR.6A CHROMATOPAC. La séparation a été effectuée sur une colonne capillaire en silice fondue, greffée d'une couche de polydiméthylsiloxane (DBP1).

L'analyse qualitative a été ensuite complétée par C.G./S.M. en utilisant un chromatographe HEWLETT-PACKARD, série 5890.A, couplé à un spectromètre de masse HEWLETT-PACKARD, série 5970.A. Le traitement des données a été effectué à l'aide d'un micro-ordinateur HEWLETT-PACKARD 9153, série 300.

Les conditions opératoires d'analyse par C.G. et par C.G./S.M. sont les suivantes:

### **Colonne**

Phase stationnaire	: DBP1.
Nature	: Silice fondue.
Longueur	: 25 mètres.
Diamètre intérieur	: 0.23 millimètre.
Épaisseur du film	: 1.5 micromètres.

### **Températures**

Injecteur	: 200°C.
Détecteur	: 250°C.
Colonne	: 50 à 220°C à raison de 5°C / minute.

### **Gaz vecteur**

C.G.	: Azote, Débit = 1 millilitre/minute.
C.G./S.M.	: Hélium, Débit = 1 millilitre/minute.

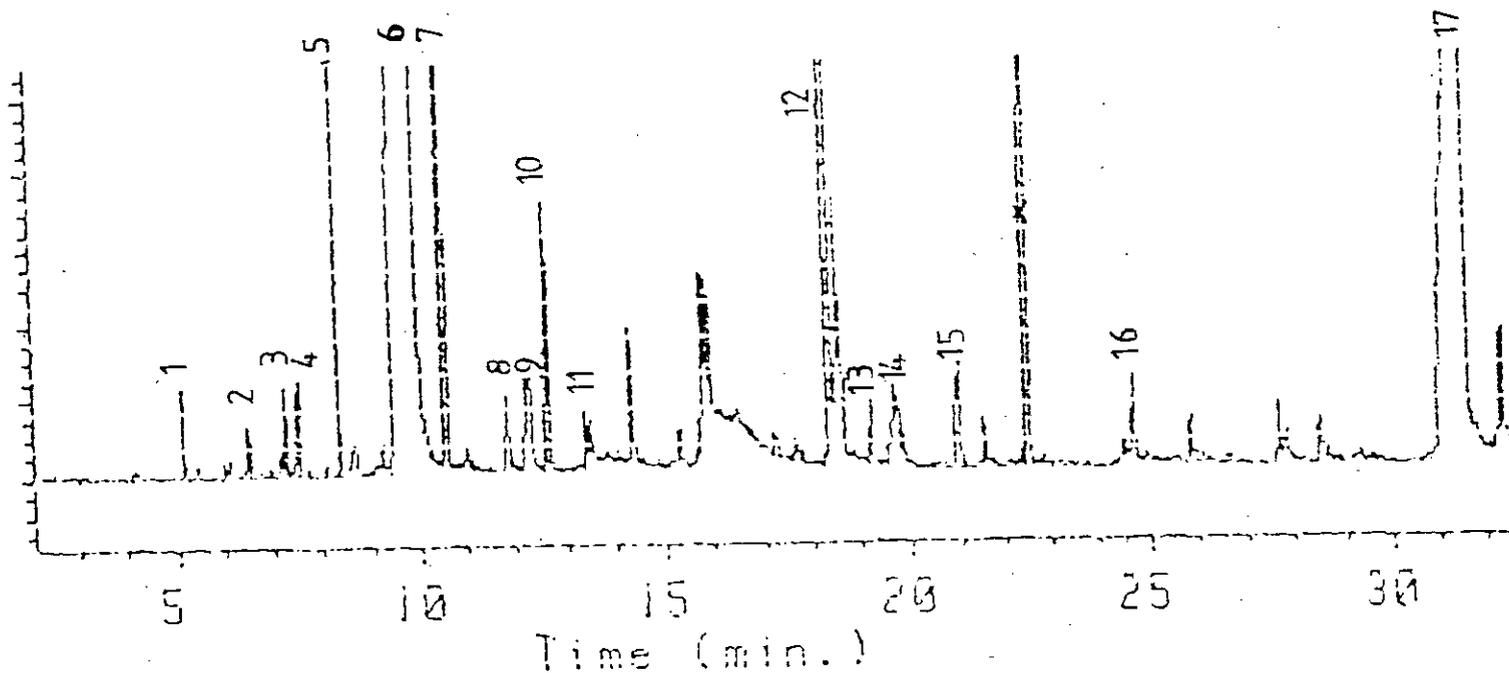
**Volume injecté** : 0.1 microlitre.

La composition chimique des principaux constituants de cette huile essentielle est présentée dans le tableau.II-1. Nous avons pu identifier plus de 85% des composés constituant notre huile essentielle à l'aide des spectres de masse, des indices de rétention et pour certains, en nous servant d'étalons.

**TABLEAU.II-1:** Composition chimique de l'huile essentielle produite par hydrodistillation des graines de coriandre de Sétif (Algérie). Comparaison à d'autres travaux de référence.

Composés	Teneur relative (%)	Analyses de référence (%)			
		[36]	[33]	[26]	[29]
$\alpha$ -pinène	0.09	7.3	3.9	3.46	3.60
camphène	—	0.7	0.7	0.68	0.87
$\beta$ -pinène	—	0.5	0.4	0.72	0.28
sabinène	—	0.4	0.4	0.10	0.17
myrcène	0.17	0.7	0.9	0.41	1.35
p-cymène	0.18	tr	2.1	3.89	1.70
limonène	—	1.8	1.6	6.20	1.90
$\gamma$ -terpinène	0.60	8.5	6.9	2.72	4.70
cinéol-1,8	0.07	—	—	—	—
terpinolène	—	tr	—	0.25	—
linalol	70.20	68.0	70.0	69.33	69.10
camphre	1.82	3.7	7.7	4.12	5.20
terpinène-4-ol	0.48	2.3	0.5	—	0.28
$\alpha$ -terpinéol	0.28	0.5	0.4	0.33	0.59
octanal	2.17	—	—	—	—
dodécane	0.50	—	—	—	—
géraniol	—	1.4	0.8	1.06	0.90
acétate de géranyle	1.62	—	2.3	1.01	4.70
dodécanal	0.45	—	—	—	—
$\beta$ -caryophyllène	0.21	—	—	—	—
$\alpha$ -humulène	0.73	—	—	—	—
nérolidol	0.48	—	—	—	—
acide myristique	5.90	—	—	—	—

$\alpha$ -pinène (1)		acétate de géranyle (12)
myrcène (2)	camphre (7)	dodécanal (13)
p-cymène (3)	terpinène 4-ol (8)	$\beta$ -caryophyllène (14)
cinéol-1,8 (4)	$\alpha$ -terpinéol (9)	$\alpha$ -humulène (15)
$\gamma$ -terpinène (5)	octanal (10)	nérolidol (16)
linalol (6)	dodécane (11)	acide myristique (17)



**FIGURE 4 :** *Chromatogramme de l'huile essentielle obtenue par hydrodistillation des graines de coriandre.*

L'examen de ce tableau montre que l'huile essentielle algérienne est comme les autres essentiellement composée de terpènes.

Sur le plan quantitatif, le composé majoritaire est le linalol (70%) et ce, conformément à toutes les données de la littérature [17-33]. Ce composé est accompagné de produits en faible quantité, tels que le camphre, l'octanal, l'acétate de géranyle, l'acide myristique...

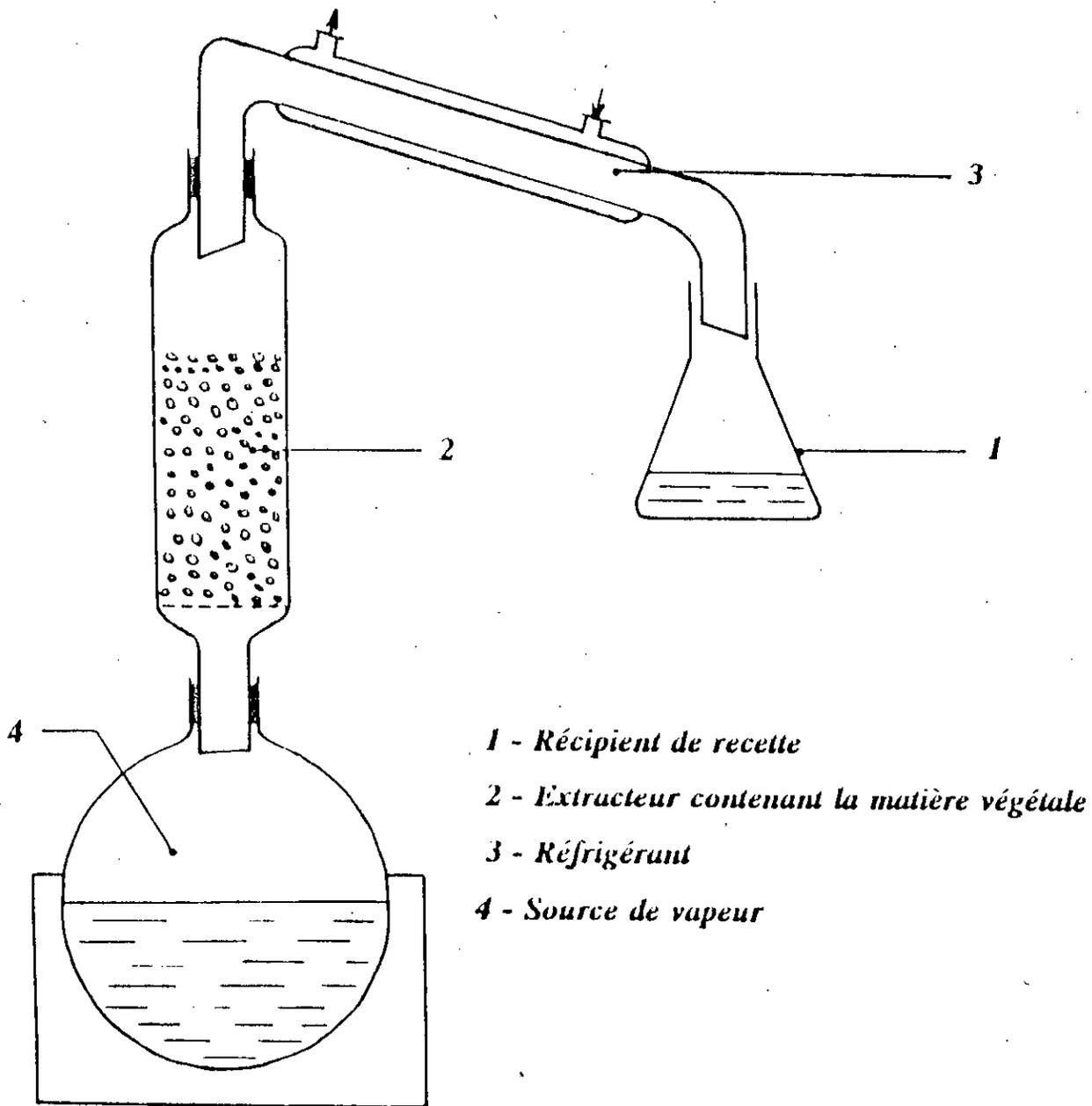
## **II.2 - ETUDE ANALYTIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE DES GRAINES DE CORIANDRE OBTENUE PAR ENTRAÎNEMENT A LA VAPEUR D'EAU**

Dans le but de vérifier l'éventuelle dégradation des produits de l'huile essentielle obtenue par hydrodistillation des graines de coriandre, du fait de leur contact prolongé avec le milieu aqueux (pH = 6.5) porté à ébullition, nous avons procédé à la récupération de l'essence du fruit de coriandre par entraînement à la vapeur d'eau, suivie de son analyse par chromatographie en phase gazeuse.

### **II.2.1 - Préparation de l'échantillon d'huile essentielle**

L'entraînement à la vapeur d'eau des graines de coriandre a été menée, durant 9 heures, au moyen d'un appareillage schématisé sur la figure 5. Il est constitué d'un ballon à trois cols, d'une capacité de trois litres, rempli d'eau bouillante et surmonté d'une colonne en verre contenant la matière végétale. La vapeur d'eau se dégageant du ballon traverse ainsi les graines de coriandre et entraîne les vapeurs d'huile essentielle à travers un réfrigérant où elles sont condensées, puis recueillies dans un ballon de recette.

L'huile est ensuite séparée du distillat par extraction à l'éther diéthylique.



