

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي  
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR  
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

DEPARTEMENT : GENIE CHIMIQUE

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
Ecole Nationale Polytechnique

PROJET DE FIN D'ETUDES  
POUR L'OBTENTION DU DIPLOME  
D'INGÉNIEUR D'ÉTAT EN GÉNIE CHIMIQUE

THÈME

**Conception, réalisation et mise en œuvre d'une installation semi pilote pour l'entraînement à la vapeur d'eau des huiles essentielles.**  
**Optimisation de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.**

**Proposé et dirigé par :**  
Pr. S. CHARCHARI

**Etudié par :**  
M. Bouhoune Ali Hacene  
M. Laoufi Mehdi

Soutenu le 01 juillet 2010 devant le jury composé de :

M. T.AHMED ZAID	Professeur à ENP	Président
M. E-H. BENYOUSSEF	Professeur à ENP	Examinateur
Mme A. MEFTI	Maître de conférences(ENP)	Examinatrice
Mme S. CHARCHARI	Professeur à ENP	Rapporteur

**Promotion : juin 2010**

## ***DEDICACES***

*A mes très chers parents, pour l'amour qu'ils m'ont témoigné, et le soutien qu'ils m'ont apporté.*

*À toute ma famille.*

*A mes amis : Kassem, Amine, Mourad, Abdelouahab, Mohamed, Mahdi.*

*A mes collègues de l'Ecole Nationale Polytechnique.*

*A tous ceux qui me sont chers.*

*Je dédie ce modeste travail...*

*Bouhoune Ali    Hacene*

## **Dédicaces**

**Je dédie ce modeste travail à mes parents, aucune dédicace ne saurait exprimer ma reconnaissance pour leur grande patience et leur soutien.**

**A mes chers frères : Bousmaha et Hmaimou et mes sœurs :Nabila et Missan pour leur énorme aide et encouragements.**

**A tous mes anciens chers enseignants et très particulièrement : M. Kebli, M Bourezgue et Mme Kadouri**

**Aux familles : Belbekri, Nehari, Barga, Ben Khedda, Chadli.**

**A mes chers amis : Chafik, Amine, Mourad, Hacene, Bouharbite et tous mes collègues .**

**LAOUFI MEHDI**

## REMERCIEMENTS

Cette étude a été réalisée sous la direction du Pr. S. CHARCHARI, au laboratoire de Valorisation des énergies fossiles, dirigé par Pr. C.- E. CHITOUR, dans le cadre des travaux de recherche de l'équipe de Valorisation des espèces végétales, dirigée par Pr. R. Derriche.

Nous tenons à exprimer notre profonde reconnaissance à Madame S.CHARCHARI, Professeur à l'ENP pour nous avoir confié ce sujet, ainsi pour ses encouragements, conseils précieux, motivation et suivi régulier, sans lesquels ce travail n'aurait pas pu aboutir.

Nous tenons à remercier Monsieur T.AHMED ZAID, Professeur à l'ENP de nous avoir fait l'honneur de présider le jury.

Que Monsieur E.- H. BENYOUSSEF, Professeur à l'ENP et Madame A. MEFTI, Maître de conférences à l'ENP trouvent ici l'expression de nos plus vifs remerciements pour avoir accepté d'examiner ce travail et de faire partie de jury.

Nous tenons à témoigner notre reconnaissance à Monsieur A. NEHITI, technicien au Département de Génie chimique de l'ENP, ainsi qu'à Mademoiselle BENYAHIA Conservatrice au Jardin d'essais d'Alger, Monsieur B. ZMIT et Mademoiselle N. BOUDINA pour leur précieuse aide.

تصميم و إنشاء نموذج وحدة نصف صناعية لاستخلاص الزيوت الأساسية لنبته المریمیة باستعمال بخار الماء و تحسين الاستخراج للزيت الأساسي.

**ملخص:** هذا العمل يستخلص في تصميم و إنشاء نموذج وحدة نصف صناعية لاستخلاص الزيوت الأساسية باستعمال تقنية الانجذاب ببخار الماء و ذلك بتركيب و تجميع عناصر مصنوعة بزجاج خاص بعد الانتهاء من إجراء الحسابات اللازمة (سرعة تدفق بخار الماء ،مساحة التبادل الحراري للمكثف و نضام إعادة دوران الماء).بدأنا بالقيام بتحسين استخراج الزيت الأساسي لنبته المریمیة و ذلك بوجود المادة الفعالة مع استعمال طريقة التخطيط للتجارب بمستويين لمعاملين و هما:كتلة المادة النباتية و الحجم الخاص لتدفق بخار الماء و قد سمح لنا ذلك بوضع علاقة رياضية تعطينا تغير المردود بدلالة هذه المعاملات. فقد تم التحقق من صلاحية العلاقة و تحسينها باستخدام برنامج ستاتغرافيكس 16. و قد قمنا أيضا بحساب بعض الخواص الفيزيوكيميائية للزيت المستخلص.

**الكلمات المفتاحية:** الزيوت الأساسية- انجذاب ببخار الماء-نضام إعادة دوران الماء –التحسين- المادة الفعالة-علاقة رياضية –مساحة النتائج.

### **Conception, réalisation et mise en œuvre d'une installation semi-pilote pour l'entraînement à la vapeur d'eau des huiles essentielles. Optimisation de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia Officinalis* L.**

**Résumé :** Ce travail consisté en la conception et la réalisation d'une installation d'entraînement à la vapeur d'eau des huiles essentielles à l'échelle semi-pilote en utilisant des éléments de récupération en verre spéciale (EIVS). Après une évaluation de ses capacités, débits de vapeur, surface d'échange du condenseur et système de cohobage, l'optimisation de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L. en présence de tensioactif a été réalisée, en utilisant un plan d'expériences à deux niveaux de deux paramètres, en l'occurrence, le débit spécifique de vapeur et la masse du tensioactif à utiliser. Il a permis d'établir un modèle mathématique donnant l'évolution du rendement en huile, en fonction des deux paramètres étudiés. L'évaluation statistique du modèle et l'optimisation par la méthode de la surface de réponse ont été effectuées à l'aide du logiciel Statgraphics centurion XVI. Quelques propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle ont été déterminées et la manière dont le tensioactif intervient dans l'extraction de l'huile essentielle a été en partie élucidée.

**Mots clés:** huiles essentielles, *Salvia officinalis* L, entraînement à la vapeur d'eau, optimisation, tensioactif, modèle mathématique, surface de réponse.

### **Design, development and implementation of essential oils extraction by steam distillation semi-pilot scale unit. Optimization of *Salvia officinalis* L. essential oil extraction**

**Abstract:** This work consist in designing and implementing of a pilot scale unit of essential oils extraction by steam distillation, using recovery elements in special glass (EIVS). After assessment of its capabilities, the steam flows, the condenser exchange surface and the cohobage system, the optimization of *Salvia officinalis* L essential oil extraction in the presence of surfactant was made using experimental design at two levels of two parameters, namely, the specific steam flow and the surfactant mass to use. The mathematical model giving the oil yield evolution versus these two parameters was established. The statistical evaluation of the model and the optimization using the surface response methodology were performed with Statgraphics centurion XVI software. Some physicochemical properties of the essential oil were determined and how the surfactant involved in the essential oil extraction was partially elucidated.

**Keywords:** essential oils, *Salvia officinalis* L, steam distillation, surfactant, optimization, mathematical model, response surface methodology.

## SOMMAIRE

	<b>Page</b>
<b>Introduction</b>	<b>01</b>
<b>Chapitre I - Etude bibliographique</b>	
I.1. Les huiles essentielles	
I.1.1. Historique.....	02
I.1.2. Définition.....	02
I.1.3. Localisation.....	03
I.1.4. Composition.....	05
I.1.5. Propriétés.....	07
I.2. Le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau	
I.2.1. Principe.....	09
I.2.2. Mécanisme.....	10
I.2.3. Théorie.....	12
I.2.4. Extraction des huiles essentielles en présence de tensioactifs.....	14
<b>Chapitre II - Conception et réalisation de l'installation semi pilote de l'entraînement à la vapeur d'eau</b>	
II.1. Chaudière génératrice de vapeur.....	20
II.2. Extracteur.....	21
II.3. Condenseur.....	26
II.4. Décanteur et système de cohobage.....	27
<b>Chapitre III - Matériel et méthodes</b>	
III.1. Matière végétale	
III.1.1. <i>Salvia officinalis</i> L.....	29
III.1.2. Echantillonnage.....	30
III.1.3. Détermination du taux d'humidité.....	31
III.2. Tensioactif utilisé.....	31
III.3. Protocole expérimental d'extraction de l'huile essentielle de <i>S. officinalis</i> L.....	32
III.4. Plan factoriel à deux niveaux de trois paramètres.....	32
III.4.1. Notion d'espace expérimental.....	33
III.4.2. Notion de modélisation mathématique.....	36
III.4.3. Plans factoriel complets à deux niveaux.....	36
III.4.4. Coordonnées centrées réduites.....	37
III.5. Logiciel Statgraphics Centurion XVI.....	38
III.6. Détermination des propriétés physiques de l'huile essentielle	
III.6.1. Densité.....	38
III.6.2. Indice de réfraction.....	38
III.6.3. Indice d'acide.....	39

## Chapitre IV- Résultats et discussion

IV.1. Mise en œuvre de l'installation.....	40
IV.1.1. Mesure des débits de vapeur (extracteur vide).....	40
IV.1.2. Mesure des débits de vapeur lors des essais d'extraction de l'huile essentielle.....	41
IV.2. Optimisation par planification des expériences de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de <i>Salvia</i> <i>officinalis</i> L.	
IV.2.1. Choix des paramètres à optimiser.....	43
IV.2.2. Plan des expériences et établissement du modèle mathématique	44
IV.2.3. Evaluation statistique du modèle.....	47
IV.2.4. Optimisation par la surface de réponse.....	47
IV.3. Propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle de <i>S. officinalis</i> L....	49

## Bibliographie

## Conclusion

# **Introduction**

## Introduction

Depuis l'aube des temps, l'homme a toujours été lié à son environnement végétal qui représentait pour lui non seulement un moyen pour se nourrir, mais aussi une source de produits largement utilisés en pharmacie et en parfumerie. Ces produits naturels sont des mélanges complexes de divers composés organiques contenus dans les tissus végétaux et peuvent être récupérées par différentes techniques: entraînement à la vapeur d'eau, hydrodistillation, épuisement de certaines parties spécifiques de la plante dans des solvants organiques. Si ces techniques extractives ont gardé, au cours des siècles, leur principe de base, la recherche dans ce domaine s'est orientée vers des traitements particuliers du matériel végétal et l'optimisation des paramètres du procédé lui-même.

Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés au procédé d'extraction par entraînement à la vapeur d'eau des huiles essentielles.

La première partie de ce travail est une étude bibliographique, relative aux huiles essentielles, au principe, au mécanisme, à la théorie du procédé d'entraînement à la vapeur d'eau et à l'utilisation de tensioactifs lors de l'extraction des huiles essentielles.

La conception et la réalisation d'une installation d'extraction à l'échelle semi-pilote à partir d'éléments de récupération en verre spécial (EIVS), disponibles dans le hall de génie chimique, la présentation de chaque équipement par des dessins techniques, font l'objet du second chapitre.

Dans le troisième chapitre sont présentés la matière végétale, en l'occurrence, la sauge officinale ou *Salvia officinalis* L., le tensioactif, ainsi que les différentes méthodes et outil informatique utilisés dans cette étude.

La mise en œuvre de l'installation, les essais réalisés dans le cadre de l'optimisation des paramètres du procédé par planification des expériences, les propriétés de l'huile essentielle, telles la densité, l'indice de réfraction et l'indice d'acide sont présentés dans le dernier chapitre de ce travail. Dans ce chapitre sont, également, interprétés et discutés les résultats obtenus.

# **Chapitre I**

## **Etude bibliographique**

## **I.1. Les huiles essentielles**

### **I.1.1 Historique [1]**

Les traces d'utilisation de l'aromathérapie remontent à plus de 7000 ans, preuve on est un alambic en terre cuite retrouvé au Pakistan datant cette époque. Des inscriptions datant de 4000 ans en Mésopotamie et des écrits égyptiens datant de 3500 ans ont été également rapportés. Les Égyptiens obtenaient des huiles essentielles en pressant des plantes. Les Romains utilisaient également les huiles essentielles

La grande époque des huiles essentielles débute au 15<sup>ème</sup> siècle et ce n'est qu'au cours des XVI<sup>e</sup> et XVII<sup>e</sup> siècles que les huiles essentielles ont reçu leurs premières applications en tant que telles et leur introduction dans le commerce, jusqu'en 1935, date à laquelle elle fut reléguée en arrière-plan avec la découverte de la pénicilline. En 1937, le chimiste français René-Maurice Gatte Fossé publia ses découvertes dans son livre intitulé « Aromathérapie". Il est considéré comme le père de l'aromathérapie moderne. Durant la guerre de 1939-45, le Dr. Jean Valnet guérissait les blessures de guerre en utilisant des huiles essentielles. Les notions curatives des huiles essentielles furent vulgarisées par son premier livre: "L'aromathérapie, traitement des maladies par les essences des plantes", publié en 1964. De nos jours, l'aromathérapie retrouve ses lettres de noblesse grâce, entre autres, aux naturopathes et aux formations qui sont proposées aux médecins.

En résumé, quatre époques dans l'histoire des huiles essentielles sont établies:

- 1<sup>ère</sup> époque : Utilisation des plantes aromatiques sous forme d'infusion et de décoction.
- 2<sup>ème</sup> époque : Les plantes aromatiques étaient brûlées, infusées, et macérées dans une huile végétale.
- 3<sup>ème</sup> époque : Naissance de l'extraction, concept de l'huile essentielle.
- 4<sup>ème</sup> époque : Connaissance des composants chimiques des huiles essentielles, les propriétés physiques, biochimiques et thérapeutiques des plantes aromatiques.

### **I.1.2. Définition**

La 8<sup>ème</sup> édition de la pharmacopée française, en 1965, a défini une huile essentielle, appelée encore essence ou huile volatile, comme étant un produit de composition généralement assez complexe renfermant les principes volatils contenus dans les végétaux et plus aux moins modifiés au cours de l'extraction. Pour extraire ces principes volatils, il existe

divers procédés. Deux seulement sont utilisés pour la récupération des essences officinales : la distillation à la vapeur d'eau de plantes à essences ou de certaines de leurs organes, et le procédé par expression [2]. Depuis la neuvième édition, en 1972, la pharmacopée n'utilise plus que le terme huile essentielle [1].

La Commission de la Pharmacopée Européenne donne la définition suivante d'une huile essentielle : «Produit odorant, généralement de composition complexe, obtenu à partir d'une matière première végétale botaniquement définie, soit par entraînement à la vapeur d'eau, soit par distillation sèche, soit par un procédé mécanique approprié sans chauffage... ».

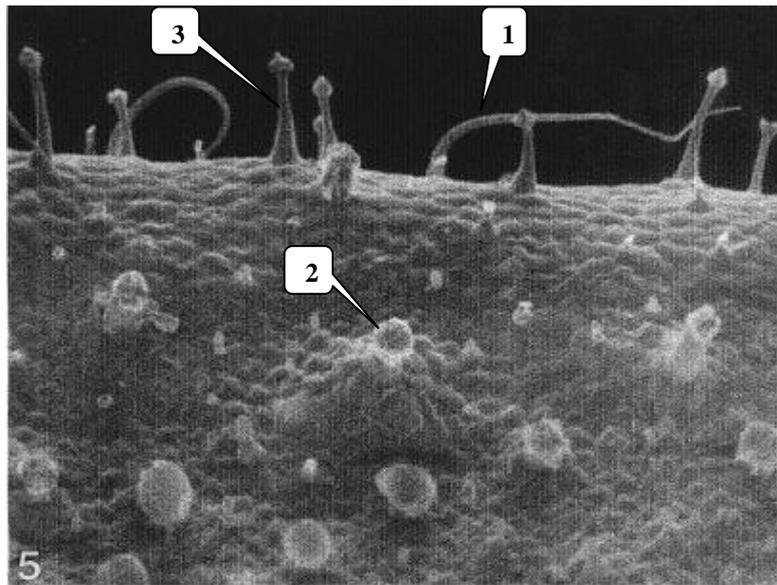
En 1986, la norme AFNOR [3] définit une huile essentielle comme étant l'extrait volatil obtenu par hydrodistillation ou par expression à froid de la plante. Plus récemment, la norme AFNOR NFT 75-006, de Février 1998, a donné la définition suivante d'une huile essentielle : «Produit obtenu à partir d'une matière première végétale, soit par entraînement à la vapeur, soit par des procédés mécaniques à partir de l'épicarpe des citrus, soit par distillation sèche. L'huile essentielle est ensuite séparée de la phase aqueuse par des procédés physiques pour les deux premiers modes d'obtention. Elle peut subir des traitements physiques, par exemple, redistillation, aération ..., n'entraînant pas de changement significatif de sa composition» [3].

### **I.1.3. Localisation des huiles essentielles dans les plantes**

La synthèse et l'accumulation des huiles essentielles s'effectuent dans des structures histologiques spéciales, différenciées et variables suivant la famille. Ces structures sont localisées soit à la surface des différents organes de la plante, sites exogènes, soit dans des canaux ou poches, sites endogènes

- Les poils sécréteurs ou trichomes

Ils peuvent se présenter sous quatre formes [4] et se composer de plusieurs cellules sécrétrices, associées pour constituer un plateau porté par un pédicelle court, poils peltés, poils capités à pieds court ou long ou bosselé.



**Figure I.1: Vue de la surface du calice de *Salvia officinalis* L. [4]**  
Trichomes tecteurs (1), peltés (2) et capités (3)

Les poils sécréteurs peuvent être externes ou bien internes, comme dans les divers eucalyptus [5].

- Les cellules épidermiques

Il s'agit de cellules plus petites que les autres cellules épidermiques. Elles sont davantage perméables, car leur paroi ne contient pas de cutine. Ce type de cellules se rencontre généralement dans les pétales de fleurs.

- Les cellules sécrétrices internes

Elles sont plus grandes et plus épaisses que les autres cellules. Elles peuvent se situer dans différents tissus, comme le parenchyme, le phloème ou le xylème.

- Les poches sécrétrices

La genèse des poches sécrétrices débute par la division d'une cellule parenchymateuse en quatre cellules, qui forment en leur centre une poche. Dès lors il existe deux voies d'évolution pour cette poche: soit les cellules, qui entourent la poche, continuent à se diviser tout en formant une seule rangée tout autour, la poche est qualifiée de schizogène (Figure I.2), soit les cellules, entourant la poche, vont se diviser et s'organiser pour constituer des rangées successives autour de la poche, avec un phénomène de lyse pour les cellules de la rangée la plus interne, ce qui forme alors une poche schizolysigène (Figure I.3).

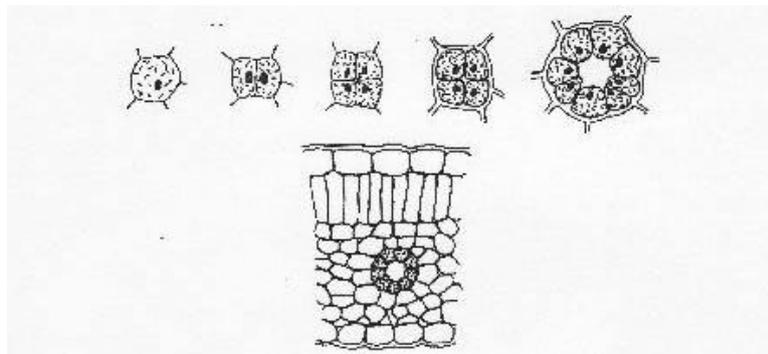


Figure I .2: Poche sécrétrice schizogène[4]

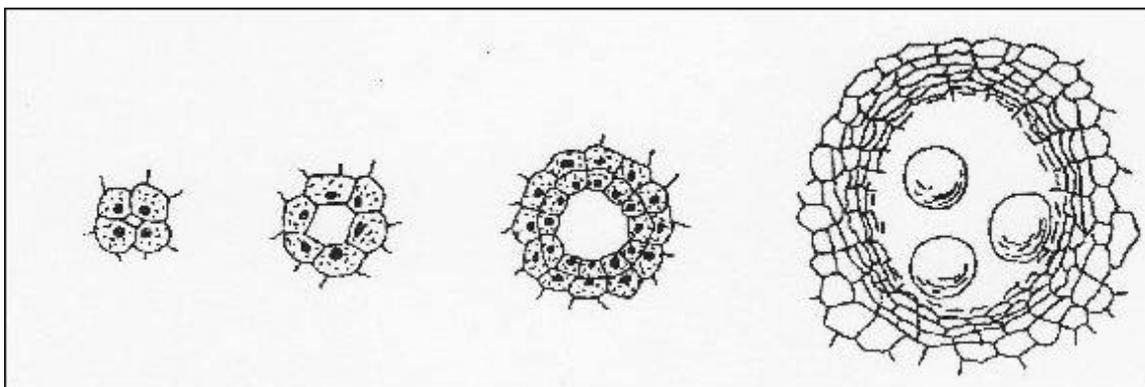


Figure I .3 : Poche sécrétrice schizolysigène[4]

- Les canaux sécréteurs.

#### I.1.4. Composition des huiles essentielles

La composition chimique des huiles essentielles est généralement très complexe d'un double point de vue, à la fois par le nombre élevé de constituants présents et surtout par la diversité considérable de leurs structures. Elles comprennent deux classes de composés caractérisés par des origines biogénétiques bien distinctes: le groupe des terpénoïdes, d'une part, et le groupe des composés aromatiques dérivés du phénylpropane, d'autre part, et de leurs dérivés.

- **Les terpènes ou terpénoïdes**

Les terpènes constituent une classe de composés d'origine naturelle présente surtout dans le règne végétal. Ce sont des hydrocarbures de structure très diverses : acycliques, monocycliques, bicycliques..., portant parfois différentes fonctions. Les molécules de la famille des terpènes sont considérées comme formées de l'assemblage de deux ou plusieurs unités d'isoprène ou 2-méthyl-buta-1,3-diène:



Ils répondent à la formule brute :  $(\text{C}_5\text{H}_8)_n$ .

Une classification de ces composés a pu être établie, selon la valeur du nombre n d'unités isopréniques:

n=1 Les hémiterpéniques en  $\text{C}_5$

n=2 Les monoterpènes en  $\text{C}_{10}$

n=3 Les sesquiterpènes en  $\text{C}_{15}$

n=4 Les diterpènes en  $\text{C}_{20}$

n=5 Les sesterpènes en  $\text{C}_{25}$

n= 6 Les triterpènes en  $\text{C}_{30}$

n=8 Les tetraterpènes en  $\text{C}_{40}$

n>40 Les polyterpènes. [6]

Les unités isopréniques s'associent entre elles pour conduire à une chaîne hydrocarbonée insaturée qui sera modifiée secondairement par oxydation par réduction ou par élimination de carbone, ce qui explique la multiplicité des isoprénoïdes. Les huiles essentielles contiennent principalement des monoterpènes ( $\text{C}_{10}$ ), quelques sesquiterpènes ( $\text{C}_{15}$ ), et rarement des diterpènes ( $\text{C}_{20}$ )

- **Composés aromatiques**

Les composés de la classe de phényl-propanoïdes sont moins fréquents que les terpénoïdes. Ce sont très souvent des allyl- et propényl-phénols. On trouve parfois des aldéhydes aromatiques caractéristiques de certaines huiles essentielles de la famille des Apiaceae (anis, fenouil, persil, etc.). Certaines huiles essentielles contiennent le cinnamaldéhyde ou l'estragol (essence de basilic). Dans d'autres essences, les acides benzoïque et cinnamique sont présents. On rencontre également des aldéhydes phénols

comme l'aldéhyde protocatéchétique ou l'aldéhyde salicylique de la Reine des prés. Les aldéhydes aromatiques et les phénols sont à l'origine des arômes caractéristiques des condiments, tels que les clous de girofle (eugénol) et la cannelle (cinnamaldéhyde) [6].

- **Composés d'origines variées**

A l'intérieur de ce groupe on distingue divers hydrocarbures aliphatiques, généralement de faible masse moléculaire, entraînés à la vapeur d'eau, de chaîne linéaire ou ramifiée, saturés ou non et portant différentes fonctions. On peut citer entre autres :

- L'heptane est la paraffine dans l'essence de camomille.
- Des acides en C<sub>3</sub> à C<sub>10</sub>
- Des alcools comme le oct-1ène-3-ol de l'essence de lavande,...
- Des aldéhydes comme l'octanal et le décanal des citrus ou le trans-2-hexanal,...
- Des esters acycliques présents principalement dans les fruits.
- Des lactones comme le décalactone.
- Des composés azotés ou soufrés comme l'isosulfocyanate .[6]

## **I.1.5. Propriétés des huiles essentielles**

### **I.1.5.1. Propriétés physiques des huiles essentielles**

Les huiles essentielles sont :

- Liquides à température ambiante,
- De consistance huileuse mais non grasse,
- Volatiles telle que leur volatilité augmente avec la chaleur,
- Insolubles dans l'eau et, pour la grand majorité, plus légères que l'eau,
- Souvent odorantes et colorées,
- Les huiles essentielles s'enflamment facilement,
- Elles solubles dans les huiles végétales et dans l'alcool jusqu'à un certain pourcentage [7].

### **I.1.5.2. Propriétés chimiques des huiles essentielles**

- Elles s'oxydent facilement à la lumière et se résinifient en absorbant l'oxygène en même temps que leur odeur se modifie, leur point d'ébullition augmente, leur solubilité diminue.
- Elles réagissent avec le chlore, le brome, l'iode avec dégagement de chaleur.

- Elles peuvent se combiner avec l'eau pour former des alcools. [7]

### I.1.5.3. Propriétés biologiques des huiles essentielles [8]

- **Propriétés antibactériennes**

Les molécules aromatiques possédant l'activité antibactérienne la plus élevée sont les phénols: carvacrol, thymol, eugénol. Les monoterpénols, des alcools à 10 carbones, se situent juste après: géraniol, linalol, citronnellol, thujanol, terpinéol, menthol. Par ailleurs, les monoterpénols stimulent les défenses naturelles.

Les aldéhydes manifestent une certaine puissance antibactérienne : néral, géranial, citronnellal, cuminal. Les cétones, verbénone, thuyone, cryptone, menthone, camphre, fenchone, présentent un intérêt dans le traitement des états infectieux.

- **Antifongique**

Les infections fongiques, ou mycoses, sont d'une actualité criante, car les antibiotiques prescrits de manière abusive ne sont plus efficaces. Par ailleurs, les mycoses, provoquées par les champignons *Candida* ne se développent pas sur un terrain acide. Parmi les huiles essentielles antifongiques, on citera celles de cannelle, clou de girofle, eucalyptus citronné, géranium, niaouli, tagète, romarin à cinéole.

- **Antiseptique**

Les huiles essentielles sont réputées pour leurs propriétés désinfectantes et antiseptiques et s'opposent à la prolifération des germes pathogènes. Alors que les hôpitaux sont confrontés à des problèmes insurmontables (maladies nosocomiales, légionellose), la désinfection des locaux, des salles de réanimation et des chambres de malades peut faire appel à la diffusion d'huiles essentielles riches en alcools et oxydes terpéniques.

- **Anti-arythmique**

Certains esters, comme l'acétate de bornyle de l'Ylang-ylang, sont de bons régulateurs cardiaques.

- **Antiparasitaire**

Le groupe des phénols possède une action puissante contre les parasites. Viennent ensuite les alcools monoterpéniques, les oxydes, les cétones et les lactones.

- **Antivirale**

Les virus donnent lieu à des pathologies très variées, dont certaines posent des problèmes non résolus aujourd'hui. Les réponses classiques à ces infections étant très limitées, les huiles essentielles constituent une aubaine pour traiter ces fléaux infectieux. Plus d'une dizaine d'huiles essentielles ont des propriétés antivirales.

Les virus sont très sensibles aux molécules aromatiques et certaines pathologies virales graves se trouvent très nettement améliorées grâce à elles. De plus, les cellules saines des patients utilisant des huiles essentielles, acquièrent une résistance toute particulière vis-à-vis de la pénétration virale.

## I.2. Le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau

### I.2.1. Principe

Le principe de l'entraînement à la vapeur d'eau, appelé aussi distillation à la vapeur d'eau, consiste à déposer, dans l'extracteur, la matière végétale sur une grille perforée. La vapeur produite par un générateur de vapeur est introduite au dessous de la grille. En traversant la matière végétale, elle entraîne l'huile essentielle. Le mélange des vapeurs d'huile et d'eau est refroidi et condensé. L'huile récupérée par décantation est dite huile primaire [9].

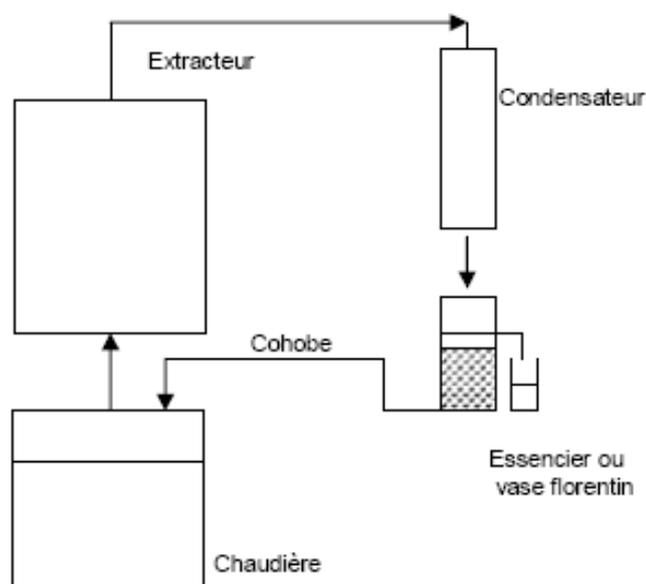


Figure I.5. Schéma de principe d'extraction entraînement à la vapeur de l'eau [9]

L'entraînement à la vapeur est applicable aux composés peu ou pas solubles dans l'eau, dotés d'une tension de vapeur assez importante vers 100°C. Toutes les matières premières aromatiques naturelles ne peuvent pas donner de l'huile essentielle de bonne qualité par ce procédé. Par exemple, on ne peut pas traiter les fleurs de jasmin par distillation, car son parfum complexe et délicat est en grande partie détruit à la température d'ébullition de l'eau et plusieurs constituants caractéristiques subissent, par hydrolyse, une altération profonde. Dans ce cas, on préfère utiliser des procédés d'extraction aux solvants volatils. [10,11]

### **I.2.2. Mécanisme**

Les phénomènes régissant l'entraînement la vapeur d'eau sont complexes et peu connus à ce jour. Les échanges de matière à travers les tissus de la plante dépendent de la perméabilité de ces derniers. Des études microscopiques semblent prouver que les parois cellulaires sont imperméables et emprisonnent les huiles essentielles, aux températures ordinaires. Seule une faible quantité de composés volatils arrive à s'échapper. Au cours de l'entraînement à la vapeur, les conditions de température et de pression augmentent considérablement le mouvement des molécules dans la plante.

Tous les travaux semblent se référer à la théorie de Von Rochenberg [12] reprise par Guenther [13], dans son ouvrage sur les huiles essentielles. Selon Von Rochenberg et Guenther, le mode de récupération des huiles essentielles à partir des cellules végétales, au cours de l'entraînement à la vapeur d'eau, suit deux processus: l'osmose et/ou la diffusion libre.

Selon cette théorie, à la température d'ébullition de l'eau, une partie de l'huile volatile se dissout dans l'eau ayant diffusée à l'intérieur des glandes par osmose à travers la membrane cellulaire. La solution résultante huile-eau, exerçant une pression osmotique, s'infiltrera, à son tour, à travers les pores élargies de la paroi cellulaire gonflée et atteindra finalement la surface externe d'où l'huile sera vaporisée et entraînée par la vapeur d'eau ascendante. Ce processus se poursuivra jusqu'à ce que toutes les substances volatiles aient été extraites et entraînées par la vapeur d'eau. Dans ce cas la vitesse de transfert de matière est très lente, et le procédé de distillation est loin d'être économique.

Une autre étude [14] faite sur des graines confirme l'existence de deux étapes : osmose dans le cas d'un matériel végétal intact, les parois cellulaires ralentissent la cinétique d'extraction, et diffusion libre dans le cas d'un matériel broyé, le broyage détruisant toute barrière entre l'huile essentielle et la vapeur d'eau. Si les cellules sont intactes (matériel végétal non broyé), le mouvement des molécules est ralenti par la présence des parois

cellulaires. Aussi les constituants distilleront dans l'ordre de leurs solubilités dans l'eau chaude. Dans ce cas, le phénomène prédominant est l'osmose, la plus grande partie de l'huile n'arrive à la surface qu'après une étape lente de diffusion à travers les parois cellulaires, étape qui régirait donc la vitesse d'extraction. Lorsque le matériel végétal est finement broyé, les parois cellulaires sont détruites, l'huile diffuse librement et ses constituants distillent dans l'ordre de leurs volatilités. Le processus de distillation est accéléré et la durée totale d'extraction peut ainsi être considérablement réduite. Le recours au broyage des graines est donc conseillé, car il diminue le chemin de l'essence, à travers le tissu de la plante, jusqu'à la surface et évite les phénomènes de diffusion à cinétique lente.