**FIGURE 5 :** Schéma du dispositif expérimental de l'entraînement à la vapeur d'eau.

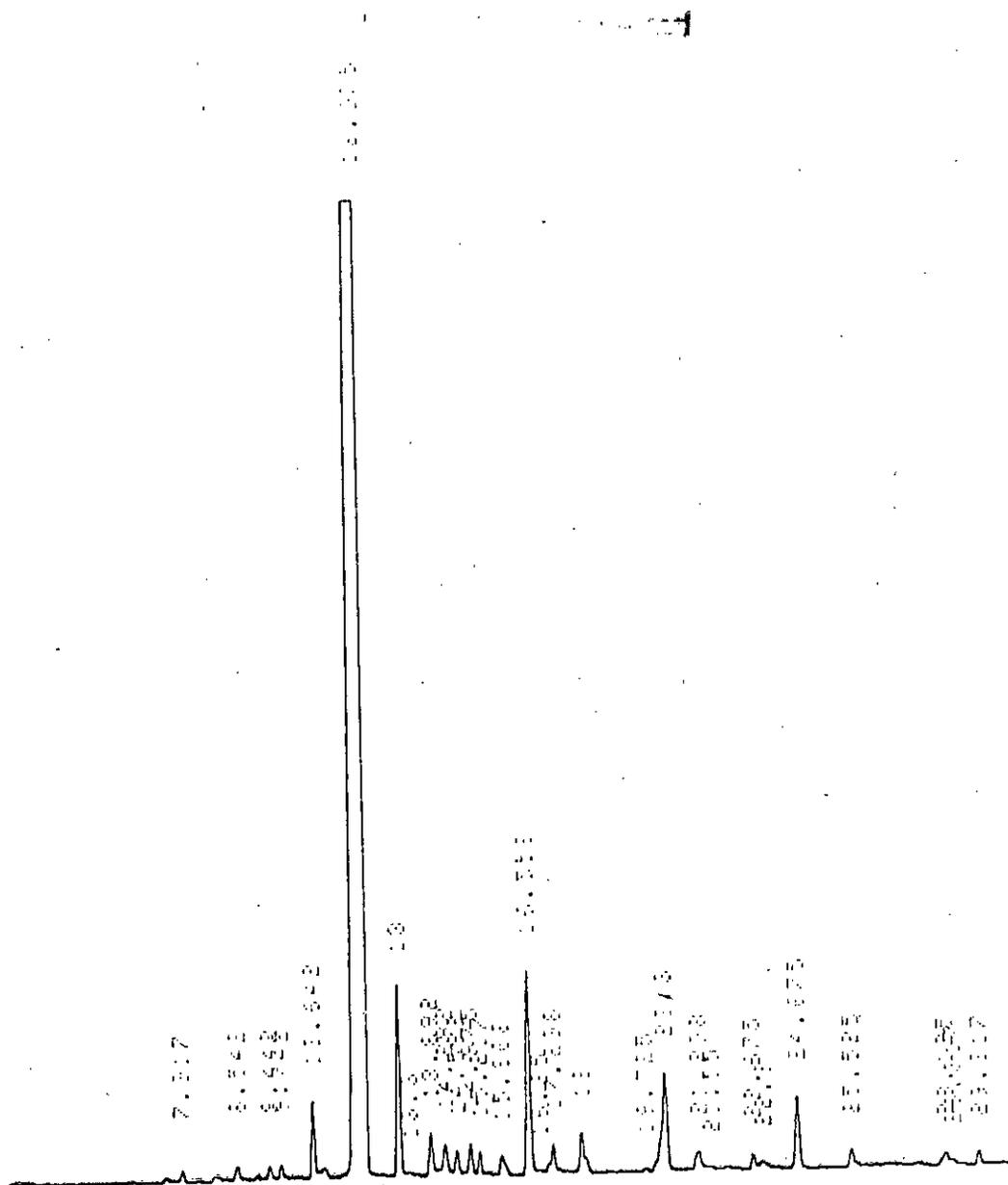
## II.2.2 - Composition chimique de l'huile essentielle obtenue par entraînement à la vapeur d'eau des graines de coriandre

L'huile essentielle récupérée par entraînement à la vapeur d'eau du matériel végétal a été soumise à l'analyse chromatographique sur colonne DBP1 dans les mêmes conditions opératoires que précédemment.

Les teneurs relatives des constituants identifiés, dans cette huile, sont regroupées dans le tableau.II-2. ci-dessous:

**TABLEAU.II-2:** Composition chimique de l'huile essentielle produite par entraînement à la vapeur d'eau des graines de coriandre de Sétif (Algérie).

Composés	Teneur relative (%)
$\alpha$ -pinène	0.31
myrcène	0.16
p-cymène	0.13
$\gamma$ -terpinène	0.20
cinéol-1,8	0.08
linalol	80.33
camphre	1.36
terpinène4-ol	0.14
$\alpha$ -terpinéol	0.42
octanal	3.06
dodécane	0.53
acétate de géranyle	1.75
dodécanal	0.24
$\beta$ -caryophyllène	0.33
$\alpha$ -humulène	0.79
nérolidol	0.14
acide myristique	2.44



**FIGURE 6 :** *Chromatogramme de l'huile essentielle obtenue par entraînement à la vapeur d'eau des graines de coriandre.*

Ce tableau.II-2 montre que l'huile essentielle produite par entraînement à la vapeur d'eau des graines de coriandre présente une composition chimique comparable à celle issue d'une hydrodistillation.

Par ailleurs, du point de vue organoleptique, les huiles essentielles, obtenues par hydrodistillation et par entraînement à la vapeur d'eau de notre matière végétale, présentent les mêmes caractéristiques.

### **II.3 - ETUDE ANALYTIQUE DES ESSENCES ISSUES DE L'EXTRACTION PAR SOLVANTS VOLATILS DES GRAINES DE CORIANDRE**

Une autre manière de récupérer les composants volatils d'une matière végétale consiste en son extraction par solvant volatil, suivie d'un entraînement à la vapeur d'eau de l'essence obtenue.

Le procédé d'extraction par solvants volatils consiste à épuiser la matière végétale de ses constituants odorants au moyen d'un solvant ou de mélanges binaires de solvants, dans des extracteurs hermétiquement clos. Outre les substances aromatiques, les solvants organiques extraient des cires et des colorants naturels.

Cette partie de notre étude s'intéresse à l'extraction et à l'analyse des composantes volatiles des essences obtenues par épuisement des graines de coriandre dans différents solvants.

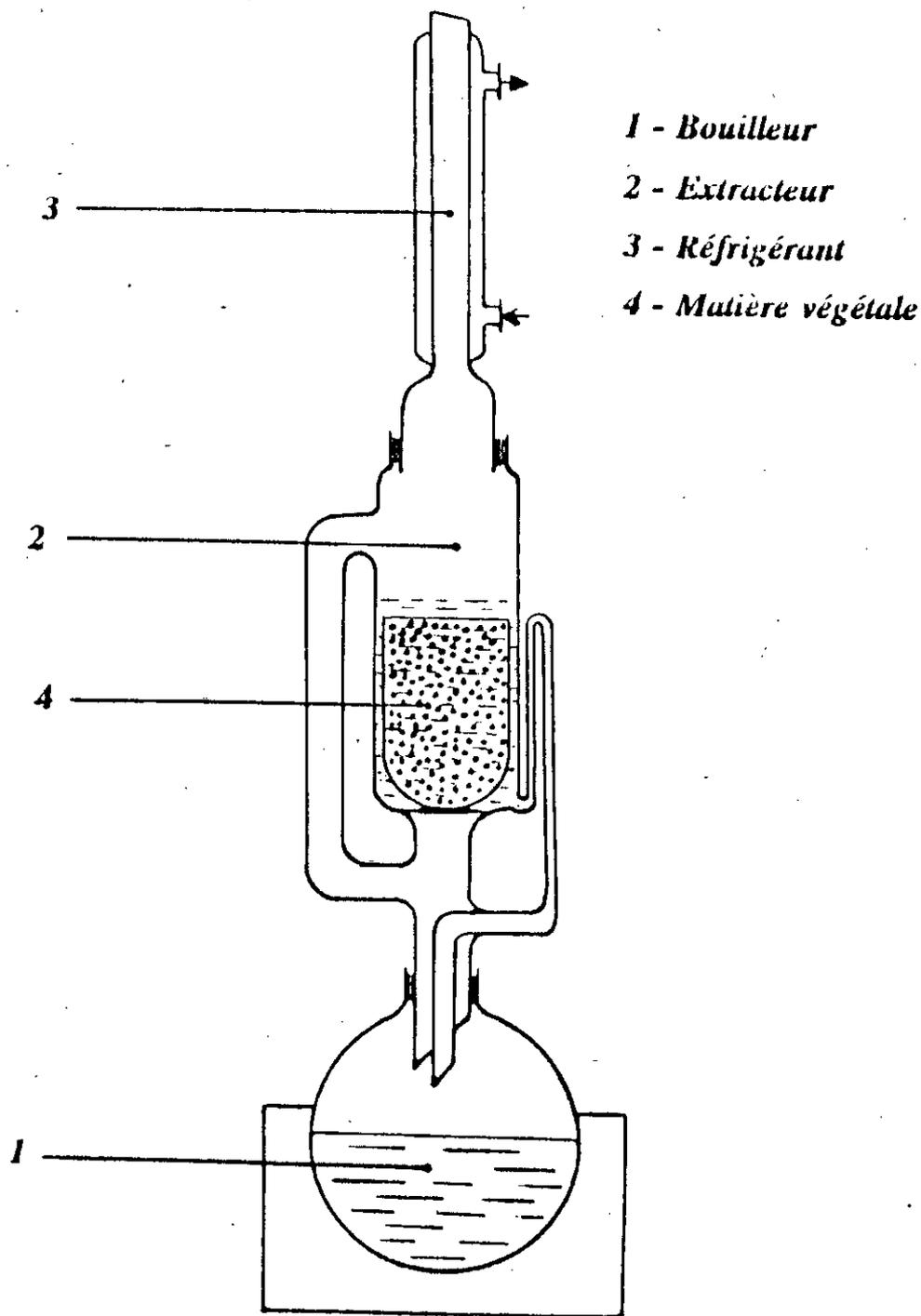
#### **II.3.1 - Préparation de la concrète**

Un essai au pentane a été conduit dans un extracteur de type Soxhlet, d'une capacité de 500 millilitres, schématisé sur la figure 7.

Les graines de coriandre sont conditionnées dans un extracteur fixé sur le col d'un ballon, contenant le solvant, et surmonté d'un réfrigérant. Le solvant s'évapore, se condense et s'écoule sur la matière végétale.

Lors de cette étape d'imprégnation, des phénomènes de diffusion et d'échange s'établissent entre le substrat végétal et le solvant.

Lorsque le corps de l'extracteur est plein, le solvant chargé de soluté, appelé miscella, est soutiré périodiquement par l'amorçage d'un siphon.



**FIGURE 7 :** Schéma du dispositif expérimental d'extraction par solvant dans un Soxhlet.

Ce mécanisme induit une aspiration violente et donc un lessivage efficace du solvant inhibant la matière végétale. Le solvant se trouvant dans le ballon, s'enrichit petit à petit en soluté et la matière végétale est toujours mise en contact avec du solvant fraîchement distillé. Après épuisement total des graines, le solvant chargé subit une distillation atmosphérique suivie d'une distillation sous vide.

D'un point de vue organoleptique, la concrète récupérée ne restitue nullement l'odeur caractéristique des graines de coriandre.

### **II.3.2. Etude analytique de la concrète**

Afin d'élucider la composition de l'huile essentielle contenue dans la concrète et de pouvoir la comparer à celle obtenue par hydrodistillation des graines, nous avons procédé à son analyse par C.G. et par C.G./S.M. dans les conditions opératoires données précédemment.

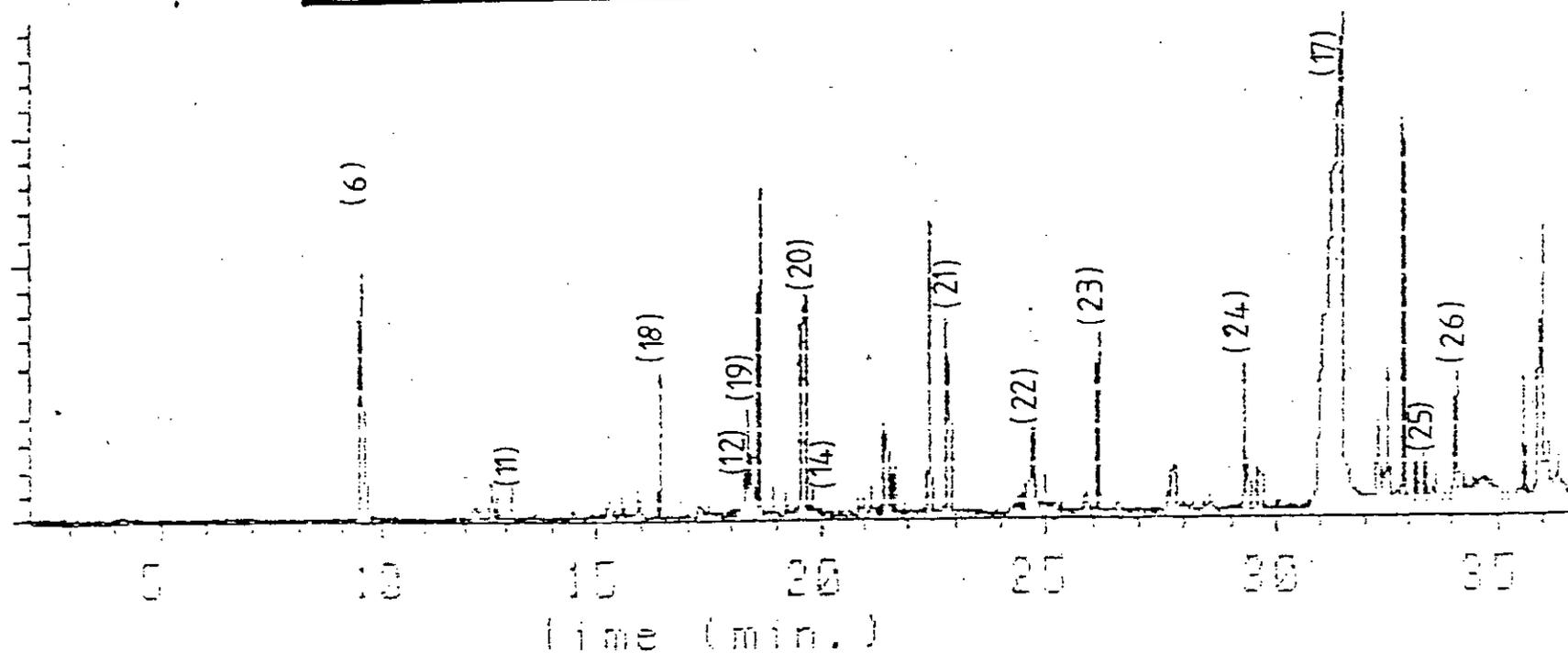
Les teneurs des constituants majoritaires identifiés sont regroupées dans le tableau.II-3.

L'examen de ce tableau montre des différences significatives dans la composition de la fraction volatile de la concrète, comparée à celle de l'huile essentielle obtenue précédemment.

A notre avis, cette différence pourrait être due à l'une ou l'autre des hypothèses suivantes:

- 1-Le linalol pourrait se trouver protégé à l'intérieur des cellules végétales; l'accès du solvant serait difficile et ralentirait considérablement l'extraction du produit.
- 2-Le linalol pourrait se trouver chimiquement lié à une phase solubilisable (ose, acide), il ne peut apparaître alors à l'état libre dans le chromatogramme.

linalol (6)	alcane ramifié en C <sub>15</sub> (21)
dodécane (11)	acide laurique (22)
tridécane (18)	hexadécane (23)
acide C <sub>10</sub> (19)	heptadécane (24)
acétate de géranyle (12)	acide myristique (17)
tétradécane (20)	hexahydrofarnésylacétone (25)
β-caryophyllène (14)	acide pentadécanoïque (26)



**FIGURE 8 :** *Chromatogramme de la fraction volatile de l'extrait obtenu par épuisement des graines de coriandre dans le pentane.*

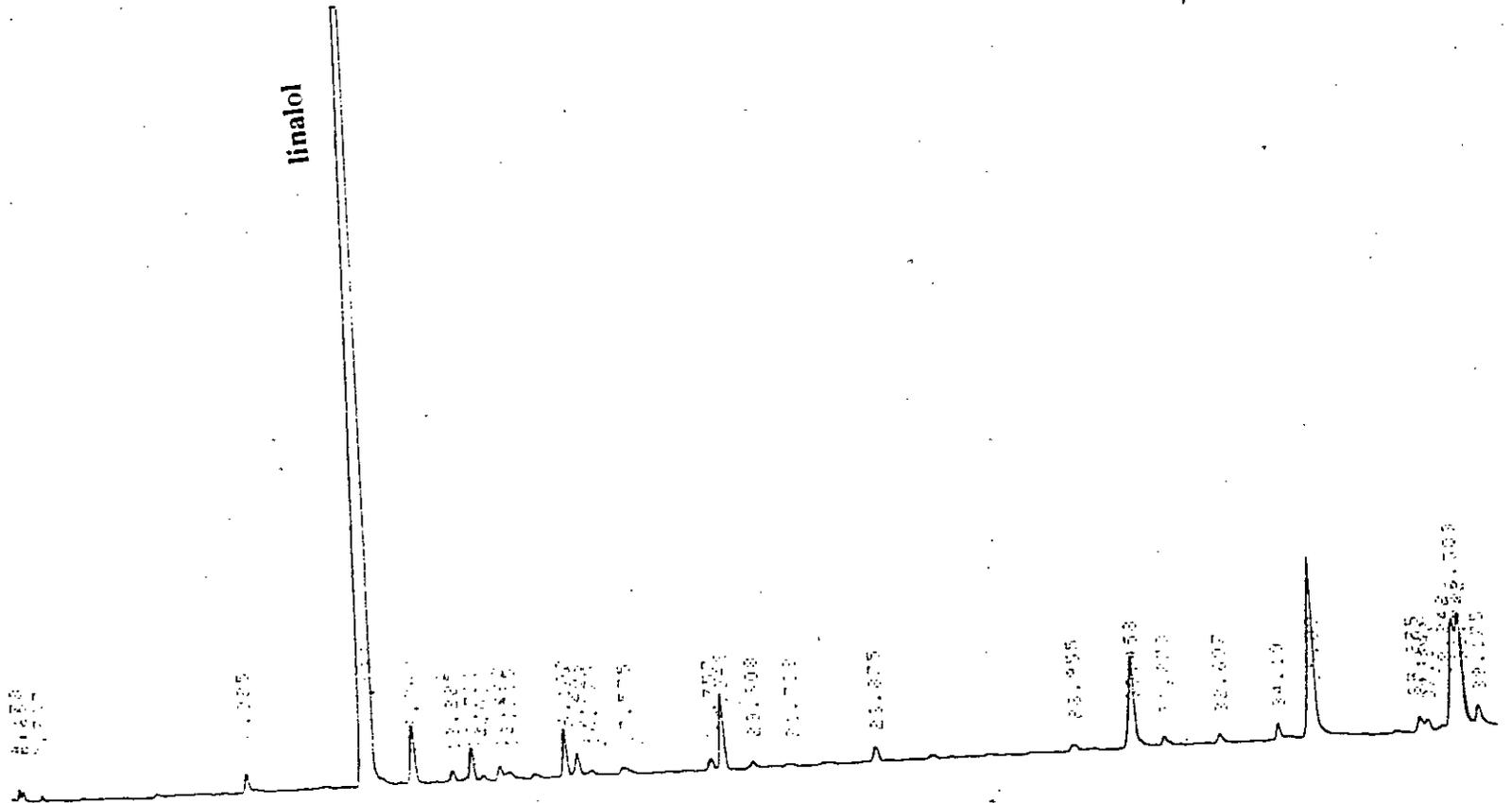
**TABLEAU II-3: Composition chimique de la fraction volatile de la concrète produite par extraction des graines de coriandre de Sétif (Algérie) au pentane.**

Composés	Teneur relative (%)	Méthodes d'identification		
		a	b	c
linalol	5.40	+	+	+
dodécane	tr	+	+	+
tridécane	tr	+	+	+
acide C <sub>10</sub>	tr			+
acétate de géranyle	tr	+	+	+
tétradécane	0.08	+	+	+
β-caryophyllène	tr	+	+	+
alcane ramifié en C <sub>15</sub>	1.37			+
acide laurique	2.11		+	+
hexadécane	8.00		+	+
heptadécane	13.13	+	+	+
acide myristique	63.20		+	+
hexahydrofamésylacétone	tr		+	+
acide pentadécanoïque	tr		+	+

a: étalons ; b: indices de rétention ; c: spectres de masse

En effet, le chromatogramme, présenté sur la figure 8, fait apparaître la présence des acides gras libres; les plus importants sont des composés saturés: acide myristique et acide laurique. La présence de ces produits lipidiques est quasi-générale dans toutes les matières végétales et en particulier dans les graines. L'extrait contient aussi, normalement, la série homologue des alcanes, du dodécane à l'heptadécane. Cependant, le linalol, représentant environ 70% de l'huile essentielle et choisi en tant que marqueur qualitatif des différents extraits préparés au cours de notre étude, se trouve en proportion très inférieure à celle caractérisant l'huile essentielle; en conséquence, les proportions de certains composés minoritaires de l'huile essentielle apparaissent ici plus importants.





**FIGURE 10:** Chromatogramme de la fraction volatile de l'extrait obtenu par épuisement des graines de coriandre dans le méthanol.

Une grande variabilité de la composition des produits recueillis dans la fraction volatile de l'extrait au tétrahydrofurane est observée, comparée à celle de l'huile essentielle produite lors de l'hydrodistillation. En revanche, la composition de cette dernière est comparable à celle de la fraction volatile de l'extrait alcoolique.

Ainsi, mis à part l'extrait au méthanol, les fractions volatiles des extraits produits par les autres solvants présentent des compositions très différentes de celle issue lors de l'hydrodistillation directe des graines.

Par ailleurs, du point de vue organoleptique, seul l'extrait obtenu au méthanol restitue fidèlement l'odeur caractérisant notre matériel végétal.

Dans une deuxième série d'essais, nous avons imaginé d'effectuer sur la matière végétale, préalablement épuisée par ces solvants, des hydrodistillations, selon le protocole expérimental précédemment établi.

L'analyse chromatographique des huiles essentielles ainsi récupérées, a donné des compositions chimiques regroupées dans le tableau.II-5.

L'examen de ce tableau montre que les huiles essentielles issues des graines, préalablement épuisées par le pentane et le tétrahydrofurane, présentent des compositions comparables à celle de l'huile essentielle produite par hydrodistillation directe du substrat végétal.

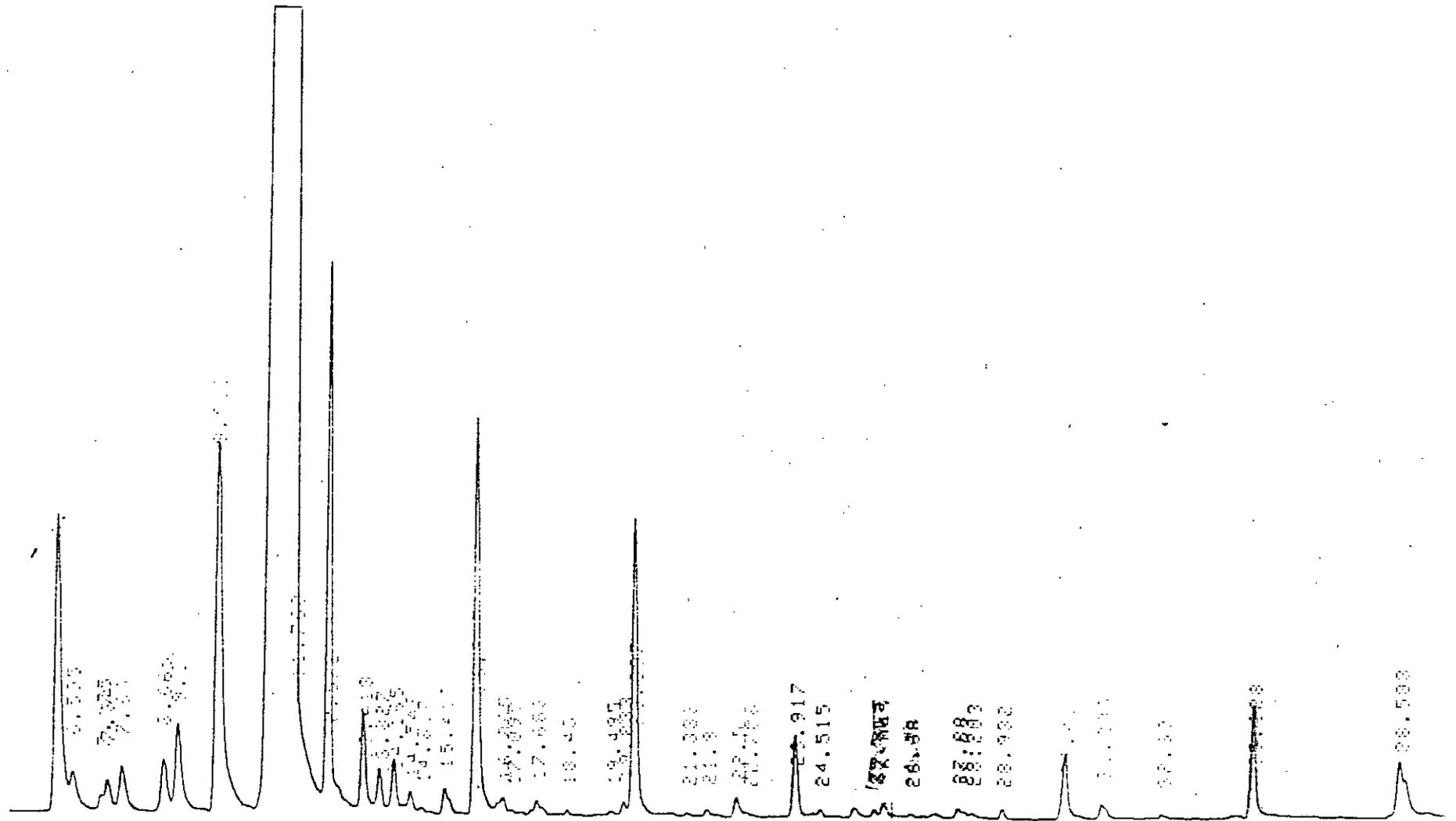
Notons que le linalol se trouve en proportions comparables dans les huiles essentielles issues de l'hydrodistillation des graines, traitées au préalable par le pentane et le tétrahydrofurane, et des graines non épuisées dans un solvant.

Par ailleurs, l'hydrodistillation des graines, préalablement traitées au méthanol, n'a pratiquement rien donné.

**TABLEAU.II-5:** Composition chimique des huiles essentielles récupérées par hydrodistillation des graines préalablement épuisées par les différents solvants.

Composés	Teneur relative (%)		
	Pentane	THF	Méthanol
$\alpha$ -pinène	0.31	0.31	--
myrcène	0.16	0.31	--
p-cymène	0.13	0.32	--
cinéol-1,8	0.21	0.58	--
$\gamma$ -terpinène	0.08	2.19	--
linalol	80.33	82.71	--
camphre	1.36	2.70	--
terpinène 4-ol	0.60	0.52	--
$\alpha$ -terpinéol	0.42	0.19	--
octanal	3.07	2.14	--
dodécane	0.53	0.15	--
acétate de géranyle	1.75	1.52	--
dodécanal	tr	0.02	--
$\beta$ -caryophyllène	0.24	0.03	--
$\alpha$ -humulène	0.33	0.44	--
nérolidol	0.15	0.07	--
acide myristique	4.04	0.64	--

Au terme de ces différents essais, nous tendons à privilégier la première des deux hypothèses: le linalol semble être localisé à l'intérieur de cellules végétales à parois cellulodiques de caractère hydrophile. Les solvants, de nature essentiellement lipidique, (pentane, tétrahydrofurane) s'avèrent être incapables de pénétrer dans ces cellules pour en extraire le composant; par contre, les solvants hydroxylés (eau, méthanol) sont capables de franchir la paroi cellulaire pour libérer le linalol.



**FIGURE 12:** *Chromatogramme de l'huile essentielle obtenue par hydrodistillation des graines de coriandre préalablement épuisées au tétrahydrofurane.*

Afin de conforter cette conclusion, nous avons réalisé un essai d'extraction des graines, préalablement broyées, au diméthylformamide. Cette opération a été suivie d'une hydrolyse à chaud du solvant chargé en extrait. Une extraction liquide-liquide par l'hexane a été enfin menée dans le but de récupérer les produits d'hydrolyse.

L'analyse par C.G. de l'extrait obtenu au diméthylformamide d'une part, et du produit de l'hydrolyse d'autre part, a donné des teneurs en linalol de l'ordre de 20% dans l'extrait avant hydrolyse et d'environ 82%, après hydrolyse de ce dernier. Ainsi, cette opération a eu pour effet d'augmenter considérablement la teneur en linalol dans l'extrait obtenu au diméthylformamide. Ce résultat implique que ce composant est présent dans cet extrait sous une forme combinée non volatile; il serait donc libéré de cette combinaison par hydrolyse. Nous aboutissons ainsi à une conclusion opposée à celle formulée précédemment, à savoir que le linalol semble être chimiquement lié à une phase non solubilisable par le pentane et le tétrahydrofurane.