D'autre part, d'après Garner [15], il semblerait que, pour un matériel végétal intact, les composés polaires soient entraînés plus vite que les composés apolaires. Ainsi, les hydrocarbures monoterpéniques sortiraient après les alcools monoterpéniques. Or, la considération des températures d'ébullition n'explique pas cet ordre de sortie. Seule la théorie de Guenther trouverait une interprétation de ce phénomène. En effet, pour les composés oxygénés plus solubles dans l'eau, la vitesse de diffusion est plus grande. En revanche, la cinétique d'extraction des composés volatils moins solubles dans l'eau est ralentie. Ces résultats prouveraient que les composés de l'huile se solubilisent dans l'eau à l'intérieur de la plante.

Enfin, des études plus récentes [16] font état des phases suivantes de l'entraînement à la vapeur d'eau des végétaux. Pour que l'huile puisse être entraînée, il faut qu'elle soit en contact direct avec la vapeur. Un tel contact suppose la destruction de la structure cellulaire du végétal qui ne peut pas avoir lieu dans les conditions de la distillation. Aussi, selon le mécanisme proposé, en début du processus, on assiste à la thermodiffusion ou exsudation thermique de l'huile, jusqu'à l'établissement d'un équilibre des températures à l'extérieur et à l'intérieur du site sécréteur. Par ailleurs, au contact avec la surface de la matière végétale, l'eau pénètre par osmose dans les sites sécréteurs. L'eau étant devenue abondante, la pression exercée, de l'intérieur du site vers le milieu, opère alors, sur la paroi primaire (cuticule). Ce phénomène est appelé pression de turgescence. Dans ces conditions la turgescence provoque le gonflement du trichome et un élargissement des pores de la cuticule. De plus, la température élevée provoque la coagulation du protoplasme du trichome et par conséquent ce dernier, mais aussi la cuticule perd leur semi perméabilité. Arrivée à l'extérieur du trichome, l'huile essentielle rencontre une couche d'eau de condensation qui enveloppe le matériel végétal. Il s'ensuit une hydrodiffusion à travers cette couche, jusqu'à une interface huile-

vapeur. Le contact direct huile-vapeur étant assuré, l'huile s'évapore et est entraînée par le flux de vapeur.

### I.2.3. Théorie

Bien que les huiles essentielles soient des mélanges fort complexes de plusieurs constituants, il n'est souvent pas nécessaire de les traiter comme des systèmes multicomposés, la théorie des mélanges binaires semble convenir pour en expliquer le phénomène [13]. Ainsi l'entraînement des molécules organiques correspondant à une distillation hétérogène et dépendant de l'équilibre des phases liquide et vapeur est régi par deux lois physiques [17]:

- **La loi de Dalton**, selon laquelle la pression du mélange de vapeur est égale à la somme des tensions de vapeur de divers constituants du mélange [18].

$$P_T = P_H + P_E \quad (I.1)$$

En assimilant le système eau - huile essentielle à un mélange binaire de liquides non miscibles et en supposant que chaque constituant peut se vaporiser sans contrainte, la pression de vapeur système sera égale à la somme des pressions de vapeurs des constituants purs. Donc la relation (I.1) devient :

$$P_T = P^{\circ}_H + P^{\circ}_E \quad (I.2)$$

Où :

$P_T$  = Pression totale

$P^{\circ}_i$  = Tension de vapeur de constituant i pur

H et E désignent respectivement l'huile essentielle et l'eau [13].

- **La loi de Raoult**, selon laquelle, la pression partielle de chaque constituant de la solution est proportionnelle à sa fraction molaire en phase liquide [18].

$$P_i = P^{\circ}_i X_i \quad (I.3)$$

Où:

$P_i$  : Pression partielle du constituant i

$P^{\circ}_i$  : Tension de vapeur du constituant i pur

$X_i$  : fraction molaire du constituant i en phase liquide.

La combinaison de ces deux lois nous donne respectivement la pression totale et la composition des vapeurs en fonction des pressions partielles, d'où le calcul du taux de corps entraîné appelé également rapport d'entraînement :

$$R = m_H / m_E \quad (I.4)$$

Où :

$m_i$  = poids du constituant  $i$  ;

$R$  = rapport d'entraînement [19].

La masse ( $m_i$ ) de chaque constituant dans le distillat dépend de sa masse moléculaire ( $M_i$ ) et de sa tension de vapeur ( $P_i^\circ$ ). Si on considère que l'eau et l'huile ne sont pas miscible le nombre de moles ( $n_i$ ), selon la loi des gaz parfait, de chaque constituant en phase vapeur est proportionnel à sa tension de vapeur.

Par ailleurs ( $P_E^\circ + P_H^\circ$ ) est égale à la pression extérieure, ainsi il sera possible lors de la distillation de modifier partiellement le rapport eau/huile dans le condensât en changeant la pression de travail, la température de l'appareil s'ajuste automatiquement à celle d'ébullition du mélange [13]. La température d'ébullition d'un mélange est atteinte lorsque la somme des tensions de vapeurs de chacun des constituants purs est égale à la pression d'évaporation. Elle est donc inférieure à chacun des points d'ébullition des substances pures.

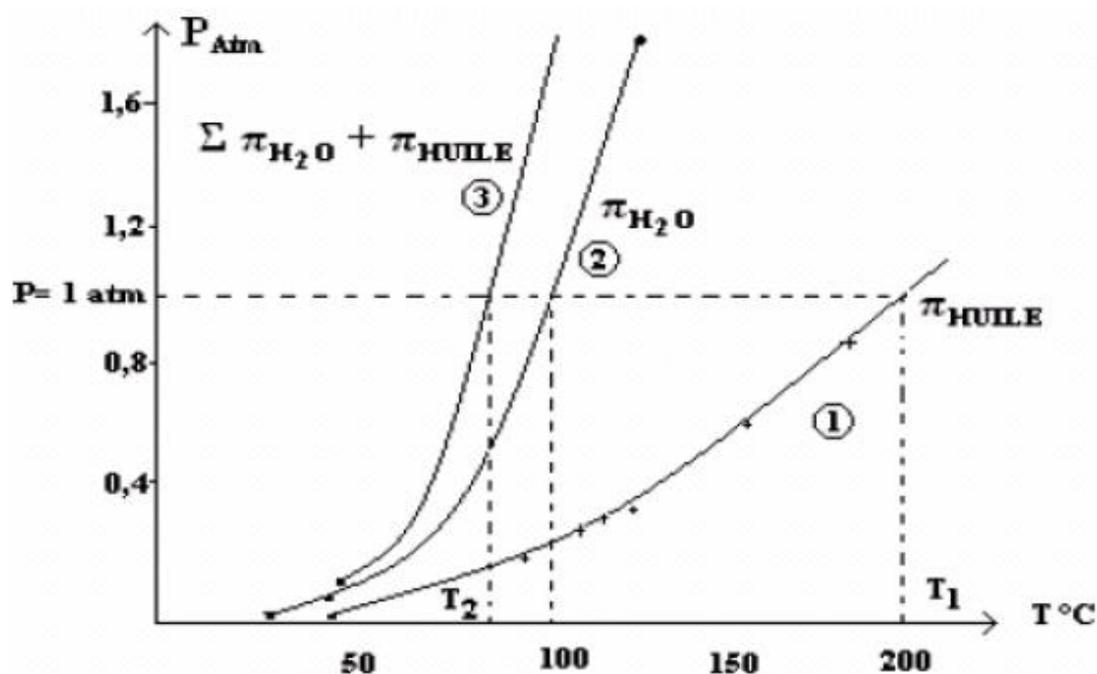


Figure I.6.: Evolution des températures de distillation de l'eau et l'huile essentielle, et du mélange eau/huile essentielle en fonction de la pression du milieu [20]

Ainsi le mélange eau/huile essentielle distillée possède une température inférieure à 100°C à pression atmosphérique, généralement proche de 100°C, en raison de la faible

tension des constituants odorants, alors que les températures d'ébullition des composés aromatiques sont pour la plupart très élevées [17, 19]. La figure I montre l'évolution de la température de co-distillation d'un mélange hétérogène d'eau et d'huile essentielle.

### **I.2.3. Extraction des huiles essentielles en présence de tensioactifs**

Les premiers travaux l'extraction des huiles essentielles à partir des plantes aromatiques en présence de tensioactifs ont été entrepris dans les années 1960 [21, 22]. Les essais menés sur l'extraction des huiles essentielles de menthe, de lavande et de rose ont tous permis de constater une augmentation du rendement en huile de 30 à 40 %. Les auteurs n'observent pas des changements significatifs dans la composition des huiles obtenues. Toutefois, les résultats de ces recherches n'ont pas été mis en œuvre dans la pratique.

Les travaux dans ce domaine ont été repris dans les années 1970 et 2000 et appliquées à l'extraction de l'huile essentielle des pétales de rose, respectivement de *Rosa damascena* Mill. [23,24] et de *Rosa alba* L. [25]. Les auteurs constatent une augmentation du rendement en huile de 50 % pour *Rosa damascena* Mill. et de 130 à 316 % pour *Rosa alba* L. Ils attribuent cette augmentation du rendement au fait que les agents tensioactifs réduisent la tension, d'une part, entre la phase aqueuse et la surface hydrophobe de tissus végétaux et d'autre part, entre l'eau et la phase huileuse. Ils facilitent, en outre, le mouillage de la matière végétale et de ce fait préviennent le dépôt de l'huile sur la surface de celle-ci [25]. En outre, ils préconisent la macération du matériel végétal nécessaire à un meilleur mouillage de la surface de pétale. Enfin, la forte augmentation du rendement en huile de *Rosa alba* L. serait due à l'hydrolyse des glycosides, renfermant des constituants de l'huile essentielle, dont la présence dans cette espèce de rose a été prouvée [26].

### **I.2.4. Les tensioactifs**

Un tensioactif, ou agent de surface, est un composé qui modifie la tension superficielle entre deux surfaces. Les composés tensioactifs sont des molécules amphiphiles, c'est-à-dire, qu'elles présentent deux parties de polarité différente, l'une lipophile, qui retient les matières grasses, est apolaire, l'autre, hydrophile miscible dans l'eau, est polaire.



**Figure I.7 : Schéma simplifié d'une molécule de tensioactif [27]**

Il permet ainsi de solubiliser deux phases non miscibles, en interagissant avec l'une apolaire, c'est-à-dire, lipophile, donc hydrophobe, par sa partie hydrophobe; tandis qu'avec l'autre phase qui est polaire, il interagira par sa partie hydrophile.

On distingue quatre types de composés tensioactifs, regroupés selon la nature de la partie hydrophile [27]: anioniques, cationiques, zwitterioniques (amphotères) et non ioniques.

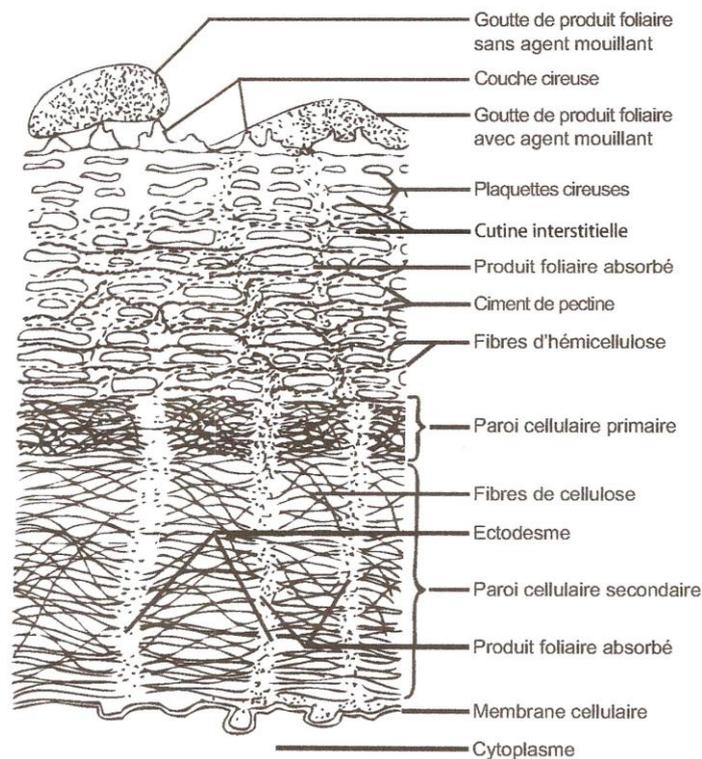
La molécule amphiphile est caractérisée par la présence dans sa structure, de deux parties antagonistes. Cette dualité, à l'origine de l'activité de surface, de la micellisation et des capacités de solubilisation, introduit les diverses applications des amphiphiles. Les propriétés et les applications d'un tensioactif seront fonction de la valeur de sa balance hydrophile-lipophile ou HLB [28], comme le montre le tableau I.2.

**Tableau I.2: Applications des tensioactifs, en fonction de leur HLB [28]**

HLB	Applications
1,5-3	Antimousse
3-6	Emulsifiant (eau/huile)
7-9	Agent mouillant
8-18	Emulsifiant (huile/eau)
13-16	Détergent
15-18	Solubilisant

Grâce à leur structure particulière, combinaison de deux parties, hydrophobe et hydrophile, les tensioactifs peuvent faciliter et accentuer le pouvoir émulsifiant, dispersant, étalant, mouillant, solubilisant, et/ou d'autres propriétés intervenant dans la formulation des produits agrochimiques (phytosanitaires). En théorie, les tensioactifs utilisés en agrochimie peuvent agir à différents niveaux:

- À la surface de la feuille : entant qu'agents mouillants, ils diminuent la tension superficielle et permettent l'étalement sur la surface. Le rôle majeur des mouillants s'exprime lors de l'impact des gouttelettes du produit phytosanitaire sur la feuille. En effet, cet étalement augmente l'adhésion du produit à la surface foliaire et donc la probabilité d'accrochage. A l'échelle de la plante entière, on observe une rétention plus élevée du produit, d'où le nom d'effet mouillant [29].
- Sur les membranes et dans les cellules sous-jacentes de la cuticule, entant qu'activateur ou pénétrant. Certains tensioactifs favorisent la pénétration foliaire de différents produits. Des études sur des cuticules isolées des feuilles ont mis en évidence ce phénomène [30-35]. Enfin, les tensioactifs peuvent agir sur les transferts dans la plante augmentant les déplacements de l'eau ou des solutions aqueuses des produits phytosanitaires le long des parois cellulaires, comme montre la figure 1.8 suivante.