## **CHAPITRE III:**

# **HYDRODISTILLATION**

	<i>Page</i>
<b>III.1 -      INCIDENCE DU BROYAGE DE LA MATIERE                   VEGETALE SUR LE RENDEMENT EN HUILE                   ESSENTIELLE _____</b>	<b>44</b>
<b>III.2 -      VARIATION DE LA COMPOSITION                   CHIMIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE EN                   FONCTION DE LA DUREE                   D'HYDRODISTILLATION _____</b>	<b>51</b>

L'hydrodistillation est utilisée dans de nombreux pays souvent de façon artisanale. L'opération est menée sous pression et parfois à pression atmosphérique. Le développement de cette technique revient aux grasseois qui l'ont améliorée et appliquée à la distillation de plusieurs plantes telles que l'iris et le clou de girofle [47].

De nos jours, ce mode d'extraction est réservé au dosage des huiles essentielles en laboratoire [48]. Toutefois, il présente quelques inconvénients [49], à savoir que:

- certaines substances sont altérées à température élevée en présence d'eau.
- certains constituants des essences, solubles dans l'eau, ne se trouveront pas dans l'essence ou tout au moins n'y seront que partiellement représentés.

Afin de disposer d'informations cinétiques sur le procédé d'hydrodistillation des graines de coriandre, nous nous sommes intéressés, au cours de cette étude, à suivre l'évolution du rendement en huile essentielle en fonction de la durée d'extraction et ce, pour différentes granulométries du substrat végétal. Aussi, l'évolution de la composition chimique de certains composés de l'huile essentielle, au cours du traitement, a été envisagée.

### **III.1 - INCIDENCE DU BROYAGE DE LA MATIÈRE VÉGÉTALE SUR LE RENDEMENT EN HUILE ESSENTIELLE**

Dans le but d'étudier l'influence de la taille des particules de la matière végétale sur la cinétique d'hydrodistillation, nous avons suivi l'évolution du rendement  $R_H$  en huile essentielle en fonction de la durée  $t$  d'extraction et ce, pour:

- des graines entières (diamètre moyen = 4mm),
- des graines concassées (broyage grossier et diamètre moyen = 2mm),
- des graines réduites en poudre (broyage fin et diamètre moyen inférieur à 0.2mm).

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

- Masse de matière végétale  $M$ : 60g.
- Débit de vapeur d'eau  $D$ : 3.8 ml/min.
- Taux d'humidité  $H$ : 9.5%.

Le taux d'humidité de la matière végétale a été déterminé par la méthode de Dean et Stark [50].

Des essais préliminaires ont montré que la durée d'hydrodistillation des graines de coriandre est longue. Celle-ci a été fixée à 9 heures.

Les rendements  $R_H$  en huile essentielle récupérée, exprimés en pour cent (%), ont été calculés par la relation suivante:

$$R_H = \frac{m_{HE}}{M} \times 100 \quad (1)$$

dans laquelle  $m_{HE}$  désigne la masse d'huile essentielle récupérée et  $M$ , la masse de matière végétale sèche.

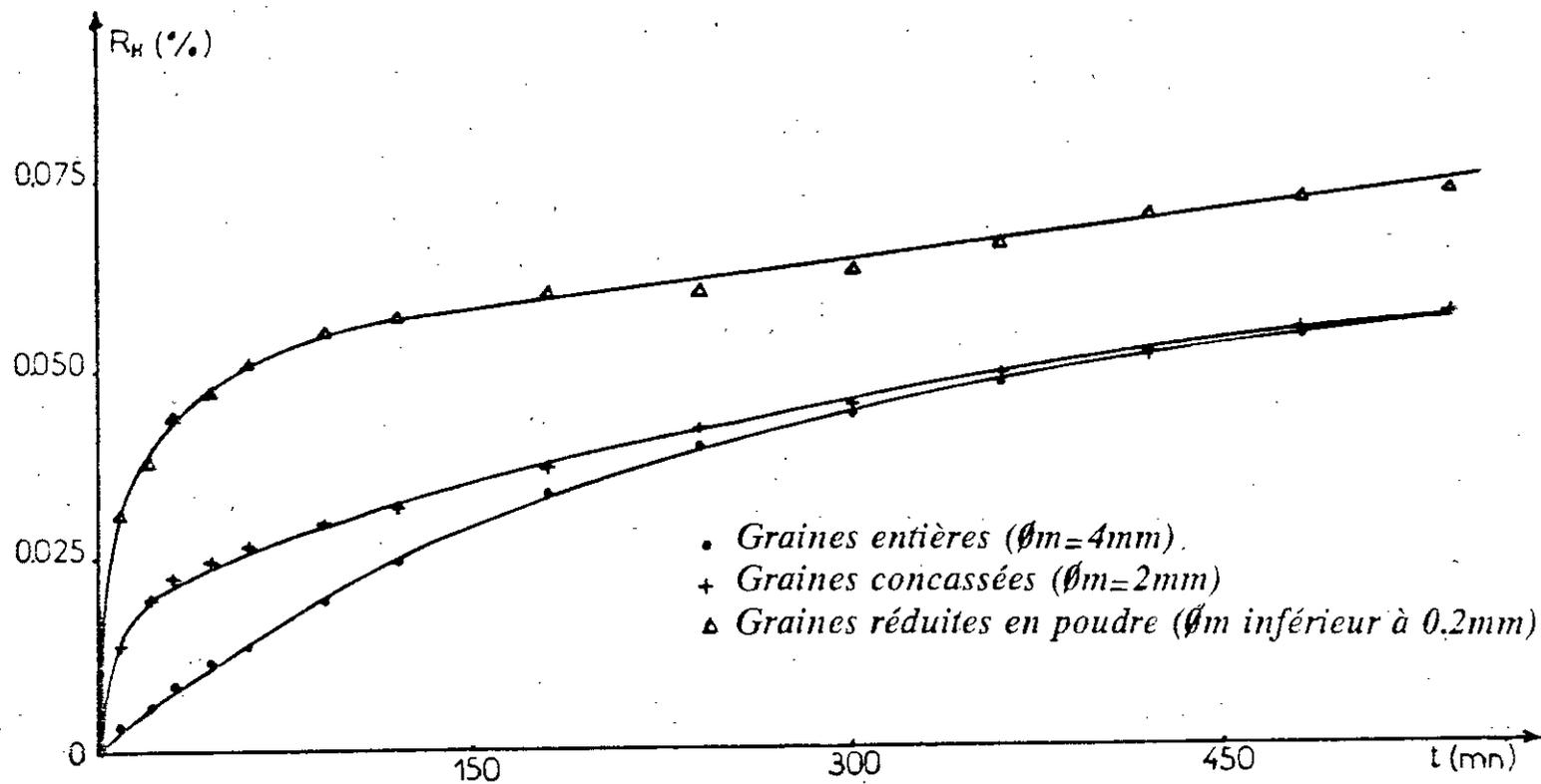
Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau III-1 suivant:

**TABLEAU.III-1: Rendements  $R_{11}$  en huile essentielle obtenus lors de l'hydrodistillation des graines de coriandre de Sétif (Algérie) pour trois granulométries différentes.**

Temps (mn)	Rendements $R_{11}$ (%)		
	Graines entières	Graines concassées	Graines réduites en poudre
10	0.0036	0.0145	0.0314
20	0.0064	0.0198	0.0380
30	0.0086	0.0228	0.0440
45	0.0120	0.0250	0.0471
60	0.0141	0.0270	0.0510
90	0.0200	0.0300	0.0550
120	0.0250	0.0320	0.0575
180	0.0340	0.0370	0.0600
240	0.0400	0.0420	0.0608
300	0.0443	0.0456	0.0630
360	0.0485	0.0490	0.0663
420	0.0520	0.0510	0.0701
480	0.0543	0.0552	0.0720
540	0.0566	0.0567	0.0729

L'examen de ce tableau montre que le rendement en huile essentielle est affecté par le broyage du substrat végétal. En effet, les graines réduites en poudre conduisent à un meilleur rendement que celles entières ou concassées. Ceci peut être attribué au fait que la surface d'échange offerte par les premières est plus importante.

La figure 13, montrant l'évolution du rendement  $R_{11}$  en huile essentielle en fonction de la durée  $t$  d'extraction pour les trois granulométries, illustre l'effet prépondérant de ce paramètre.



**FIGURE 13:** Evolution du rendement  $R_H$  de l'huile essentielle extraite par hydrodistillation en fonction du temps.

Ces courbes indiquent en effet, que l'efficacité de l'extraction est d'autant meilleure que la granulométrie est faible. Ainsi, pour une durée de traitement de deux heures, près de 80% d'huile essentielle est récupérée pour les graines réduites en poudre; ce taux d'extraction est de 50% pour les graines concassées et de 46% à défaut de broyage.

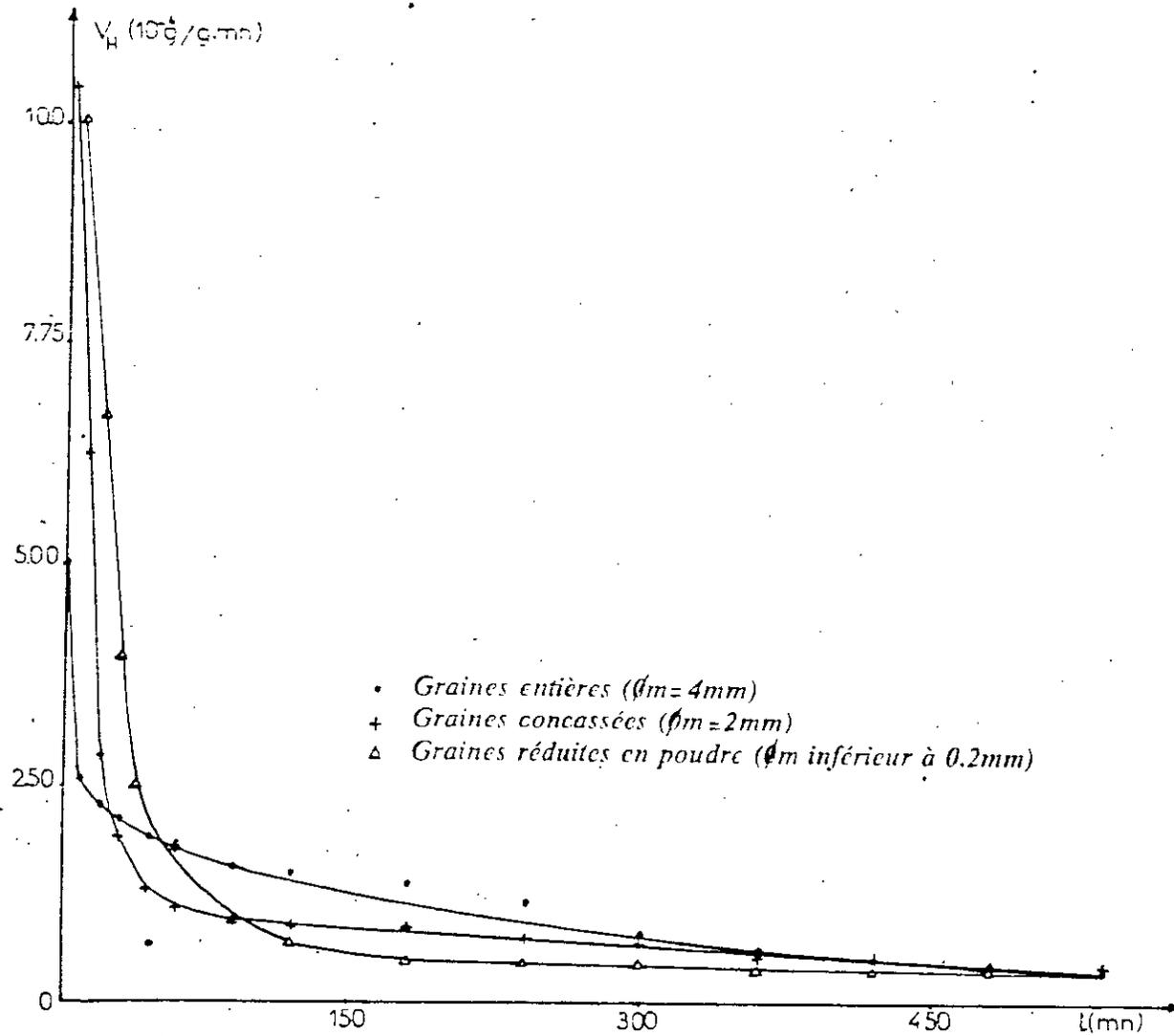
Notons également que le concassage des graines influe sur le rendement en huile, durant les trois premières heures de traitement et qu'au-delà, les courbes cinétiques relatives aux graines entières et aux graines concassées se confondent.

Par ailleurs, la figure 14 traduisant les variations des vitesses  $v_{II}$  instantanées, déterminées par le calcul des pentes des tangentes aux courbes, obtenues précédemment, en fonction de la durée  $t$  d'hydrodistillation, révèle, dans les trois cas, une diminution fortement prononcée de la vitesse durant la première demi-heure d'extraction. Cette diminution est d'autant plus importante que la granulométrie de la matière végétale est faible.

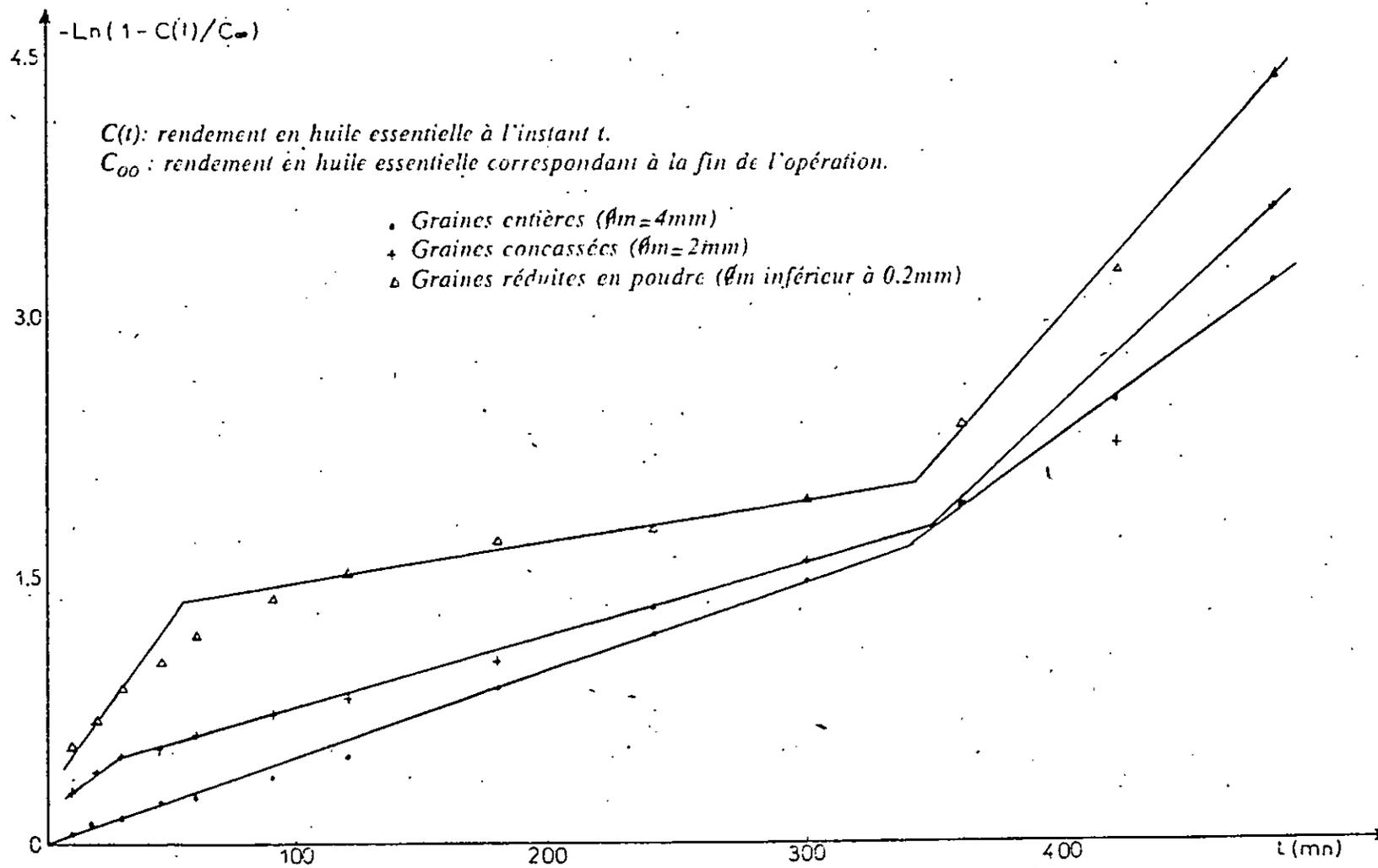
Nous remarquons également qu'au delà de la deuxième heure, la vitesse d'extraction est la plus faible dans le cas des graines pulvérisées. Par contre, elle reste relativement considérable pour les graines entières. En revanche, cette vitesse présente une variation intermédiaire dans le cas des graines concassées. Ainsi, trois heures de traitement des graines réduites en poudre s'avèrent être largement suffisantes pour récupérer la majeure partie de l'huile essentielle.

D'après les résultats obtenus, il est recommandé d'exercer un broyage fin de la matière végétale, préalablement à son hydrodistillation. Ce prétraitement permet de réduire la durée d'extraction et de minimiser ainsi le coût de l'opération.

Par ailleurs, les résultats de cette étude peuvent nous informer sur les étapes du processus d'hydrodistillation. En effet, l'allure des courbes de la figure 14 montre qu'elles sont constituées de deux branches décroissantes à tendance linéaire, raccordées entre elles par une partie curviligne. Ce comportement laisse supposer que l'hydrodistillation est régie, au moins, par deux lois physiques.



**FIGURE 14:** Evolution de la vitesse  $v_H$  d'extraction par hydrodistillation en fonction de la durée  $t$  de traitement.



**FIGURE 15:** Application du modèle du premier ordre, à la cinétique d'hydrodistillation.

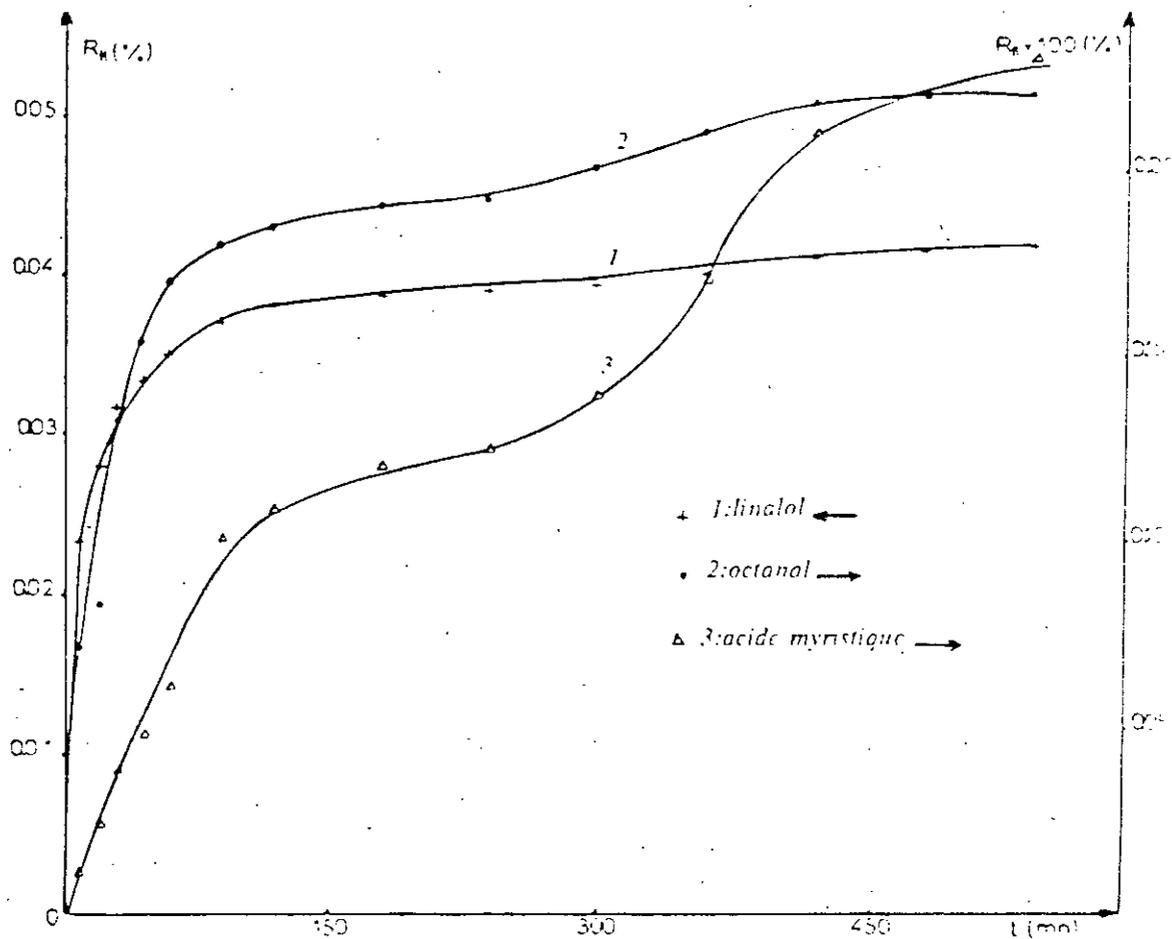
### III.2 - VARIATION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DE L'HUILE ESSENTIELLE EN FONCTION DE LA DUREE D'HYDRODISTILLATION

Afin d'observer la variation de la composition chimique de l'huile essentielle avec la durée d'extraction, nous avons analysé par C.G. les différents échantillons récupérés, lors de l'étude cinétique de l'hydrodistillation des graines réduites en poudre. Cette série d'analyses nous a permis de représenter sur la figure 16, l'évolution du rendement  $R_{ii}$ , au cours de l'extraction, de trois constituants majoritaires de l'huile essentielle, en l'occurrence, le linalol, l'octanal et l'acide myristique.

Les rendements  $R_{ii}$ , présentés sur le tableau III-2, expriment le rapport des masses de constituant considéré et de matière végétale utilisée.

**TABLEAU.III-2:** Evolution des rendements  $R_{ii}$  des composés majoritaires de l'huile essentielle au cours de l'hydrodistillation des graines de coriandre réduites en poudre.

Temps (mn)	Rendements $R_{ii}$ ( $10^{-4}$ g/g)		
	Linalol	Octanal	Acide myristique
10	2.313	0.071	0.011
20	2.812	0.083	0.023
30	3.221	0.133	0.037
45	3.354	0.153	0.048
60	3.533	0.170	0.060
90	3.698	0.180	0.100
120	3.843	0.185	0.108
180	3.909	0.191	0.120
240	3.925	0.193	0.124
300	3.948	0.200	0.138
360	4.011	0.210	0.170
420	4.098	0.218	0.210
480	4.113	0.221	0.211
540	4.205	0.221	0.231

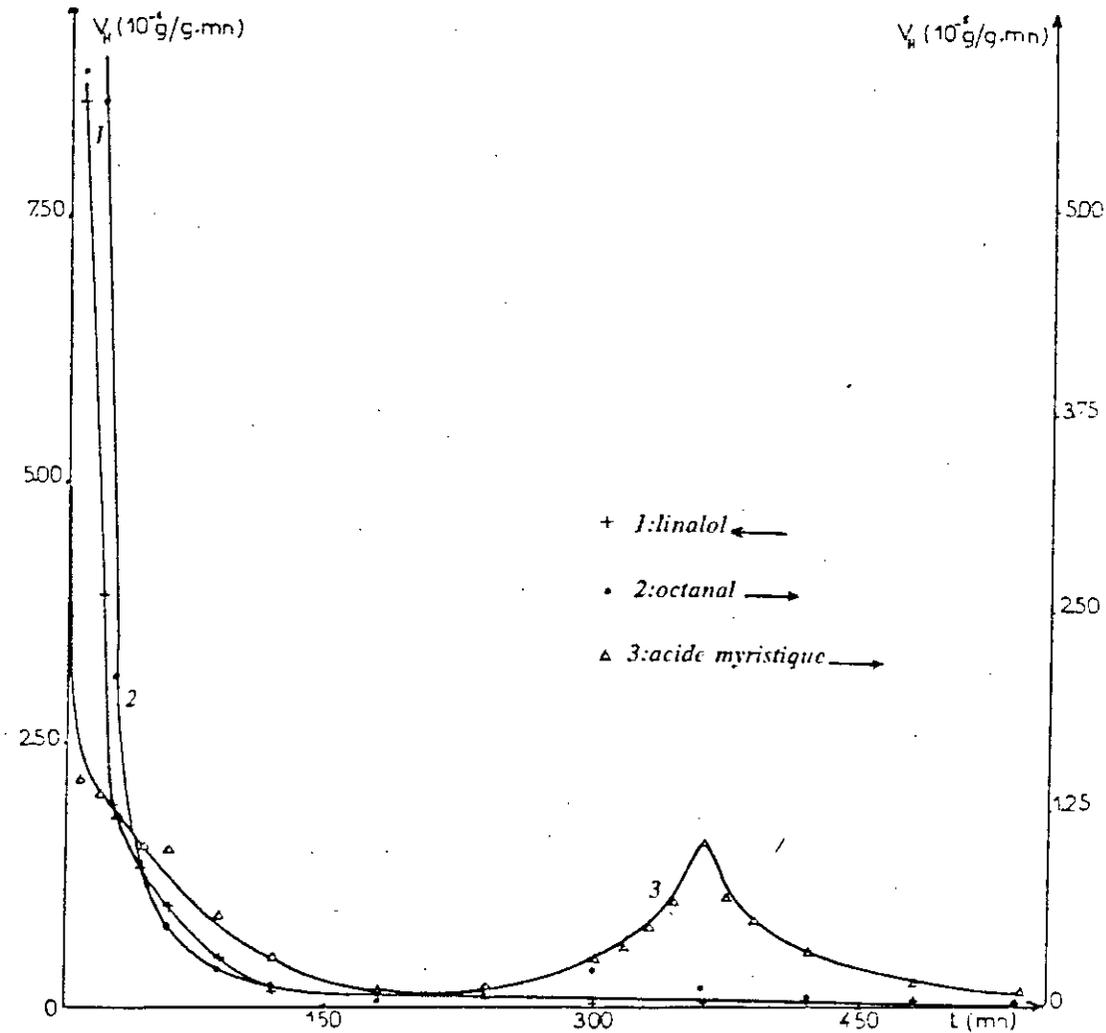


**FIGURE 16:** Evolution des rendements en certains constituants majoritaires de l'huile essentielle extraite par hydrodistillation en fonction du temps.

Par ailleurs, nous avons déterminé les vitesses instantanées  $v_{II}$  d'extraction de ces composés; le tableau.III-3 et la figure 17 donnent l'évolution de ces vitesses en fonction de la durée  $t$  de traitement.

**TABLEAU.III-3: Evolution des vitesses  $v_{II}$  d'extraction des composés majoritaires de l'huile essentielle au cours de l'hydrodistillation des graines de coriandre réduites en poudre.**

Temps (mn)	vitesses $v_{II}$ ( $10^{-5}$ g/g.mn)		
	Linalol	Octanal	Acide myristique
10	86.35	5.92	1.43
20	39.51	5.72	1.33
30	19.05	2.10	1.19
45	9.52	0.90	1.01
60	4.75	0.51	0.98
90	1.49	0.23	0.57
120	1.03	0.13	0.32
180	0.51	0.07	0.12
240	0.50	0.08	0.13
300	0.50	0.23	0.30
360	0.50	0.13	1.05
420	0.50	0.08	0.38
480	0.50	0.07	0.17
540	0.50	0.07	0.13



**FIGURE 17:** *Evolution de la vitesse d'extraction de certains constituants majoritaires de l'huile essentielle extraite par hydrodistillation en fonction du temps*

L'allure générale des courbes rendements et vitesses de distillation montre que le linalol, constituant majoritaire de l'huile essentielle, est récupéré durant les trois premières heures d'extraction. Par contre, l'acide myristique continue à être distillé au-delà de 9 heures de traitement. L'octanal, quant à lui, présente un comportement intermédiaire.