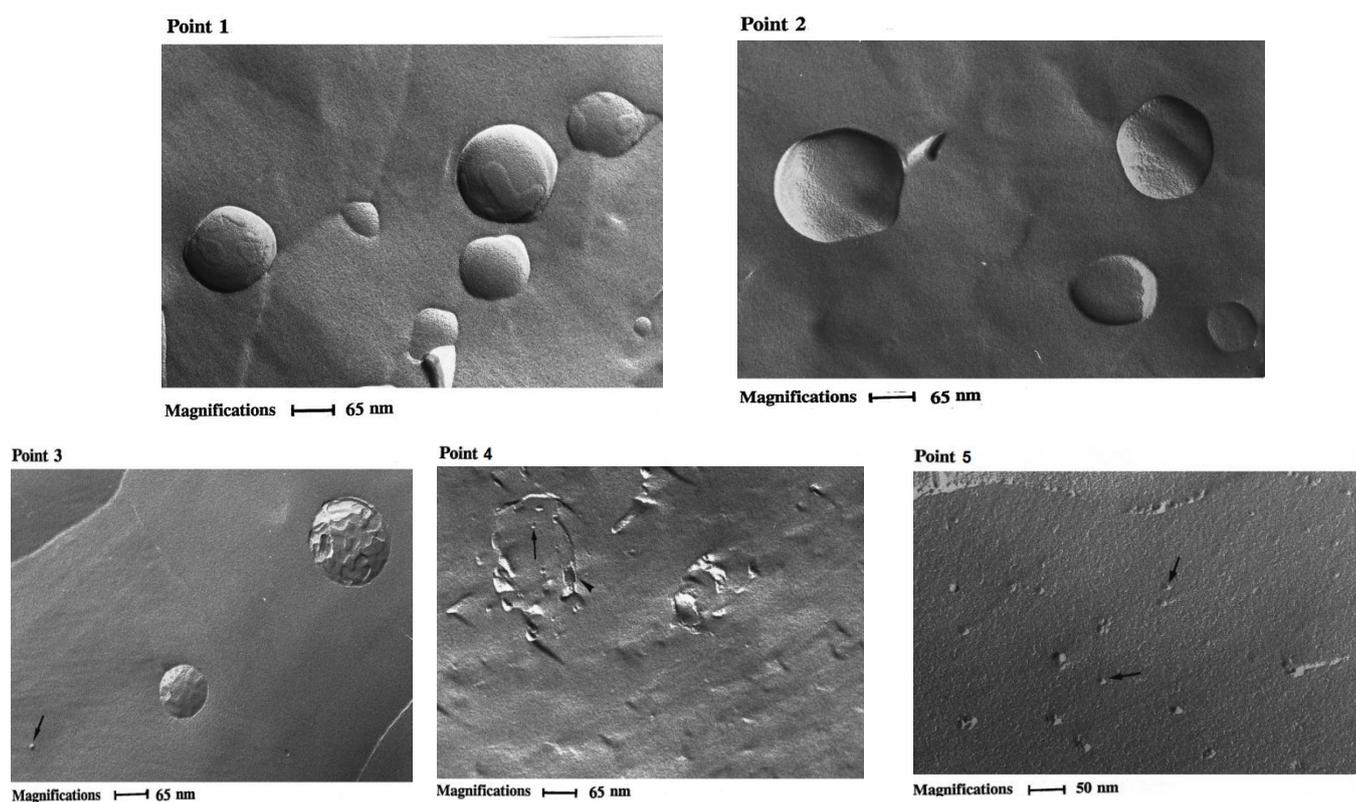


**Figure I.7 : Coupe transversale de la cuticule et paroi cellulaire de l'épiderme supérieur [36]**

En résumé, les tensioactifs peuvent agir de plusieurs manières avec les surfaces végétales :

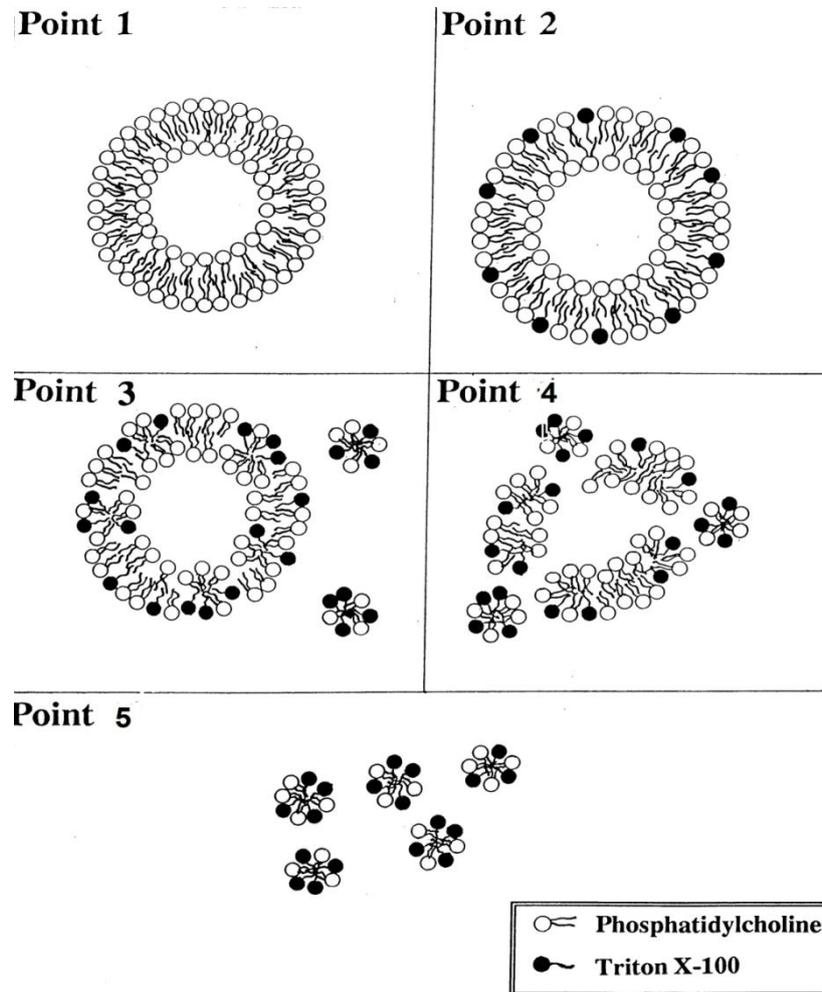
- Abaissement de la tension superficielle des liquides et augmentation de la rétention sur les surfaces mouillées ;
- La partie lipophile peut interagir avec les surfaces lipophiles ;
- La partie hydrophile peut fixer de l'eau, ainsi que, probablement, la zone de cuticule qui est à son contact ;
- La partie lipophile peut interagir avec les cires de la cuticule, constituant la bicouche lipidique des membranes cellulaires, et favoriser la diffusion de diverses matières [36].

Des observations des interactions entre un tensioactif nonionique et la surface d'une bicouche lipidique, menées par microscopie électronique [37], présentées sur la figure IV.8 montrent les étapes de la solubilisation des lipides par le tensioactif.



**Figure IV.8 : Interactions séquentielles tensioactif-bicouche lipidique observées par microscopie électronique**

Ces étapes sont schématisées sur la figure IV.9 suivante.



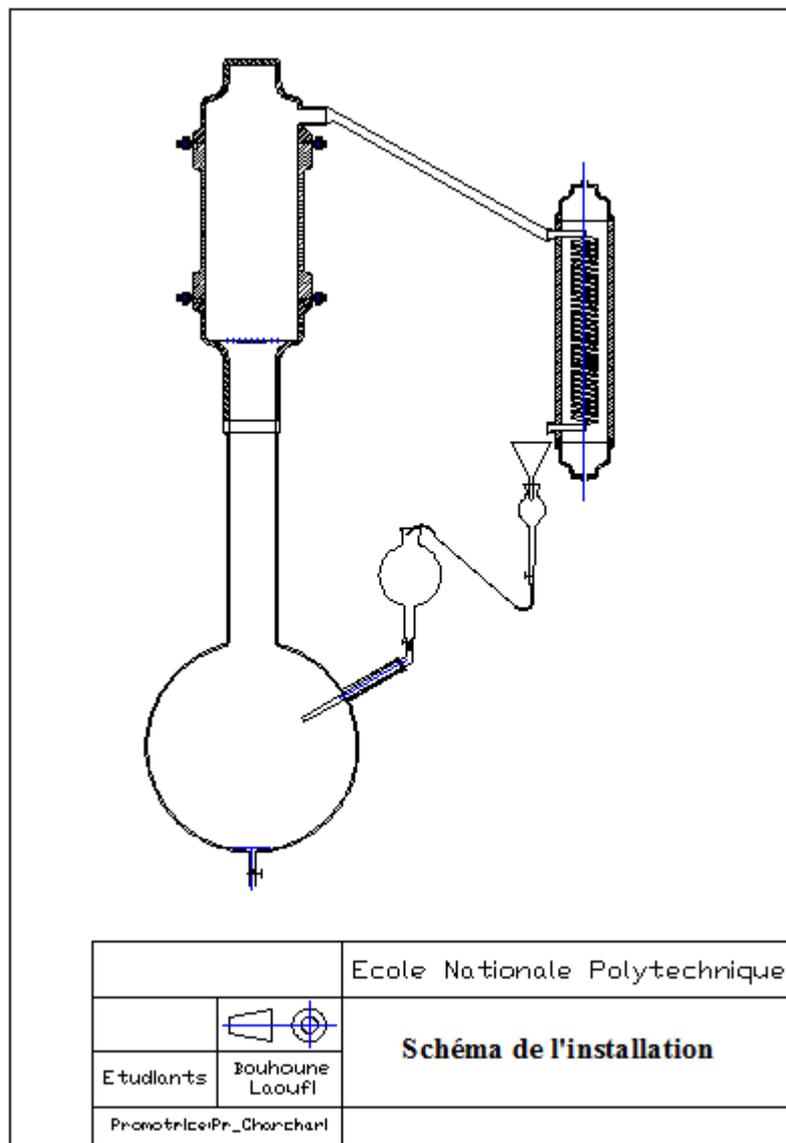
**Fig.IV.9 : Interactions tensioactif – bicouche lipidique et formation des micelles**

Lorsque les molécules du tensioactif sont mises en contact avec la bicouche lipidique, ils pénètrent dans celle-ci (point 2). Des micelles mixtes commencent à se former et après le détachement de certaines d'entre elles, des perforations apparaissent dans la bicouche lipidique (point 3). Enfin, le nombre des micelles détachés augmente de plus en plus (Point 4) jusqu'à la dissolution complète de la bicouche lipidique par le tensioactif (Point 5).

## **Chapitre II**

**Conception et réalisation  
de l'installation semi pilote  
d'entraînement à la vapeur d'eau**

Nous avons conçu et réalisé une installation d'extraction des huiles essentielles par entraînement à la vapeur d'eau, à échelle semi-pilote. Des éléments de récupération en verre spécial (EIVS) ont été utilisés et la taille des différents équipements a été imposée par leur disponibilité. L'installation est schématisée sur la figure II.1 suivante.



**Figure II.1 : Schéma de l'installation**

Elle est constituée d'une chaudière génératrice de vapeur, d'un extracteur, d'un condenseur, d'un décanteur et d'un système de cohobage.

### II.1. Chaudière génératrice de vapeur

La chaudière génératrice de vapeur, schématisée à la figure II.2, est un ballon de capacité de 20 L. Il est surmonté, à sa partie centrale supérieure, d'une sortie de vapeur cylindrique. La partie inférieure du ballon se termine par une conduite de forme cylindrique, sur laquelle est placé un robinet servant à l'alimentation en eau et à la vidange de la chaudière. Le ballon est muni, sur sa partie supérieure latérale, d'une conduite, afin d'assurer le cohobage.

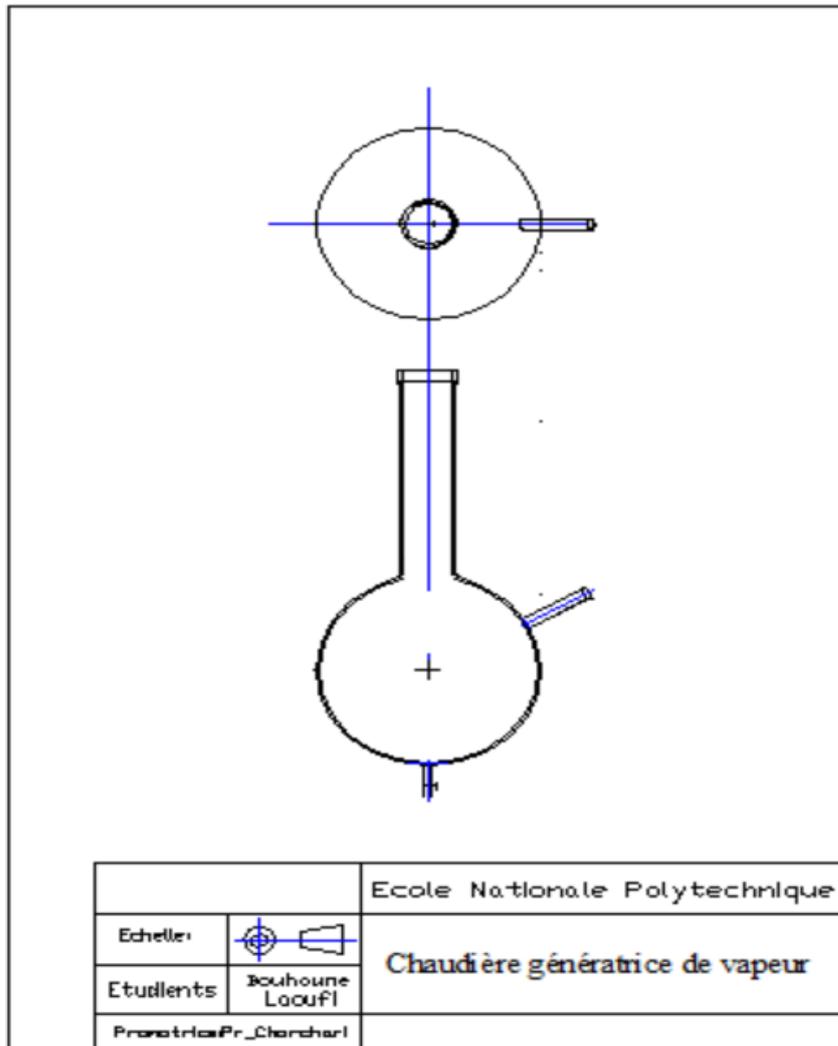
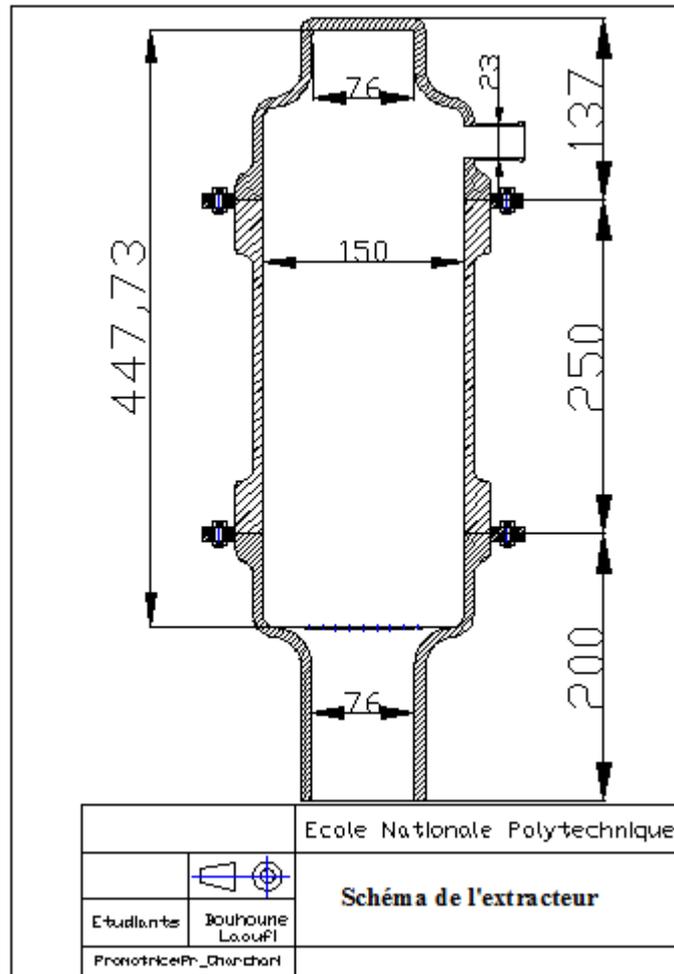


Figure II.2 : Chaudière génératrice de vapeur

Le chauffage est assuré par deux calottes chauffantes, couvrant la partie supérieure et inférieure du ballon.

**II.2. Extracteur**

L'extracteur, schématisé à la Figure II.3, a été réalisé en assemblant trois éléments : un cylindre, constituant le corps principal (Figure II.4), et deux cloches, l'une reliée à la partie inférieure et l'autre, à la partie supérieure du cylindre.