Par ailleurs, l'examen des courbes rendement et vitesse de distillation de l'acide myristique, laisse supposer que ce dernier se trouve localisé dans deux sites différents au sein de la matière végétale. En effet, l'augmentation de la vitesse de distillation de ce constituant au-delà de cinq heures de traitement ne s'explique que par le fait qu'il serait présent dans des ramifications des canaux sécréteurs d'huile, difficilement accessibles à la vapeur d'eau.[51]

## **IV.1 - PLANIFICATION FACTORIELLE DES EXPERIENCES**

La mise en modèle des processus, est une opération très importante en génie des procédés et répond à plusieurs objectifs dont l'importance relative dépend du phénomène étudié.

Un modèle est la représentation plus ou moins approchée d'un processus, il est dit mathématique, lorsque l'ensemble du processus soumis à l'examen est décrit, de manière simplifiée, au moyen d'un ensemble d'équations mathématiques.

Une fois établi, le modèle peut rendre compte du comportement du système. Il permet de faire des prévisions, de formuler des recommandations; il ouvre donc la voie aux problèmes de l'optimisation [53].

L'établissement d'un modèle, aussi simple soit-il, requiert des résultats expérimentaux, et le problème est d'en connaître le nombre, la précision et la localisation des résultats nécessaires à l'établissement du modèle.

Le plan d'expériences consiste à réaliser une série d'essais selon un programme systématique permettant d'aboutir à l'élaboration d'un modèle mathématique moyennant le minimum d'essais [53,54].

### **IV.1.1 - Méthodologie**

L'un des plans les plus utilisés est le plan factoriel à deux niveaux, dit aussi plan factoriel  $2^n$ , qui trouve une application très générale pour l'établissement des modèles formels. Un tel plan nécessite  $2^n$  essais, correspondant au total des combinaisons des  $n$  variables. Afin de simplifier l'écriture de toutes les combinaisons, on définit généralement un nouveau système de coordonnées qui a pour origine l'intersection des valeurs moyennes entre les deux niveaux de chaque variable. Le domaine expérimental

où:

$$Mm = \frac{M_1 + M_2}{2} = \frac{40 + 80}{2} = 60g \quad (5)$$

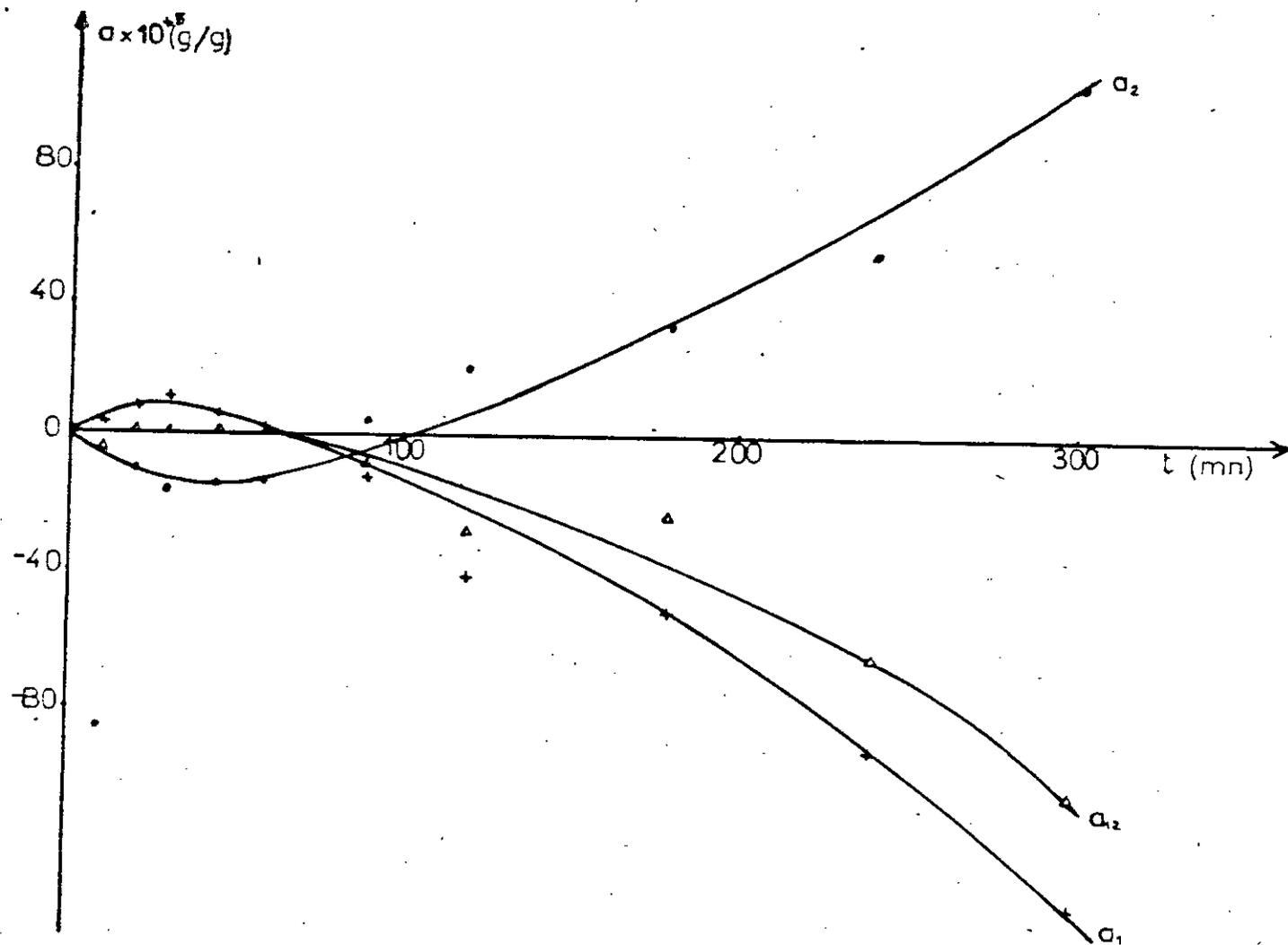
$$Dm = \frac{D_1 + D_2}{2} = \frac{3.8 + 13.5}{2} = 8.65 \text{ml/mn} \quad (6)$$

$$\Delta M = \frac{M_2 - M_1}{2} = \frac{80 - 40}{2} = 20g \quad (7)$$

$$\Delta D = \frac{D_2 - D_1}{2} = \frac{13.5 - 3.8}{2} = 4.85 \text{ml/mn} \quad (8)$$

Le domaine expérimental est alors décrit dans un repère orthonormé à deux dimensions, correspondant aux variables réduites  $X_1$  et  $X_2$ , par un carré centré à l'origine des axes qui coïncide en variables réelles à  $Mm$  et  $Dm$ .

Les résultats issus de la planification factorielle des expériences sont présentés dans le tableau.IV-3.



**FIGURE 20:** Evolution des effets individuels et conjugués de la masse de matière végétale (1) et du débit de vapeur d'eau (2) sur le rendement  $R_E$  en fonction de la durée de traitement.

La figure 20, traduisant l'évolution des effets individuels et conjugué de la masse de matière végétale et du débit de vapeur d'eau, en fonction de la durée  $t$  d'extraction; sur le rendement  $R_E$  en huile essentielle, montre que l'effet individuel de la masse (1) de substrat végétal est positif et croissant durant la première demi-heure, puis décroît pour devenir négatif au-delà d'une heure. D'autre part, l'augmentation du débit de vapeur (2) a une influence négative sur le rendement  $R_E$  en début d'extraction; cet effet devient ensuite positif et croissant au-delà d'une heure et demie de traitement. Enfin, l'effet conjugué des deux paramètres opératoires (1) et (2) sur le rendement en extrait est nul en début d'opération puis devient négatif et décroissant au-delà d'une heure et demie de traitement.

A la lumière de ces résultats, nous pouvons conclure, qu'une programmation croissante du débit de vapeur d'eau, paraît être avantageuse car elle permet d'une part, de minimiser la quantité de vapeur d'eau et d'autre part d'améliorer le rendement en huile essentielle récupérée.

#### *IV.3.2 - Effets individuels et conjugué des paramètres opératoires sur la vitesse d'entraînement*

De la même manière que pour la détermination des effets individuels et conjugué de la masse de matière végétale et du débit de vapeur d'eau, sur le rendement en huile essentielle, nous nous sommes intéressés, dans cette partie de l'étude, à la détermination de ces mêmes effets sur la vitesse instantanée  $v_E$  d'extraction.

Dans ce cas l'expression polynomiale s'écrit:

$$v_E = v_{E_0} + b_1 X_1 + b_2 X_2 + b_{12} X_1 X_2 \quad (18)$$

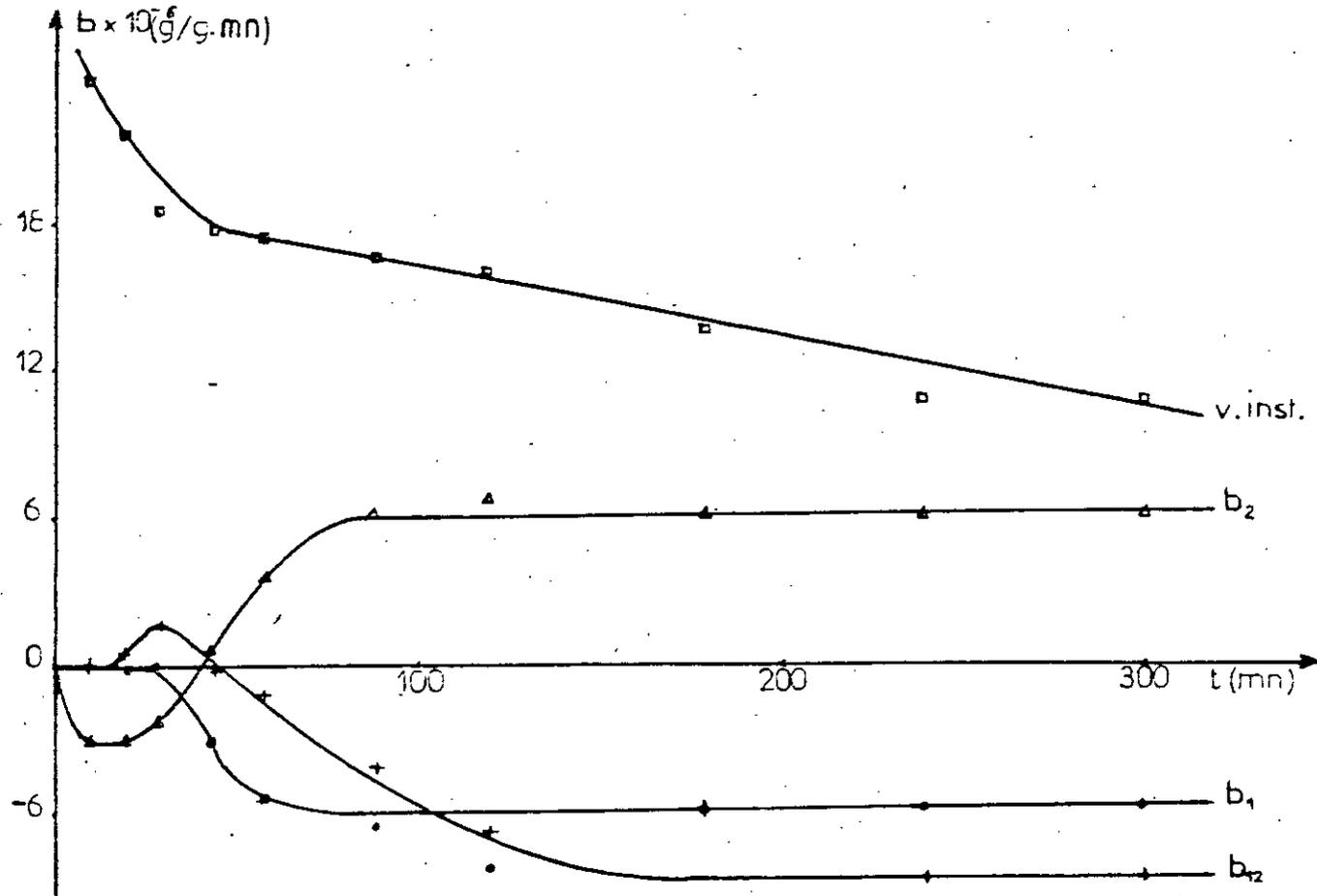
où  $v_{E0}$  représente la moyenne arithmétique des vitesses,  $b_1$  et  $b_2$  sont les coefficients relatifs aux effets individuels de la masse de matière végétale et du débit de vapeur d'eau respectivement, et  $b_{12}$  leur effet conjugué.

Les valeurs des coefficients du polynôme (18), calculées pour différentes durées d'extraction sont regroupées dans le tableau.IV-6.

**TABEAU.IV-6: Effets des paramètres opératoires sur la vitesse d'entraînement de l'huile essentielle.**

<b>t (mn)</b>	<b>V<sub>E0</sub></b> (10 <sup>-3</sup> g/g.mn)	<b>b<sub>1</sub></b> (10 <sup>-6</sup> g/g.mn)	<b>b<sub>2</sub></b> (10 <sup>-6</sup> g/g.mn)	<b>b<sub>12</sub></b> (10 <sup>-6</sup> g/g.mn)
10	+ 21.3	+ 3.1	- 5.6	+ 2.2
20	+ 20.9	+ 0.5	- 3.4	+ 1.7
30	+ 19.8	- 0.9	- 0.9	+ 1.0
45	+ 18.7	- 3.8	+ 1.6	- 0.9
60	+ 17.6	- 5.1	+ 3.6	- 1.1
90	+ 16.4	- 6.3	+ 5.8	- 4.0
120	+ 16.0	- 8.8	+ 7.3	- 6.9
180	+ 13.2	- 5.2	+ 5.6	- 5.6
240	+ 10.6	- 6.0	+ 5.6	- 8.9
300	+ 10.8	- 6.0	+ 5.5	- 8.9

Sur la figure 21, nous avons représenté l'évolution des effets individuels et conjugué de la masse de matière végétale (1) et du débit de vapeur (2) sur la vitesse d'entraînement  $v_E$  en fonction de la durée  $t$  de traitement. Nous remarquons que l'augmentation de la masse (1) de la matière végétale influe négativement sur la vitesse d'extraction. Cette influence négative augmente avec le temps jusqu'à une durée d'une heure et demie de traitement. Au-delà de ce temps, l'évolution de cet effet devient constante. D'autre part, nous constatons que l'augmentation du débit de vapeur (2) influe négativement sur la vitesse  $v_E$  d'extraction, durant les 45 premières minutes, puis positivement, jusqu'à une durée d'une heure et demie de traitement. L'effet de ce paramètre devient ensuite constant.



**FIGURE 21:** Evolution des effets individuels et conjugués de la masse de matière végétale (1) et du débit de vapeur d'eau (2) sur la vitesse  $v_D$  en fonction de la durée d'entraînement.

Enfin, l'effet conjugué de ces deux paramètres opératoires sur la vitesse  $v_E$  d'extraction est négatif en-deça de deux heures d'entraînement à la vapeur d'eau. Au-delà de ce temps, l'évolution de cet effet conjugué devient constante.

A la lumière des résultats obtenus, nous pouvons conclure qu'à partir d'environ deux heures de traitement de la matière végétale, les effets individuels et conjugué, des deux paramètres étudiés, sur la vitesse du processus d'entraînement à la vapeur d'eau peuvent-être considérés constants.

Sachant que l'augmentation du débit de vapeur n'a une influence positive sur le rendement en huile essentielle qu'au-delà d'une heure et demie de traitement, le fait d'opérer en progression de ce paramètre opératoire semble être économique. Ainsi, l'utilisation de débits relativement faibles, en début de processus, minimise l'influence négative de ce paramètre sur le rendement. Au-delà d'une heure et demi d'entraînement, nous pouvons envisager l'utilisation de débits plus importants car, dans ce cas, l'influence du débit de vapeur d'eau sur le rendement en huile essentielle est positive.

L'extraction des plantes aromatiques par solvants organiques volatils est assurément une activité ancienne. Appliquée pour la première fois, en 1839 par Robiquet [57] à la récupération des produits aromatiques du narcisse, cette technique a vu son champ d'utilisation s'élargir.

Ce procédé d'extraction est, de nos jours, le moyen le plus efficace pour obtenir des huiles aussi bien végétales qu'animales.

Obtenus dans des conditions moins agressives, les extraits récupérés par cette technique 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'ils renferment. Par conséquent, ces extraits trouvent un domaine d'application très vaste en médecine, en cosmétique et dans l'industrie alimentaire [58].

La mise en oeuvre de l'extraction par solvant de ces produits naturels est affectée par plusieurs facteurs parmi lesquels, nous citons:

- la nature de la matière végétale;
- la durée d'extraction;
- la nature du solvant;
- l'hydromodule;
- la température;
- le degré de division de la matière végétale [59].

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude de l'influence sur le rendement de trois de ces paramètres en l'occurrence, la nature du solvant, le degré de division de la matière végétale et la durée d'extraction:

## V.1 - INFLUENCE DE LA NATURE DU SOLVANT SUR LE RENDEMENT EN EXTRAIT

Si l'extraction par solvants est, de nos jours, le procédé le plus usité, il n'en demeure pas moins que le choix du solvant approprié est souvent délicat, vu les critères auxquels il doit répondre. En effet, le solvant doit être chimiquement inerte à l'égard des extraits et de l'appareillage. Il doit posséder une grande capacité de dissolution, une température d'ébullition peu élevée, une faible viscosité et être, si possible, non toxique, ininflammable et non explosif [44].

Afin d'étudier l'influence de la nature du solvant sur le rendement  $R_C$  en extrait, nous avons effectué des extractions moyennant trois solvants différents, en l'occurrence, le pentane, le tétrahydrofurane et le méthanol et ce, en traitant chaque fois 30 grammes de graines entières dans un extracteur de type Soxhlet.

Le taux d'humidité de la matière végétale a été évalué au préalable à 9.6%.

Dans une seconde série d'essais, nous avons pensé à effectuer sur la matière végétale, préalablement épuisée par ces solvants, des hydrodistillations en vue d'extraire d'éventuelles huiles essentielles.

Le tableau.V-1 présente les rendements  $R_C$  en extrait et  $R_H$  en huile essentielle, obtenus lors de ces expérimentations.

**TABLEAU.V.1:** Rendements en extraits et en huiles essentielles obtenus à l'issue des extractions par différents solvants, et d'hydrodistillations menées sur les graines entières de coriandre déjà épuisées.

Nature du solvant	Rendement $R_C$ en extrait (%)	Rendement $R_H$ en huile essentielle (%)
Pentane	3.20	0.04
Tétrahydrofurane	7.80	0.04
Méthanol	8.23	0

L'examen de ce tableau, montre que le rendement  $R_C$  en extrait varie de 3.20% pour le pentane à 8.23% pour le méthanol. Ce dernier présente une grande affinité pour les produits lourds contenus dans la matière végétale (cires et résines).

Ainsi, la comparaison de ces rendements est peu significative à cause de la sélectivité des différents solvants. Cependant, il reste que le choix de celui-ci repose, en premier lieu, sur l'usage auquel est destiné l'extrait.

Par ailleurs, du point de vue olfactif, notons que seul l'extrait alcoolique reflète fidèlement l'odeur de la matière végétale. En effet, l'hydrodistillation, suivant l'épuisement des graines dans les solvants précités, a fait état d'un rendement pratiquement nul dans le cas du méthanol, et de rendements comparables à ceux obtenus par hydrodistillation directe des graines, lors des traitements par le pentane et le tétrahydrofuranne.

Ces résultats viennent conforter ceux auxquels nous avons abouti lors de notre étude analytique, à savoir que le linalol, constituant majoritaire de l'huile essentielle, se trouverait lié chimiquement à une matrice, non solubilisable dans le pentane et le tétrahydrofuranne, au sein du végétal. Nous pouvons ainsi penser que le linalol libre est produit lors de l'hydrodistillation, de l'entraînement à la vapeur d'eau et de l'extraction par le méthanol, selon un processus d'hydrolyse ou d'alcoolyse.

## V.2 - *INFLUENCE DU BROYAGE SUR LE RENDEMENT EN EXTRAIT*

Il est généralement admis que le transfert de la matière à extraire est favorisée lorsque la surface d'échange entre le solvant et le végétal est grande. Dans le cas de l'extraction solide-liquide, la division, voir le broyage du solide, est d'usage.

Cependant, pour l'extraction des concrètes, il est indispensable de savoir où se situent les dépôts d'essence avant d'envisager une division de la matière végétale. Cette dernière est recommandée pour l'extraction des végétaux dont les dépôts sont endogènes car elle permet au solvant de les atteindre rapidement. Par contre, pour les végétaux à dépôts exogènes, un découpage très fin ou un broyage sont à éviter car ils provoquent la destruction du cuticule et la perte de l'huile essentielle [57].

Afin de déterminer l'influence du broyage sur le rendement  $R_C$  en extrait, nous avons effectué, dans les mêmes conditions opératoires précédentes, des extractions, en utilisant, dans ce cas, des graines réduites en poudre.

Les rendements  $R_C$  obtenus sont présentés dans le tableau.V-2 suivant:

**TABLEAU.V.2: Influence du broyage des graines de coriandre sur le rendement  $R_C$  en extraits, lors de l'extraction par solvants volatils.**

Nature du solvant	Rendement $R_C$ en extraits(%)	
	Graines entières	Graines réduites en poudre
pentane	3.20	17.1
Tétrahydrofuranne	7.80	28.7
Méthanol	8.23	32.1

L'examen de ce tableau montre que les rendements  $R_C$  en extraits sont nettement améliorés par le broyage. Ainsi, la réduction préalable des graines en poudre a pour effet d'augmenter l'efficacité de l'extraction, ce qui était prévisible, vu l'augmentation de la surface d'échange et la localisation des organes sécréteurs d'essence dans le fruit de coriandre.

Par ailleurs, l'analyse par chromatographie en phase gazeuse des fractions volatiles des extraits obtenus par épuisement des graines réduites en poudre et des graines entières au pentane, a donné des chromatogrammes similaires. Ainsi, ces résultats montrent que le broyage du substrat végétal a une influence significative sur le rendement  $R_C$  en composés lipidiques non volatilisables, mais ne présente aucune incidence sur la composition chimique des fractions volatiles [60].

### V.3 - CINÉTIQUE D'EXTRACTION PAR SOLVANT VOLATIL

L'extraction par solvants des matières végétales est un processus assez complexe, basé sur les phénomènes de transfert de matière.

Par rapport à son comportement vis à vis du solvant d'extraction, un substrat végétal peut être divisé en quatre éléments suivants [61]:

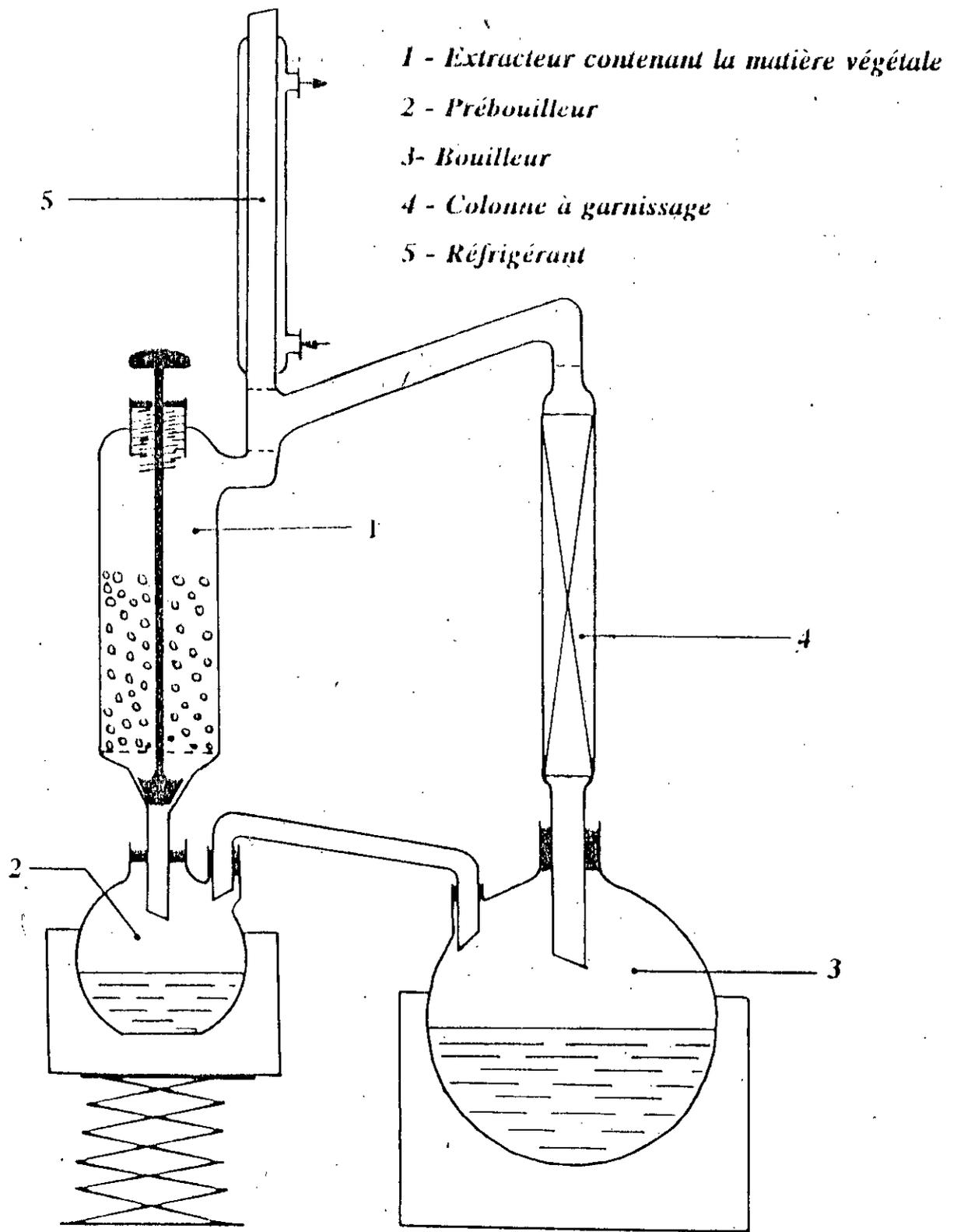
- une partie solide non extractible, jouant le rôle de support inerte du soluté et donc non concerné directement par le processus d'extraction,
- une partie extractible, contenant outre le soluté désiré, d'autres produits,
- l'eau libre,
- l'air interstitiel.

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.

En étudiant en détail l'extraction par solvant des matières oléagineuses, Angelidis et coll.[62] décrivent le mécanisme de l'extraction en trois étapes:

- la première phase correspond à la pénétration du solvant dans le tissu végétal et dissolution de l'huile, située à la surface et à son voisinage immédiat,
- la seconde étape est contrôlée par la diffusion de l'huile à l'intérieur des pores, lesquels entre temps ont été remplis par le solvant,
- la troisième étape consiste en la diffusion de la solution au contact du solide vers la masse restante du solvant.

Afin de disposer d'informations cinétiques sur l'extraction par solvant des graines de coriandre, nous avons suivi l'évolution du rendement  $R_c$  en extrait en fonction de la durée de contact solvant-matière végétale et ce, pendant 6 heures, au moyen du dispositif expérimental schématisé sur la figure 22.



**FIGURE 22:** Schéma du dispositif expérimental de l'extraction par circulation continue du solvant.

Les conditions opératoires sont les suivantes:

- masse de matière végétale  $M = 60$  grammes de graines entières,
- solvant d'extraction : tétrahydrofuranne,
- taux d'humidité  $H = 9.6\%$ ,
- débit de solvant  $D = 20$  ml/mn.