**Figure II.3 : Schéma de l'extracteur**

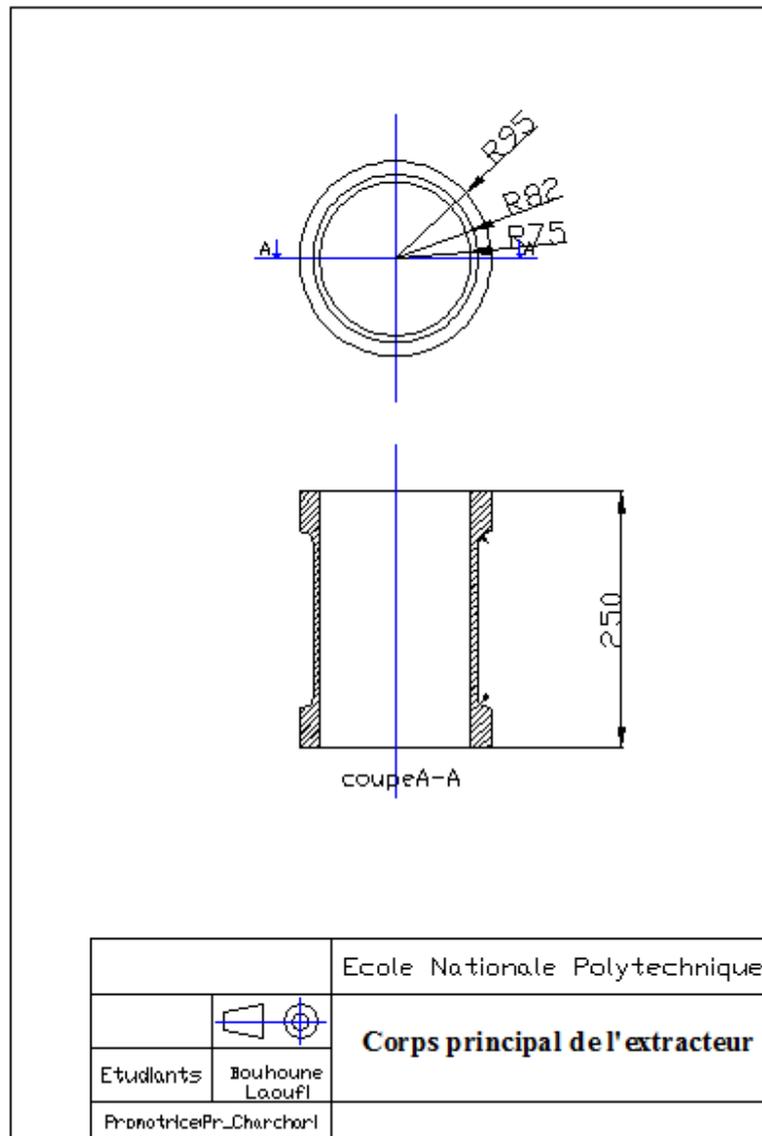


Figure II.4 : Corps principal de l'extracteur

La cloche inférieure, présentée à la figure II.5, se terminant par une partie cylindrique, est reliée au col central du ballon-chaudière.

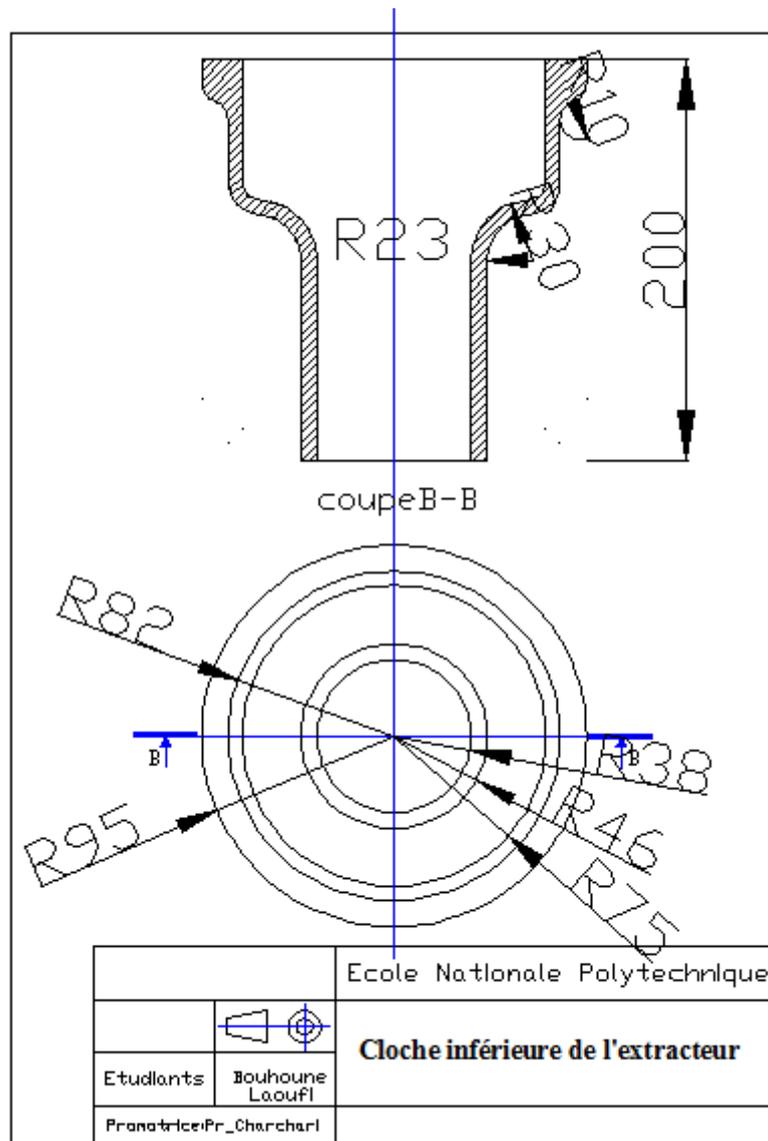


Figure II.5 : Cloche inférieure de l'extracteur

La cloche supérieure, présentée à la figure II.6, est munie d'une conduite latérale, servant à l'évacuation des vapeurs ascendantes.

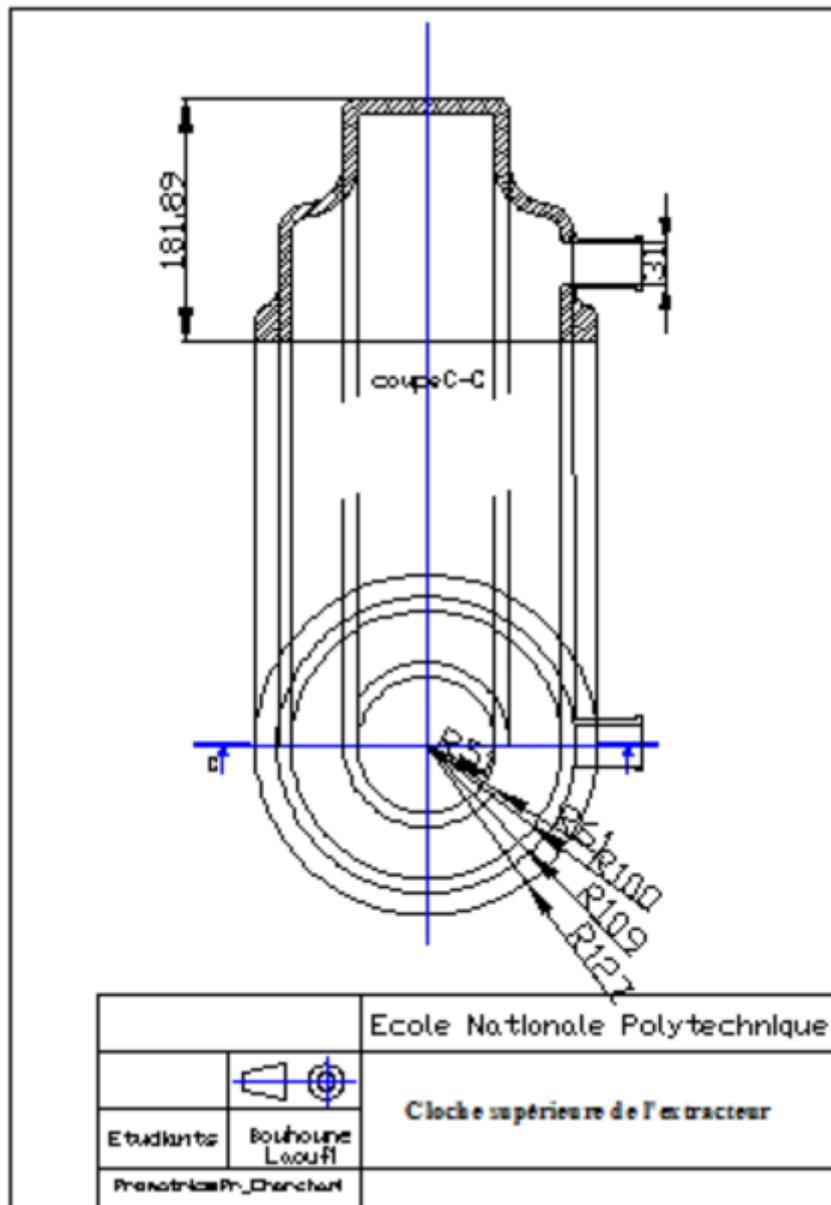


Figure II.6 : Cloche supérieure de l'extracteur

L'étanchéité de l'assemblage des différentes parties de l'extracteur est assurée par des joints en téflon.

Le flux de vapeur, généré dans le ballon-chaudière, passe dans l'extracteur à travers un distributeur de vapeur en téflon, dont le taux de vide est de 17 % et qui joue le rôle de support de la matière végétale. Ce dernier est présenté à la figure II.7 suivante.

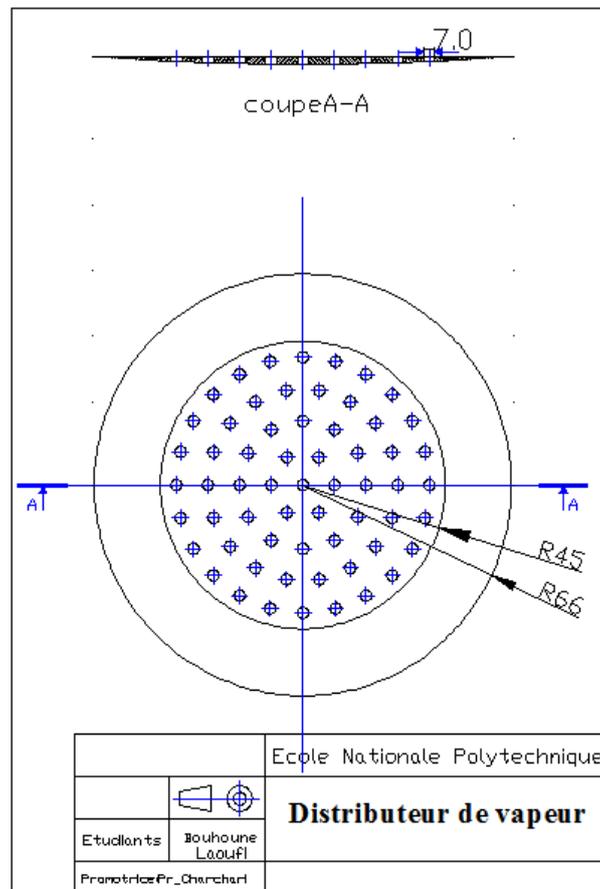


Figure II.7 : Distributeur de vapeur

Le rapport hauteur/diamètre de l'extracteur, ainsi conçu et réalisé, est de 3. Son volume utile a été estimé à 5,48 litres.

L'isolation thermique de l'extracteur est réalisée à l'aide de trois rubans chauffants (Figure II.8), enveloppant, respectivement, le corps de l'extracteur et les cloches inférieure et supérieure.

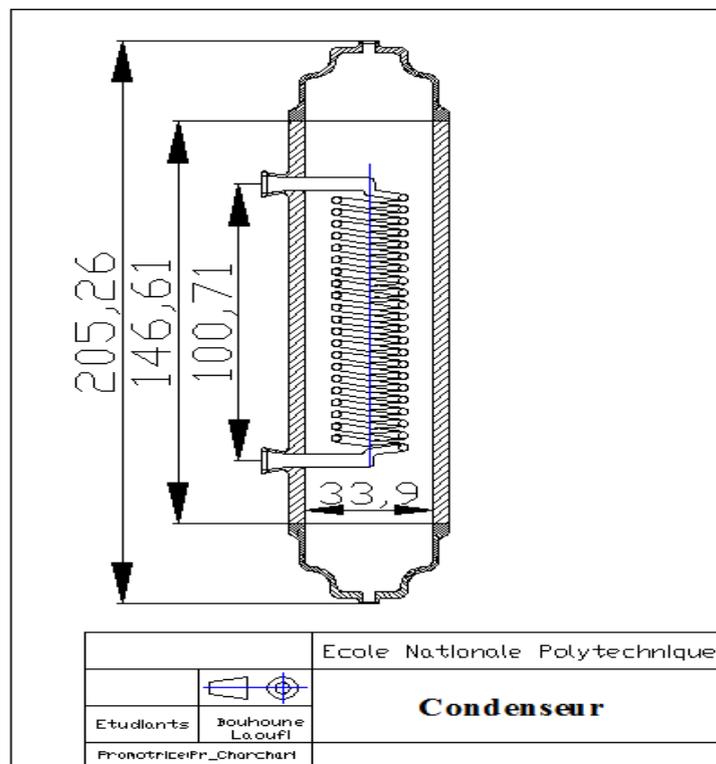


**Figure II.8 : Ruban chauffant**

Par ailleurs, l'utilisation d'un, de deux ou des trois rubans a permis de faire varier le débit de vapeur.

### II.3. Condenseur

Le condenseur est tubulaire à serpentin, constitué de deux tubes enroulés. Les vapeurs venant de l'extracteur sont envoyées dans le serpentin, alors que l'eau de refroidissement circule entre le serpentin et les parois du condenseur.



**Figure II.7 : Condenseur**

Le diamètre des tubes du serpentin est de 9 mm, le diamètre du serpentin extérieur est de 68 mm, celui du serpentin intérieur de 35 mm. Le nombre de spires de chaque serpentin est de 22. La surface d'échange offerte par le système ainsi obtenu est de 0,20 m<sup>2</sup>.

#### II.4. Décanteur et système de cohobage

Dans les installations industrielles, la séparation des deux phases, huile essentielle et eau, issues de l'entraînement à la vapeur d'eau se fait dans un vase florentin, dont le fonctionnement est basé sur la différence des densités et l'immiscibilité des huiles essentielles et l'eau [38]. Une ampoule à décanter, de capacité 250 ml, a été utilisée tant que vase florentin. Pour assurer le retour des eaux de distillation dans le ballon chaudière, celle-ci a été reliée, par un tuyau en silicone, à une ampoule à couler. Cette dernière est fixée sur le col latéral du ballon à l'aide d'un réducteur rodé, se terminant par un tube incliné, pour éviter le contact avec les parois du ballon et, par conséquent, le choc thermique entre les eaux de distillation froides venant du décanteur et les parois chaudes du ballon. L'extrémité du tube, par lequel les eaux de distillation s'écoulent, est située au dessus du niveau d'eau.

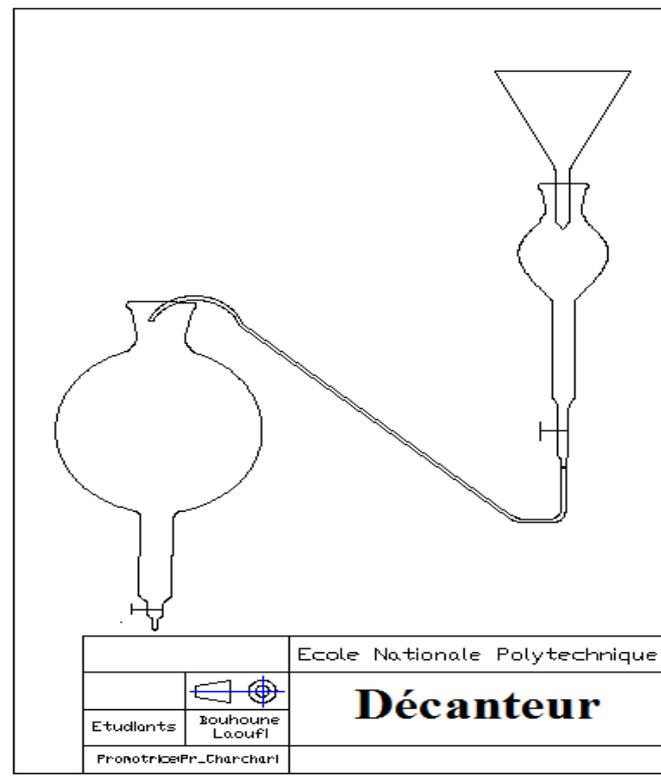


Figure II.8: Décanteur

La dénivellation des deux ampoules permet l'évacuation en continu de l'eau du décanteur. Les débits d'écoulement d'eau sont réglés à l'aide des robinets des deux ampoules.