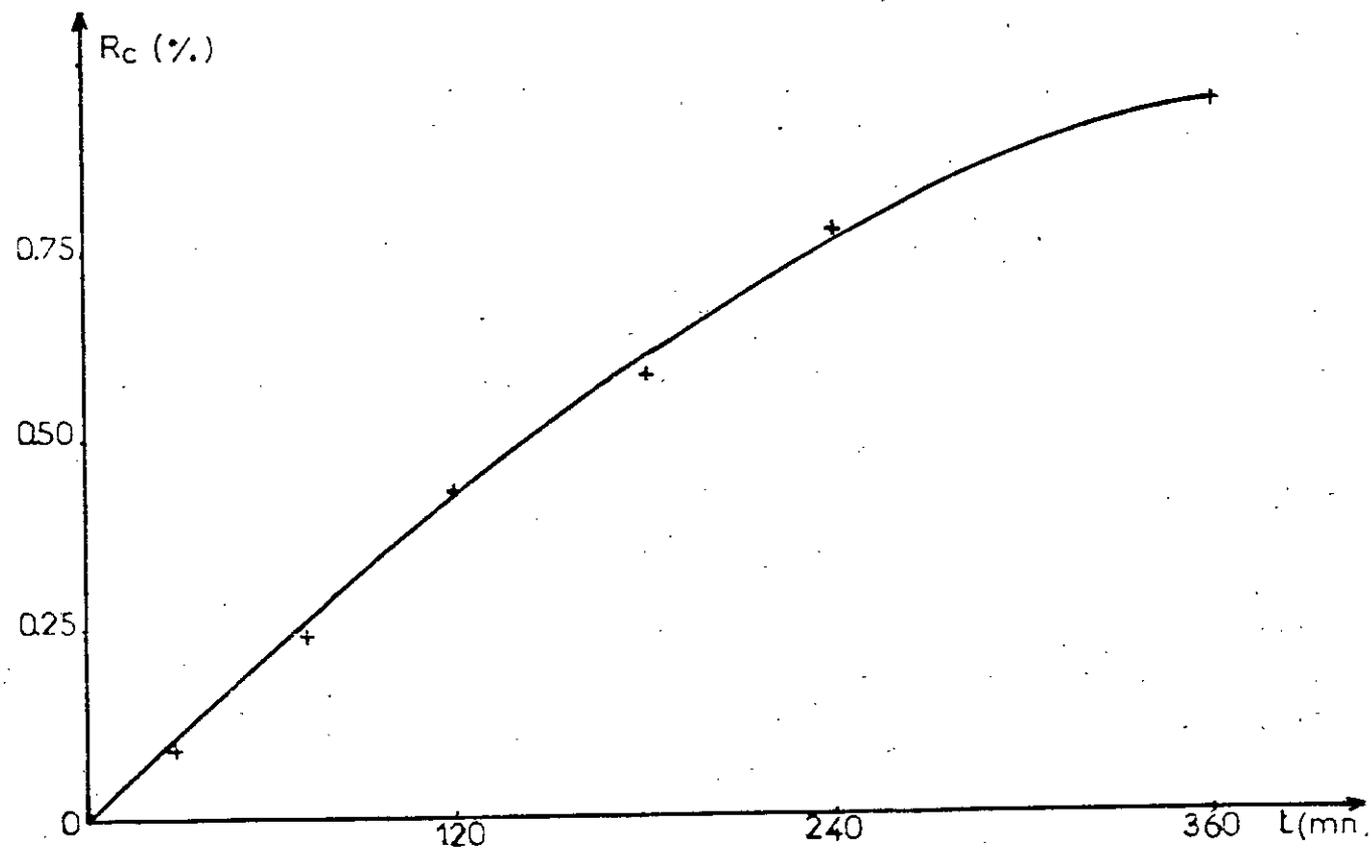
La matière végétale, placée dans une colonne en verre (diamètre = 8cm, longueur = 40cm) munie d'un système de réglage de débit de solvant, est immergée dans ce dernier. La colonne surmonte un ballon de recette, relié à un système de distillation et de régénération de solvant. L'extracteur est alimenté, continuellement, par du solvant frais et la miscella est distillée également, de façon continue, permettant ainsi de minimiser la quantité de solvant à utiliser.

Les extraits, récupérés à intervalles de temps réguliers, sont ensuite traités dans un évaporateur rotatif sous vide afin qu'ils soient exempts de solvant.

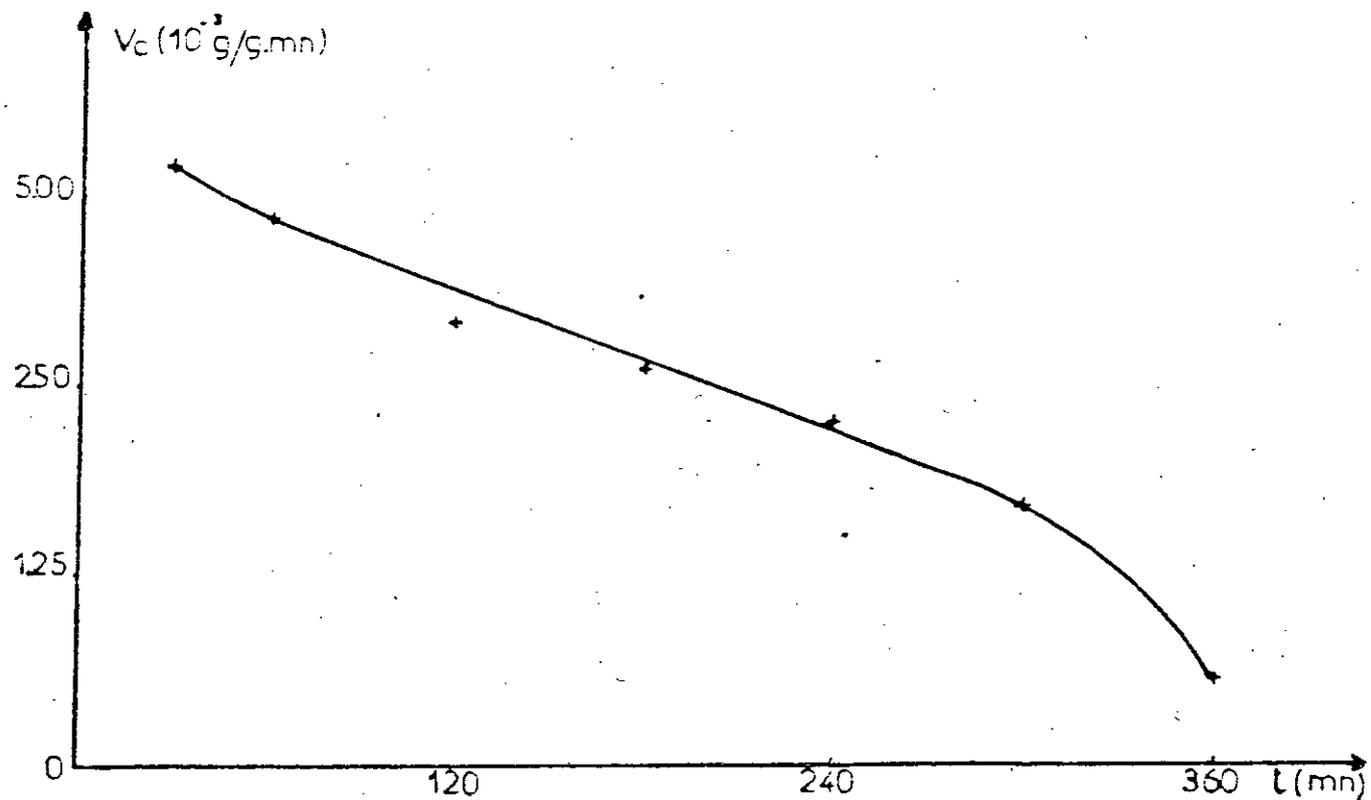
Le tableau.V-3 présente les résultats obtenus, lors de ces expérimentations.

**TABLEAU.V.3: Evolution du rendement  $R_c$  en extrait en fonction de la durée  $t$  d'extraction, par circulation continue du tétrahydrofuranne.**

Durée de traitement (mn)	Rendement en extrait $R_c$ (%)
30	0.09
60	0.24
120	0.43
180	0.58
240	0.77
360	0.93



**FIGURE 23:** Evolution du rendement  $R_c$  en extrait en fonction de la durée de traitement des graines entières de coriandre par le tétrahydrofuranne.



**FIGURE 24:** Evolution de la vitesse  $v_c$  d'extraction de l'extrait en fonction de la durée de traitement des graines entières de coriandre par le tétrahydrofurane.

L'évolution du rendement  $R_C$  en extrait en fonction de la durée  $t$  de traitement, illustrée par la figure 23, montre que la matière végétale n'a pas été totalement épuisée par le solvant, du moment que le palier n'est pas atteint au bout de cette durée d'extraction. En effet, au bout de 6 heures d'extraction, le rendement en extrait n'est que de 0.93%, alors que l'épuisement au Soxhlet, conduit à un rendement nettement plus important, de 7.80%.

Par ailleurs, l'évolution de la vitesse  $v_C$  d'extraction en fonction du temps  $t$  de traitement, représentée sur la figure 24, montre une branche quasi linéaire en-deça de 4 heures d'extraction, qui pourrait correspondre à la première étape du mécanisme énoncé par Angelidis et coll. Au-delà de cette durée, apparaît une diminution plus prononcée de cette grandeur qui représenterait le début de la seconde étape de ce mécanisme.

Ces résultats ne nous permettent pas d'identifier les différentes étapes du processus d'extraction, étant donné que la durée de traitement, fixée à 6 heures, s'avère être très insuffisante.



- 13 - **G.PLANCHON & E.COLLIN**  
*Les drogues simples d'origine végétale*  
Tomè II, Ed. Octave Dion, 1896, pp 256-258.
- 14 - **J.CLEMENT**  
*La santé par les plantes,*  
Ed. Baudouin, 1979.
- 15 - **G.MILLANVOYE**  
*Mini encyclopédie des médecines naturelles,*  
Ed. Marabout, 1986.
- 16 - **P.PHILLIPS**  
*Les plantes aromatiques et médicinales,*  
Ed. Bordas, 1987, pp 38-39.
- 17 - **H.MAHRAN, T.S.EI-ALFY, A.HIFNY SABER**  
*The analysis of the volatile oil of Coriandrum sativum L. cultivated in Egypt,*  
*Bull. Fac. Pharma., Cairo Univ., 6, 1967, pp 157-169.*
- 18 - **E.SCHARTZ, S.M.J.S.QADRY**  
*Planta. Med., 14, 310, 1966.*
- 19 - **E.REISCH, E.SCHARTZ, S.M.J.S.QADRY**  
*Planta. Med., 14, 326, 1966.*
- 20 - **E.SCHARTZ, S.M.J.S.QADRY**  
*Planta. Med., 14, 436, 1966.*
- 21 - **J.KARLSEN, B.CHINGOVA, R.ZWETKOV, A.BAERHEIN SVENDSEN**  
*Studies of the essential oil of the fruits of Coriandrum sativum L. by means gas liquid chromatography,*  
*Pharm. Weekblad, 106, 1971, pp 293-300.*
- 22 - **G.K.GUPTA, K.L.DHAR, C.K.ATAL**  
*Chemical constituents of Coriandrum sativum L. seeds,*  
*Indian perfumer, Vol. XXI, N°2, 1977, pp 86-90.*
- 23 - **G.JUKNEVICIENE, S.D.DAGYTE, N.STANKEVICIENE**  
*Biological properties and essential oils of some spice plants grown at the Kaunas botanical garden. Plants, the seeds of which are used as raw spice materials.*  
*Liet. TSR Mokslu Akad. Darb., Ser. C(3), 1977, pp 9-16.*
- 24 - **L.M.SITNOVA, V.E.SIBIRTSEVA, T.I.KARPOVA**  
*Linalool oxid in coriander oil,*  
*Maslo-Zhir. Prom-st, 12, 1978, pp 24-25.*

- 48 - **Pharmacopée Française**  
Tome I, Vol. 4,5,8,  
Ed. Maisson Neuve, Paris, 1985.
- 49 - **R.GELU**  
*Industrie alimentaire et agricole, Sept.1989*
- 50 - **E.GUEORGUIEV**  
*Produits aromatiques naturels et synthétiques,*  
Ed. de l'institut de technologie alimentaire, Plovdiv , 1980.
- 51 - **N.BEDDEK, E.H.BENYOUSSEF, R.BELABBES, J.M.BESSIERE**  
*Influence de la durée d'hydrodistillation, sur le rendement et la composition de l'huile essentielle des graines de coriandre d'Algérie.*  
*Papier présenté aux XIIIèmes Journées Internationales sur les Huiles Essentielles, Digne les Bains, France,Sept.1994.*
- 52 - **E.ROUDNITSKA**  
*Le parfum*  
*Que sais-je, 1987.*
- 53 - **P.TRAMBOUSE & J.P.WAUQUIER**  
*Le développement des procédés de raffinage et pétrochimie,*  
Ed. Technip Paris, 1975.
- 54 - **P.DEGEA, M.GIRAULT**  
*Analyse de la variance et plans d'expériences,*  
Ed. Wiley interscience,1972.
- 55 - **G.O.KATCHENKO**  
*Tendances actuelles de la production des produits aromatiques naturels,*  
Ed. Institut supérieur de la technologie alimentaire, Plovdiv,1980 pp 103-115.
- 56 - **H.MAMOUNI**  
*Application de différents procédés d'extraction aux graines de coriandre,*  
*Projet de fin d'études ENP, Alger, Juillet 1994.*
- 57 - **E.GUEORGUIEV**  
*Technologie de l'industrie des huiles essentielles,*  
Ed. de l'institut supérieur de technologie alimentaire, Plovdiv, 1980.
- 58 - **S.CHARCHARI**  
*Contribution à la connaissance de l'huile essentielle de deux espèces d'artémisia.*  
*Aspects technologiques de l'extraction de cette huile et de leur concrète,*  
*Thèse de Doctorat d'Etat, ENP Alger, Juin 1994.*
- 59 - **V.VIGNON**  
*Papier de la IVème conférence nationale N.T.S.C.P*  
*Pharmachim, Varna, 1982 pp 196-216*

- 60 - **N.BEDDEK, E.H.BENYOUSSEF, R.BELABBES, J.M.BESSIERE**  
*Application de différents procédés d'extraction aux graines de coriandre d'Algérie,*  
*Papier présenté aux XIIèmes Journées Internationales sur les Huiles Essentielles,*  
*Digne les Bains, France, Sept. 1993.*
- 61 - **R.FRANCOIS**  
*Chimie Industrielle et Génie Chimique* , 96, 6, 1966, pp 1685-1690.
- 62 - **O.M.ANGELIDIS**  
*Revue des oléagineux*, N°8,9, Aout-Sept 1968.