# **Chapitre III**

## **Matériels et méthodes**

### III.1. Matière végétale

#### III.1.1. *Salvia officinalis* L.

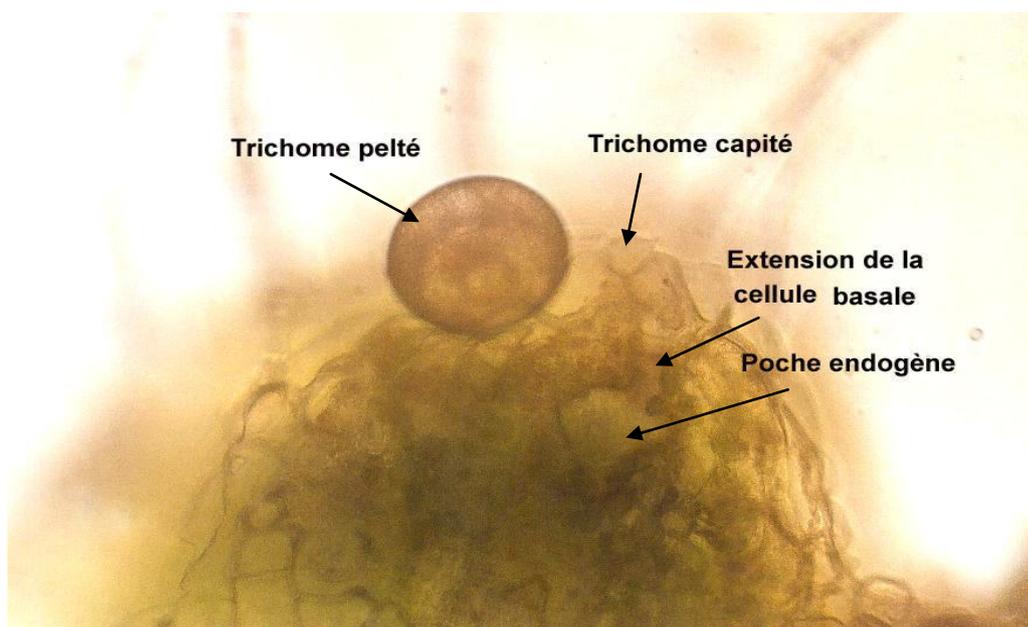
La matière végétale utilisée dans cette étude est la sauge officinale ou *Salvia officinalis* L. de la famille botanique des *Lamiacées*. C'est un sous-arbrisseau de 30-50 cm d'hauteur, très rameux, très aromatique. C'est une plante très ramifiée, aux tiges de section carrée, à la base lignifiée. Les feuilles pétiolées sont vert-pâle, veloutées, oblongues. Les fleurs, sur des hampes florales érigées, sont regroupées en petits glomérules [39].



**Figure III.1 : Vue d'ensemble de *Salvia officinalis* L. [39]**

L'habitat de la sauge est les lieux secs et arides de la région méditerranéenne de l'Europe et de l'Afrique du Nord. [39]

La synthèse et l'accumulation de l'huile essentielle s'effectuent dans des sites exogènes, et dans des poches, sites endogènes. Ces dernières ont été récemment mis en évidence par observations au microscope photonique des coupes de la feuille et de la tige de la plante [40], comme montre la figure III.1 suivante.



**Figure III.2 : Coupe dans la feuille de *Salvia officinalis* L. (Gx80)**  
Trichome pelté et trichome capité du type I avec une extension  
reliant la cellule basale à une cavité endogène [40]

Le matériel végétal utilisé, constitué des feuilles et des tiges des sommités aériennes de la plante non fleurie, a été récolté à la mi-mars 2010 et provient d'un lot cultivé au Jardin d'essais d'Alger. La plante a été identifiée à l'herbarium de l'Institut National d'Agronomie d'Alger, comme étant *Salvia officinalis* L.

### III.1.2. Echantillonnage

L'échantillonnage est une opération préalable à l'extraction de l'huile essentielle, visant la préparation des échantillons représentatifs d'un lot de matière végétale, de mêmes propriétés moyennes.

Nous souhaitons toujours, en pratique, pouvoir tirer des conclusions valides à propos de groupes étendus ou d'objets. Au lieu de considérer le groupe en entier, dit population, on est conduits à n'envisager qu'une petite partie de celui-ci, que l'on appelle échantillon. Nous le faisons dans le but d'établir certains faits concernant la population, à partir de résultats obtenus en étudiant l'échantillon ; c'est le procédé de l'inférence statistique et le processus de choix de l'échantillon est l'échantillonnage. Afin que les conclusions de la théorie de l'échantillonnage et de l'inférence statistique soient valables, les échantillons choisis doivent être représentatifs de la population.

Pour obtenir un échantillon représentatif, on procède à un échantillonnage aléatoire. Ce qui revient à considérer que chaque élément de la population a une chance égale d'appartenir à un même échantillon [41].

L'utilisation des échantillons représentatifs d'un lot mère de matière végétale, constitué des feuilles et des tiges, de forme et de poids différents, est indispensable, car lors de son conditionnement, ces derniers se répartissent de manière aléatoire. Pour avoir une masse ou un échantillon qui regroupe les différents poids et formes, on a procédé à un échantillonnage comme suit :

- la masse végétale du lot mère, bien mélangée, est étalée sur toute la surface d'un carré ;
- cette masse est divisée en deux parties identiques, représentant chacune la somme des deux triangles opposés formés par les deux diagonales du carré ;
- la procédure est répétée jusqu'à l'obtention de la masse voulue [42].

### III.1.3. Détermination du taux d'humidité

Le taux d'humidité de la matière végétale a été déterminé par distillation azéotropique au xylène, dans un appareil de Dean et Stark [43], afin d'exprimer le rendement en huile essentielle par rapport à la masse de la matière végétale sèche. Ceci permettra la comparaison des rendements en huile essentielle, obtenus par différents essais, sur la même base.

### III.2. Tensioactif utilisé

Lors de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L., nous avons utilisé un tensioactif non ionique, dont ces propriétés physico-chimiques sont résumées dans le tableau III.1 suivant :

**Tableau III.1 : Propriétés physico-chimiques du tensioactif utilisé**

Aspect	Liquide visqueux clair de couleur jaune à jaune vert
Masse volumique	1,1 g/ml
Température d'ébullition	>100° C
H.L.B.	>16
CMC*	8,04.10 <sup>-5</sup> M

\*Concentration micellaire critique

Le choix de ce tensioactif est basé sur les résultats d'une étude antérieure [44] et est justifiée par le fait qu'il ne présente ni toxicité, ni caractère irritant. Il est peu coûteux, sans goût et sans odeur, parfaitement soluble dans l'eau et complètement biodégradable en aérobiose et en anaérobiose. Grâce à ces qualités il est utilisé en microbiologie et en industrie alimentaire.

### III.3. Protocole expérimental d'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.

L'extraction, par entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle semi pilote, de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* en présence de tensioactif, a été réalisée selon un protocole expérimental que nous avons mis au point, en se basant sur des travaux antérieurs [45].

L'échantillon représentatif de matière végétale, préalablement pesé, est immergé dans un volume précis de la solution aqueuse de tensioactif de concentration connue et macéré pendant 24 heures. Il est ensuite introduit dans l'extracteur et subit un entraînement à la vapeur d'eau avec cohobage, pendant 4 heures. Au cours de l'extraction, le débit de vapeur est contrôlé, en mesurant le volume des eaux de distillation, récupéré dans le décanteur, en unité de temps. L'huile essentielle est séparée des eaux de distillation par décantation et pesée. Le rendement en huile est exprimé, en pourcents, par rapport à la masse de la matière végétale sèche.

### III.4. Plan factoriel à deux niveaux de trois paramètres

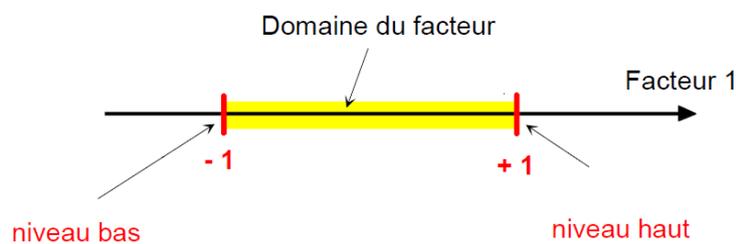
Les plans d'expériences permettent d'organiser au mieux les essais qui accompagnent une recherche scientifique ou des études industrielles [46]. Ils sont applicables à de nombreuses disciplines et à toutes les industries à partir du moment où l'on recherche le lien qui existe entre une grandeur d'intérêt,  $y$ , et des variables,  $x_i$ . Il faut penser aux plans d'expériences si l'on s'intéresse à une fonction du type  $y=f(x_i)$ .

Avec les plans d'expériences on obtient le maximum de renseignements avec un minimum d'expériences. Pour cela, il faut suivre des règles mathématiques et adopter une démarche rigoureuse [47]. Il existe de nombreux plans d'expériences adaptés à tous les cas rencontrés par un expérimentateur.

La compréhension de la méthode des plans d'expériences s'appuie sur deux notions essentielles, celle d'*espace expérimental* et celle de *modélisation mathématique* des grandeurs étudiées.

### III.4.1. Notion d'espace expérimental [46]

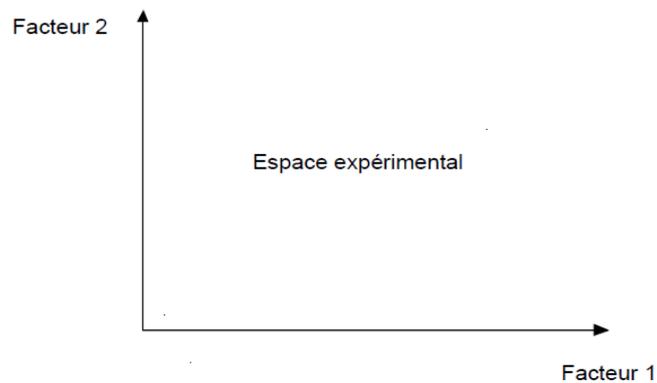
Un expérimentateur qui lance une étude s'intéresse à une grandeur qu'il mesure à chaque essai. Cette grandeur est appelée la *réponse*, ou grandeur d'intérêt. La valeur de cette grandeur dépend de plusieurs variables ou facteurs. La réponse dépend, donc, d'un ou de plusieurs facteurs. Le premier facteur peut être représenté par un axe gradué et orienté (Figure III.1). La valeur donnée à un facteur pour réaliser un essai est appelée *niveau*. Lorsqu'on étudie l'influence d'un facteur, en général, on limite ses variations entre deux bornes. La borne inférieure est le niveau bas, la borne supérieure est le niveau haut.



**Figure III.1 : Domaine du facteur**

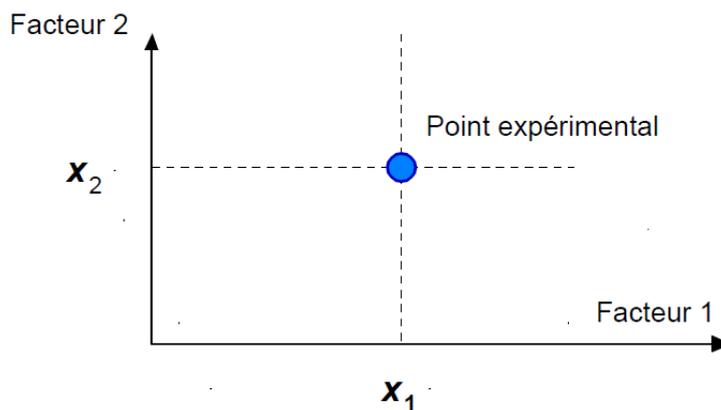
Le niveau bas du facteur est noté par  $-1$  et le niveau haut par  $+1$ . Le domaine de variation du facteur est constitué de toutes les valeurs comprises entre le niveau bas et le niveau haut. L'ensemble de toutes les valeurs que peut prendre le facteur entre le niveau bas et le niveau haut, s'appelle le domaine de variation du facteur ou plus simplement le *domaine* du facteur.

S'il y a un second facteur, il est représenté, lui aussi, par un axe gradué et orienté. On définit, comme pour le premier facteur, son niveau haut, son niveau bas et son domaine de variation. Ce second axe est disposé orthogonalement au premier. On obtient ainsi un repère cartésien qui définit un espace euclidien à deux dimensions. Cet espace est appelé espace expérimental (Figure III.2).



**Figure III.2: Espace expérimental**

Le niveau  $x_1$  du facteur 1 et le niveau  $x_2$  du facteur 2 peuvent être considérés comme les coordonnées d'un point de l'espace expérimental (Figure III.3). Une expérience donnée est alors représentée par un point dans ce système d'axes. Un plan d'expériences est représenté par un ensemble de points expérimentaux.



**Figure III.3: Point dans l'espace expérimental**

Le regroupement des domaines des facteurs définit le domaine d'étude. Ce domaine d'étude est la zone de l'espace expérimental choisie par l'expérimentateur pour faire ses essais. Une étude, c'est-à-dire, plusieurs expériences bien définies, est représentée par des points répartis dans le domaine d'étude (Figure III.4).

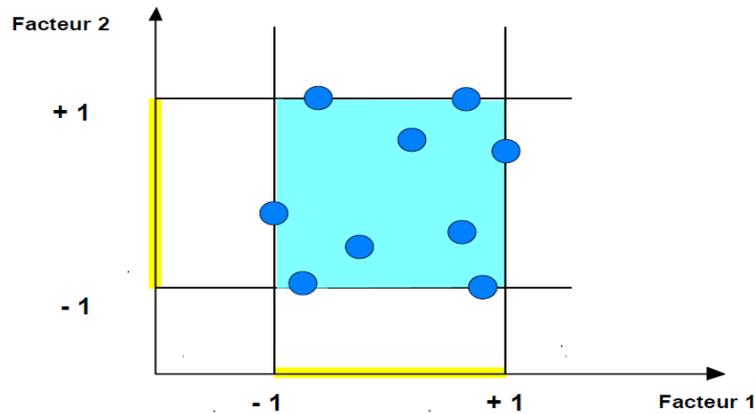


Figure III.4: Domaine d'étude

Les points expérimentaux sont disposés dans le domaine d'étude défini par l'expérimentateur. Les niveaux  $x(i)$  représentent les coordonnées d'un point expérimental et  $y$  est la valeur de la réponse en ce point. On définit un axe orthogonal à l'espace expérimental et on l'attribue à la réponse. La représentation géométrique du plan d'expériences et de la réponse nécessite un espace ayant une dimension de plus que l'espace expérimental. Un plan à deux facteurs utilise un espace à trois dimensions pour être représenté : une dimension pour la réponse, deux dimensions pour les facteurs.

A chaque point du domaine d'étude correspond une réponse. A l'ensemble de tous les points du domaine d'étude correspond un ensemble de réponses qui se localisent sur une surface appelée la surface de réponse (Figure III.5).

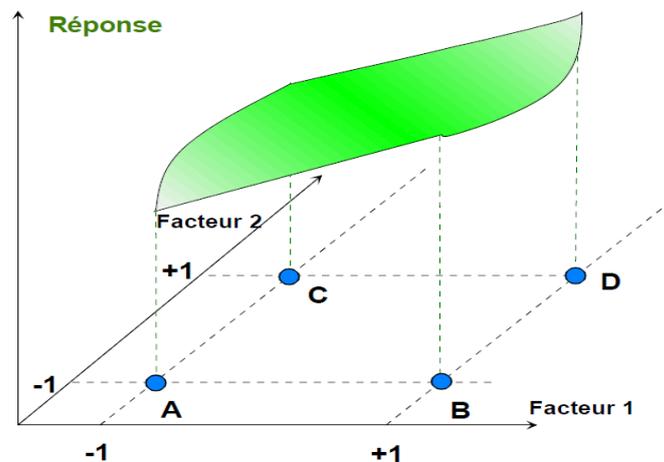


Figure III.5: Surface de réponse

Le nombre et de l'emplacement des points d'expériences est le problème fondamental des plans d'expériences. On cherche à obtenir la meilleure précision possible sur la surface de réponse tout en limitant le nombre d'expériences.

Les réponses associées aux points du domaine d'étude forment la surface de réponse. Les quelques réponses mesurées aux points du plan d'expériences permettent de calculer l'équation de la surface de réponses.

### III.4.2. Notion de modélisation mathématique

On choisit a priori une fonction mathématique qui relie la réponse aux facteurs. On prend un développement limité de la série de Taylor-Mac Laurin [46]. Les dérivées sont supposées constantes et le développement prend la forme d'un polynôme de degré plus ou moins élevé :

$$Y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \dots + \sum a_{ii} x_i^2 + a_{ij..z} x_i x_j \dots x_z \quad (\text{III.1})$$

Dans cette expression :

Y est la réponse ou la grandeur d'intérêt. Elle est mesurée au cours de l'expérimentation et est obtenue avec une précision donnée.

$x_{i(j \text{ ou } z)}$  représente le niveau attribué au facteur i(j ou z) par l'expérimentateur pour réaliser un essai. Cette valeur est parfaitement connue. On suppose même que ce niveau est déterminé sans erreur (hypothèse classique de la régression).

$a_0$  est la valeur de la réponse au centre du domaine d'étude.

$a_{i(j..z)}$  est l'effet individuel (ou effet principal) du facteur i(j ... z).

$a_{ij}$  est l'interaction entre les facteurs i et j.

L'intérêt de modéliser la réponse par un polynôme est de pouvoir calculer ensuite toutes les réponses du domaine d'étude sans être obligé de faire les expériences. Ce modèle est appelé modèle postulé ou modèle à priori.

### III.4.3. Plans factoriels complets à deux niveaux

Ces plans possèdent un nombre de niveaux limité à deux pour chaque facteur. Toutes les combinaisons de niveaux sont effectuées au cours de l'expérimentation. Ces plans peuvent être utilisés indistinctement pour les variables continues et pour les variables discrètes [46].

Un plan comportant  $k$  facteurs à deux niveaux est noté  $2^k$ , où  $k$  en exposant signifie qu'il y a  $k$  facteurs étudiés, le 2 indique le nombre de niveaux par facteur.

Dans notre étude, le plan factoriel utilisé est un plan à deux niveaux de deux facteurs,  $2^2$ , et le modèle mathématique comporte 4 coefficients :

$$Y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{12}x_1x_2 \quad (\text{III.2})$$

Une fois le modèle établi, on doit procéder à une évaluation statistique pour vérifier sa validité, en utilisant des tests statistiques.

#### III.4.5. Coordonnées centrées réduites

Lorsque l'on étudie un facteur  $X$ , on définit toujours, en fonction des besoins de l'étude, une valeur inférieure et une valeur supérieure.

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.

Soient :

$X_1, X_2, \dots, X_n$ : les  $n$  variables.

$X_{1i}, X_{2i}, \dots, X_{ni}$ : leurs niveaux inférieurs.

$X_{1s}, X_{2s}, \dots, X_{ns}$ : leurs niveaux supérieurs.

Le nouveau système de coordonnées a pour origine le point de coordonnées :

$$(X_{1i} + X_{1s})/2 = X_{1m}; (X_{2i} + X_{2s})/2 = X_{2m}; \dots (X_{ni} + X_{ns})/2 = X_{nm}.$$

Les variables réduites s'écrivent sous la forme :

$$x_1 = (X_1 - X_{1m}) / \Delta X_1; x_2 = (X_2 - X_{2m}) / \Delta X_2 \dots x_n = (X_n - X_{nm}) / \Delta X_n$$

$$\text{où : } \Delta X_1 = (X_{1s} - X_{1i})/2; \Delta X_2 = (X_{2s} - X_{2i})/2 \dots; \Delta X_n = (X_{ns} - X_{ni})/2$$

Le domaine expérimental est alors transformé, dans le nouveau système, en un hypercube centré à l'origine  $(0,0, \dots, 0)$ , dont les sommets ont pour coordonnées  $(\pm 1, \pm 1, \dots, \pm 1)$  [47].

L'intérêt des coordonnées centrées réduites est de pouvoir présenter les plans d'expériences de la même manière quels que soient les domaines expérimentaux retenus et quels que soient les facteurs. Ceci donne une grande généralité de présentation à la théorie des plans d'expériences.

### III.5. Logiciel Statgraphics Centurion XVI

STATGRAPHICS Centurion XVI est la 16<sup>ème</sup> version du logiciel STATGRAPHICS pour micro-ordinateurs [48]. La première version est apparue en 1982. C'est un logiciel d'analyse statistique et graphique largement utilisé pour les statistiques descriptives et exploratoires, les modélisations, l'amélioration de la qualité et le Six Sigma. Il contient plus de 160 procédures, dont :

- Analyses exploratoires des données
- Analyses de la variance et régressions
- Ajustements de lois
- Maîtrise Statistique des Procédés (SPC)
- Plans d'expériences
- Six Sigma
- Fiabilité et méthodes de survie
- Analyses de séries temporelles et prévision
- Méthodes multivariées.
- Méthodes non paramétriques

### III.6. Détermination des propriétés physiques et biologiques de l'huile essentielle

#### III.6.1. Densité

La densité de l'huile essentielle a été déterminée à l'aide d'un pycnomètre de 5ml à la température de 20°C, en se référant aux recommandations de la norme AFNOR NF T 75-111. [3]

#### III.6.2. Indice de réfraction

L'indice de réfraction est mesuré à l'aide d'un réfractomètre, en se reportant à la norme AFNOR NF T 75-112 [3], à la température ambiante, puis ramenés à 20°C par la formule :  $\eta_{20} = \eta_t + 0,00045 (T - 20^\circ\text{C})$  où

$\eta_{20}$  : indice à 20°C,

$\eta_t$  : indice à la température ambiante,

$\eta_t$  : indice à la température ambiante ou de mesure

T : température ambiante ou de mesure

Le produit étalons de qualité pour réfractométrie servant son ajustement est de l'eau distillée ( $\eta = 1,333$ ).

### III.6.3. Indice d'acide

L'acidité ou la teneur en acides de l'huile essentielle a été déterminée par dosage volumétrique, selon la norme AFNOR T 60 204 [3].

L'échantillon prélevé, environ 1g est dissout dans 5 ml d'éthanol 95%. Le dosage s'effectue par une solution éthanolique d'hydroxyde de potassium (KOH) 0,05N, en présence de phénolphaléine. Une coloration rose au point équivalent doit subsister quelques instants. L'indice d'acide exprimé en milligrammes de KOH, nécessaires à la neutralisation des acides libres dans un gramme d'huile essentielle, est calculé comme suit:

$$I_a = \frac{56.1 * N * (V_{KOH} - V_0)}{m}$$

Où :

$V_{KOH}$  est le volume de KOH pour atteindre la neutralité.

$V_0$ , volume de KOH pour le dosage à blanc ( $I_a$  du solvant).

N, normalité de la solution de KOH éthanolique.

m, masse de l'échantillon d'huile en g.

# **Chapitre IV**

## **Résultats et Discussion**

### IV.1. Mise en œuvre de l'installation

Après avoir conçu et réalisé l'installation, nous avons procédé à sa mise en œuvre. Les essais menés à cet effet, ont consisté en :

- Contrôle de l'étanchéité des différentes jonctions, afin d'éviter les pertes en vapeurs et liquides;
- Vérification du fonctionnement du système de cohobage ;
- Etude de l'influence du nombre des rubans chauffants sur l'évolution de débit de vapeur produite;
- Mesure des débits de vapeur à blanc (sans matière végétale) et lors de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.;

#### IV.1.1. Mesure des débits de vapeur à blanc (extracteur vide)

Le contrôle de l'étanchéité des différentes jonctions et la vérification du bon fonctionnement du système de cohobage effectués, nous avons procédé aux mesures des débits de vapeur à blanc, en utilisant un, deux et trois rubans, respectivement. Les résultats obtenus sont illustrés à la figure IV.1 suivante :

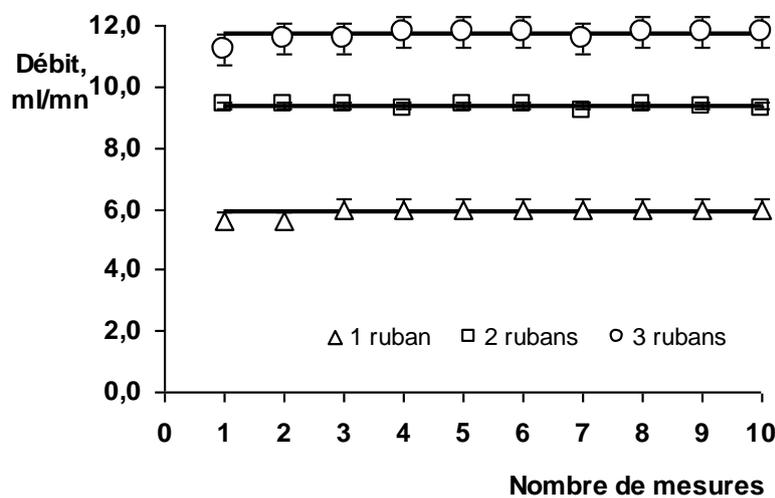


Figure IV.1 : Débits de vapeur obtenus lors des essais à blanc

Nous constatons, d'une part, que le débit de vapeur augmente avec le nombre de rubans utilisés, et d'autre part, que la variation des débits de vapeur autour leur valeur moyenne est faible.

L'analyse statistique de ces mesures, réalisée à l'aide du logiciel Statgraphics centurion XVI, est présentée dans le tableau IV.1.

**Tableau IV.1 : Analyse statistique de mesures des débits de vapeur lors des essais à blanc**

Statistiques	Nombre de rubans utilisés		
	1	2	3
<b>Nombre de mesures</b>	<b>10</b>	<b>10</b>	<b>10</b>
<b>Moyenne, ml/mn</b>	<b>5,92</b>	<b>9,35</b>	<b>11,68</b>
<b>Déviatiion standard</b>	<b>0,17</b>	<b>0,07</b>	<b>0,19</b>
<b>Coefficient de variation, %</b>	<b>2,85</b>	<b>0,76</b>	<b>1,65</b>
<b>Minimum, ml/mn</b>	<b>5,6</b>	<b>9,2</b>	<b>11,2</b>
<b>Maximum, ml/mn</b>	<b>6,0</b>	<b>9,4</b>	<b>11,8</b>
<b>Gamme, ml/mn</b>	<b>0,4</b>	<b>0,2</b>	<b>0,6</b>
<b>Intervalle de confiance pour la moyenne, ml/mn (probabilité de 95%)</b>	<b>[5,80; 6,04]</b>	<b>[9,30; 9,40]</b>	<b>[11,54; 11,82]</b>
	<b>5,92 ± 0,12</b>	<b>9,35 ± 0,05</b>	<b>11,68 ± 0,14</b>

L'analyse statistique des mesures montre que l'intervalle de confiance, pour une probabilité de 95%, est relativement restreint. Rappelons que l'intervalle de confiance signifie que, si l'on procède à des mesures répétitives d'une grandeur, 95% des valeurs mesurées se situeront dans cet intervalle.

#### **IV.1.2. Mesure des débits de vapeur lors des essais d'extraction de l'huile essentielle**

Au cours de ce travail, nous avons réalisé des essais d'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L., avec trois différents débits de vapeur, obtenus en utilisant, respectivement, un, deux et trois rubans chauffants. Plusieurs mesures du débit de vapeur ont été réalisées pendant chaque essai d'extraction.

L'analyse statistique de ces mesures, réalisée à l'aide du logiciel Statgraphics centurion XVI, est présentée dans le tableau IV.2 suivant.

**Tableau IV.2 : Analyse statistique de mesures des débits de vapeur lors de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.**

Statistiques	Nombre de rubans utilisés		
	1	2	3
Nombre de mesures	41	22	36
Moyenne, ml/mn	5,28	8,59	12,06
Déviat ion standard	0,29	0,83	0,39
Coefficient de variation, %	5,94	9,67	3,25
Minimum, ml/mn	4,99	7,18	11,2
Maximum, ml/mn	5,92	9,8	12,83
Gamme, ml/mn	0,93	2,62	1,63
Intervalle de confiance pour la moyenne, ml/mn (probabilité de 95%)	[5,18; 5,37]	[8,22; 8,95]	[11,93; 12,19]
	5,28 ± 0,09	8,59 ± 0,37	12,06 ± 0,13

En examinant les intervalles de confiance, correspondant aux trois valeurs du débit de vapeur, on observe que :

- ils sont relativement restreints .
- les valeurs moyennes des bornes inférieures et des bornes supérieures des intervalles de confiance des débits, obtenus avec 1 et 3 rubans, sont égales, respectivement, à 8,56 et 8,78 ml/mn. Ces valeurs appartiennent à l'intervalle de confiance du débit obtenu en utilisant 2 rubans. Par conséquent, on peut considérer que les niveaux inférieur (-1) et supérieur (+1), définissant le domaine du paramètre débit de vapeur, sont obtenus en utilisant, respectivement 1 et 3 rubans chauffants. Le débit, obtenu avec 2 rubans correspond au centre de ce domaine, soit au niveau 0 de ce paramètre.

## IV.2. Optimisation par planification des expériences de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.

### IV.2.1. Choix des paramètres à optimiser

Nous avons choisi d'optimiser deux des paramètres intervenant dans le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau en présence de tensioactif: le débit spécifique de vapeur et la masse du tensioactif à utiliser.

Le débit spécifique représente le débit de vapeur rapporté à la masse de la matière végétale sèche. Les valeurs optimales de ce paramètre sont à rechercher, car:

- La masse de la matière végétale à traiter a une incidence sur le tassement dans l'extracteur. Un tassement excessif ou insuffisant est à l'origine de la création des chemins préférentiels pour la vapeur, empêchant le contact intime entre celle-ci et la totalité de la matière végétale [16], et par conséquent, une diminution du rendement en huile;

- De même, un débit élevé peut créer des chemins préférentiels, ou provoquer des dysfonctionnements de type hydraulique, comme l'étranglement, se traduisant par une accumulation du liquide dans l'extracteur, s'il est insuffisant.

L'optimisation de la masse du tensioactif à utiliser est nécessaire pour des raisons économiques évidentes. Les études antérieures, menées dans ce domaine, ont concerné l'extraction par hydrodistillation des huiles essentielles en présence de tensioactif, où la matière végétale est en contact permanent avec la solution aqueuse de tensioactif, pendant toute la durée d'extraction. Nous avons mis au point un protocole expérimental, pour adapter l'extraction en présence de tensioactif au procédé d'entraînement à la vapeur d'eau.

Lors des essais d'extraction, nous avons utilisé des échantillons représentatifs de plante de taux d'humidité moyen de 15,96 %. Cette valeur est la moyenne des résultats, de deux essais, respectivement, 16,11% et 15,81%, effectués au début et au terme de la série d'expériences. On peut, donc, considérer le taux d'humidité de la plante constant et négliger son influence sur le rendement en huile essentielle.

Aussi, nous avons effectué quatre essais préliminaires, afin de tester le protocole expérimental. Deux de ces essais ont été réalisés sans addition de tensioactif, sans macération préalable dans l'eau et avec macération dans l'eau pendant 24 heures; pour les deux autres essais, la matière végétale a été macérée pendant 24 heures dans des solutions de tensioactif de concentration, respectivement, 0,5 et 2,5%. Ceci correspond aux rapports des masses de tensioactif et de matière végétale égaux, respectivement, à 0,089 et 0,446. Les quatre essais

ont été réalisés avec le même débit spécifique de vapeur, égal à 0,072 ml/g.mn. Les résultats obtenus sont réunis dans le tableau IV.3 suivant.

**Tableau IV.3: Rendements en huile essentielle, en %, obtenus par entraînement à la vapeur d'eau avec et sans tensioactif**

Essai	Sans tensioactif		Avec tensioactif Concentration, %	
	Sans macération	Avec macération	0,5	2,5
<b>R, %</b>	<b>1,26</b>	<b>1,26</b>	<b>1,31</b>	<b>1,62</b>

On constate que, d'une part, la macération dans l'eau de la matière végétale n'affecte pas le rendement en huile essentielle et, d'autre part, quelque soit la concentration du tensioactif, les rendements obtenus en sa présence sont supérieurs à ceux obtenus sans tensioactif. Par ailleurs, on observe une augmentation du rendement en huile avec l'augmentation de la concentration du tensioactif.

#### IV.2.2. Plan des expériences et établissement du modèle mathématique

Nous avons envisagé d'utiliser un plan factoriel à deux niveaux de deux paramètres, en l'occurrence, le débit spécifique de vapeur et la masse du tensioactif à utiliser, afin de décrire le comportement du système par un modèle mathématique et de rechercher, ensuite, les valeurs optimales des paramètres. Ces deux paramètres sont expérimentalement accessibles et peuvent être estimés quantitativement.

En tenant compte de la capacité de l'installation et des résultats des essais préliminaires, nous avons fixé et réuni, dans le tableau IV.4, les niveaux inférieurs, de base et supérieurs des paramètres à optimiser.

**Tableau IV.4: Niveaux inférieurs, de base et supérieurs des paramètres**

Paramètres	Dsp, ml/mn.g	M <sub>TA</sub> , g
<b>Niveau inférieur</b>	<b>0,030</b>	<b>15</b>
<b>Niveau de base</b>	<b>0,051</b>	<b>45</b>
<b>Niveau supérieur</b>	<b>0,072</b>	<b>75</b>

Ces deux paramètres indépendants, de nature et d'unités de mesure différentes, ont été remplacés par des variables réduites adimensionnelles, respectivement  $x_1$ , variable réduite du débit spécifique et  $x_2$ , variable réduite de la masse du tensioactif. Les valeurs des variables réduites  $x_1$  et  $x_2$  évoluent dans l'intervalle, allant de  $-1$  à  $+1$ . Le domaine expérimental est alors représenté, dans un repère orthonormé, par un carré, dont les coordonnées des sommets définissent les conditions opératoires des essais à réaliser. Aussi, le plan factoriel à deux niveaux des deux paramètres prévoit, dans ce cas précis, quatre essais. Par ailleurs, deux essais répétitifs ont été réalisés dans des conditions opératoires d'un point du domaine expérimental, pour les besoins de l'évaluation statistique du modèle. Les conditions opératoires des essais programmés et réalisés par la suite, ainsi que les rendements en huile obtenus, exprimés en %, sont regroupés dans le tableau IV.5 suivant.

**Tableau IV.5: Conditions opératoires des essais programmés par le plan factoriel des expériences  $2^2$  et rendements R en huile obtenus**

Paramètres réels				Variables réduites		R, %
D, ml/mn	Mmv,g*	Dsp,ml/mn.g**	M <sub>TA</sub> ,g	$x_1$	$x_2$	
8,59	300	0,034	60	-0,81	0,5	1,341
8,59	300	0,034	60	-0,81	0,5	1,337
12,06	200	0,072	15	1	-1	1,307
5,28	200	0,030	75	-1	1	1,543
12,06	200	0,072	75	1	1	1,618
5,28	200	0,030	15	-1	-1	1,110

\* Masse de matière végétale humide; \*\* Exprimé par rapport à la masse de matière végétale sèche

La variation du rendement R en huile a été exprimée par la fonction polynomiale du premier ordre en  $x_1$  et  $x_2$  (III.2). Les coefficients de régression, ont été déterminés à l'aide de Statgraphics centurion XVI. L'équation du modèle mathématique obtenu s'écrit comme suit.

$$R = 1,368 + 0,089x_1 + 0,173x_2 - 0,020x_1x_2 \quad (\text{IV.1})$$

Les valeurs des coefficients du modèle permettent d'évaluer l'influence, sur le rendement en huile, des effets individuels de chacun des paramètres étudiés et de leur interaction. Ces effets sont présentés sur les figures IV.2 et IV.3 respectivement.

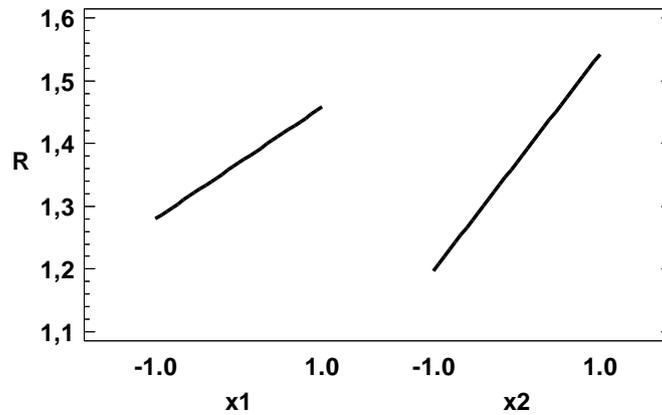


Figure IV.2 : Effets individuels des paramètres

On relève que l'effet individuel de la masse du tensioactif,  $x_2$ , sur le rendement en huile est positif et important. Quant à l'effet individuel du débit spécifique de vapeur,  $x_1$ , il est, également, positif, mais inférieur à celui de  $x_2$ .

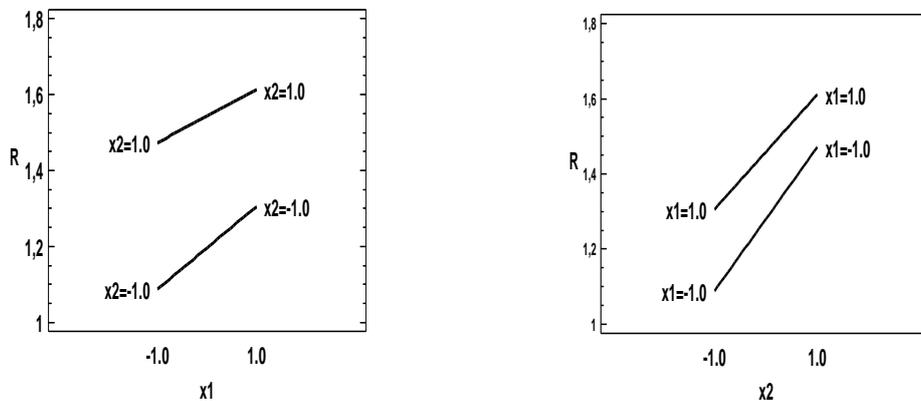


Figure IV.3 : Effet conjugué des paramètres

En examinant la figure IV.3, nous constatons que l'effet conjugué des paramètres est négatif et son impact sur le rendement en huile est faible. En effet, on observe que lorsque le débit spécifique,  $x_1$ , augmente, l'augmentation du rendement est plus importante pour les

faibles masses du tensioactif, alors que, lorsque la masse du tensioactif,  $x_2$ , augmente, l'augmentation du rendement est plus importante pour les faibles débits spécifiques. Par ailleurs, notons que les meilleurs rendements sont obtenus pour les valeurs correspondantes aux niveaux supérieurs des deux paramètres.

#### IV.2.3. Evaluation statistique du modèle

Nous avons procédé à l'évaluation statistique du modèle mathématique établi, en faisant appel aux fonctionnalités statistiques et graphiques du logiciel Statgraphics centurion XVI. Les résultats de l'évaluation statistique du modèle sont présentés dans le tableau IV.5 suivant.

**Tableau IV.5: Evaluation statistique du modèle**

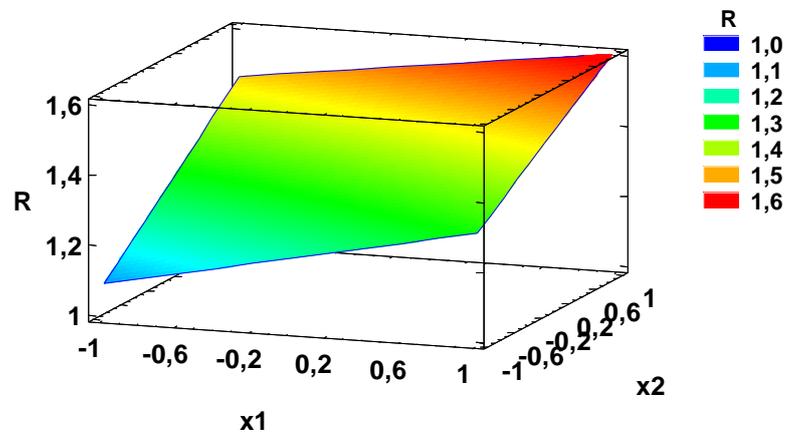
<b><math>R^2 = 93,32 \%</math></b>
<b>Erreur standard de l'estimation = 0,074</b>
<b>Erreur moyenne absolue = 0,035</b>

Ces résultats montrent que le modèle décrit correctement le comportement du système étudié, puisque d'une part, le coefficient de corrélation  $R^2$  est supérieur à 90% et, d'autre part, l'erreur moyenne absolue et l'erreur standard de l'estimation sont acceptables.

#### IV.2.4. Optimisation par la surface de réponse

La structure du modèle mathématique choisi, ne permettant pas la localisation de l'optimum dans le domaine expérimental par les méthodes analytiques, nous avons eu recours à la méthodologie d'optimisation par la surface de réponse.

La surface de réponse est un graphique représentant la réponse prévue du système étudié, comme une fonction des deux paramètres expérimentaux [48]. La figure IV.2 suivante présente la surface de réponse estimée.



**Figure IV.2: Surface de réponse estimée**

L'examen de la surface de réponse montre bien une amélioration de rendement en huile essentielle lorsque le débit spécifique et la masse du tensioactif augmentent.

En effet, lorsque le débit spécifique diminue les rendements obtenus sont faibles pour les raisons suivantes :

- le débit de vapeur devient insuffisant pour entraîner la totalité de l'huile essentielle.
- le tassement de la matière végétale augmente, ce qui provoque la création des chemins préférentiels pour la vapeur et par conséquent le contact intime entre la vapeur et la totalité de la masse de matière végétale n'est pas assuré.

L'effet positif de la masse du tensioactif sur le rendement en huile pourrait être attribué au fait que ce dernier solubilise la bicouche lipidique des membranes cellulaires, les cires épicuticulaires et la cutine de la cuticule et favorise la diffusion de l'huile essentielle localisée dans les poches endogènes vers la surface des organes de la plante, pour y être entraînée par le flux de vapeur d'eau.

Enfin, l'examen de la surface de réponse montre que le meilleur rendement en huile est obtenu dans les conditions opératoires définies au point du domaine expérimental, ayant les coordonnées  $[x_1, x_2] = [+1, +1]$ . Par conséquent, les conditions opératoires, correspondant à ce point de l'espace des variables réduites, sont désignées par le logiciel Statgraphics

centurion XVI comme optimales et le rendement de 1,62%, obtenu en ce point, est le rendement maximal que l'on peut atteindre dans le domaine expérimental choisi.

### IV.3. Propriétés physico-chimiques de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.

Les propriétés physico-chimiques, en l'occurrence, l'aspect, l'indice de réfraction et l'indice d'acide, ont été déterminées pour les échantillons d'huile essentielle obtenus de l'ensemble d'essais réalisés, y compris les essais préliminaires sans tensioactif. Quant à la densité, elle a été mesurée pour ceux, dont le volume d'huile a été suffisant.

L'huile essentielle de *Salvia officinalis* L. est un liquide mobile, limpide, de couleur marron clair et d'odeur caractéristique camphrée.

La densité de l'huile essentielle, mesurée à la température de 20°C, pour quelques uns des échantillons, est de 0,914 et est conforme à la norme AFNOR, qui fixe les limites entre 0,910 et 0,930 [3].

L'indice de réfraction de l'huile essentielle, mesuré à la température de 20°C utilisant la raie D de sodium, s'est avéré le même pour tous les échantillons et égal à 1,4685. Cette valeur est conforme à la norme AFNOR, car appartient à l'intervalle 1,4580-1,4740, fixé par cette norme [3].

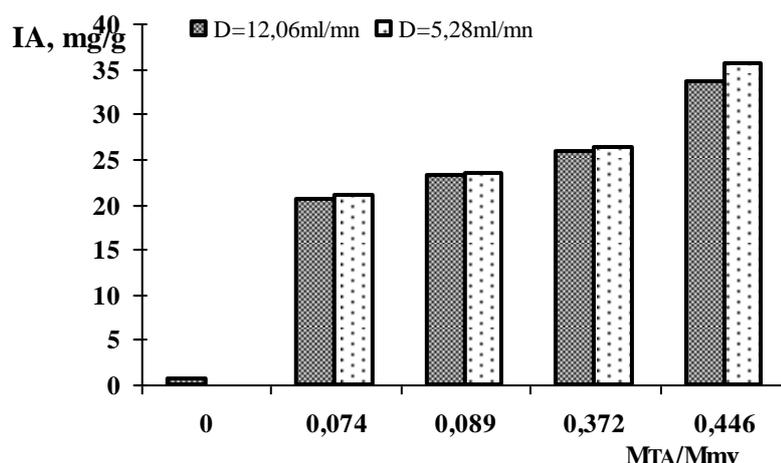
Nous avons porté une attention particulière à l'indice d'acide des huiles essentielles obtenues, car sa valeur pourrait nous renseigner sur l'interaction tensioactif-membranes cellulaires. Rappelons que la valeur de cet indice exprime les milligrammes de KOH nécessaires à la neutralisation des acides libres contenus dans un gramme d'huile [3]. Par conséquent, un indice d'acide élevé de l'huile essentielle signifierait la présence d'acides carboxyliques entraînés à la vapeur d'eau, provenant de l'hydrolyse des esters (lipides) issus de la bicouche lipidique suite à la solubilisation de celle-ci par le tensioactif.

A cet effet, nous avons réalisé des essais d'extraction de l'huile essentielle avec deux différents débits de vapeur, 5,28 et 12,06 ml/mn et différents rapports masse de tensioactif/masse de matière végétale. L'indice d'acide de l'ensemble des échantillons d'huile a été déterminé selon la norme AFNOR T60 204 [3]. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau IV.6 suivant.

**Tableau IV.6 : Indices d'acide des huiles essentielles extraites avec différents débits de vapeur et différents rapports des masses du tensioactif et de matière végétale**

<b>D, ml/mn</b>	<b>5,28</b>	<b>12,06</b>
<b>M<sub>TA</sub>/M<sub>mv</sub></b>		
<b>0</b>	<b>-</b>	<b>0,6</b>
<b>0,074</b>	<b>20,7</b>	<b>20,5</b>
<b>0,089</b>	<b>23,5</b>	<b>23,1</b>
<b>0,372</b>	<b>26,4</b>	<b>25,8</b>
<b>0,446</b>	<b>35,5</b>	<b>33,6</b>

L'examen des résultats montre que seul l'indice d'acide de l'échantillon d'huile obtenu sans addition de tensioactif, 0,6 mg/g, est conforme à la norme AFNOR (IA < 2). En revanche, les huiles obtenues en présence de tensioactif ont des indices d'acide très élevés variant entre 20,5 et 35,5 et ne répondent pas à la norme AFNOR. Nous constatons, en outre, une augmentation de l'indice d'acide, d'une part, avec l'augmentation du rapport des masses du tensioactif et de matière végétale et, d'autre part, avec la diminution du débit de vapeur, comme montre la figure IV.6.



**Figure IV.6: Indices d'acide des échantillons d'huile essentielle obtenus avec différents débits de vapeur et différents rapports des masses du tensioactif et de matière végétale**

Ce résultat est intéressant, car il semble confirmer notre hypothèse, relative au rôle du tensioactif dans l'extraction de l'huile essentielle, selon laquelle le tensioactif interviendrait dans la solubilisation des cires épicuticulaires, de la bicouche lipidique des membranes cellulaires et, probablement, dans la dépolymérisation de la cutine. Les esters ainsi obtenus, hydrolyseraient, par la suite en présence de l'eau, en libérant les acides gras, parmi lesquels certains sont entraînés à la vapeur d'eau, d'autres restent solubilisés dans les eaux de distillation.

L'augmentation de l'indice d'acide avec la diminution du débit de vapeur pourrait être attribuée, à notre avis, au fait que la réaction d'hydrolyse est favorisée en présence d'eau, or la condensation des vapeurs d'eau dans l'extracteur est plus importante dans le cas où l'extraction est réalisée avec un faible débit. En effet, lors des essais, réalisés avec le débit élevé de vapeur, de 12,06 ml/mn, nous avons observé un dessèchement de la matière végétale. Rappelons que ce débit de vapeur a été obtenu, en utilisant un troisième ruban chauffant, placé sur la cloche supérieure de l'extracteur. La température des vapeurs, de 130°C, que nous avons mesuré à la sortie de l'extracteur, est à l'origine du fait que la condensation des vapeurs surchauffées ne s'effectue pas dans l'extracteur, mais dans la conduite, menant vers le condenseur et par conséquent, l'hydrolyse des esters est freinée.

L'étude de la composition chimique des huiles pourrait apporter d'autres éléments pour confirmer ou infirmer notre hypothèse.

# **Conclusion**

## Conclusion

Dans le cadre de ce travail nous avons réalisé une installation d'extraction des huiles essentielles par entraînement à la vapeur d'eau, à l'échelle semi pilote. Des éléments en verre EIVS d'anciennes installations à l'arrêt ont été utilisés. Après avoir effectué l'inventaire du matériel disponible, nous avons conçu un schéma et réalisé l'installation, permettant de mettre en œuvre le procédé d'entraînement à la vapeur d'eau des huiles essentielles avec cohobage.

Le système de cohobage a été conçu de manière à éviter le choc thermique entre les eaux de distillation de retour et les parois du ballon chaudière, constaté lors de la mise en œuvre d'une installation d'extraction solide-vapeur et solide-liquide, réalisée antérieurement [49].

En absence de régulation de la puissance de chauffe des calottes, le seul moyen d'obtenir différents débits de vapeur est l'utilisation des rubans chauffants, enveloppant le corps et les cloches inférieure et supérieure de l'extracteur. Trois débits de vapeur peuvent être ainsi obtenus, en l'occurrence, 5 ; 8,5 et 12 ml/mn, en utilisant, respectivement, un, deux et trois rubans chauffants.

L'installation a été mise en œuvre pour l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L. selon un protocole expérimental, consistant en une macération préalable de la matière végétale dans une solution aqueuse de tensioactif pendant 24 heures, suivie de l'entraînement à la vapeur d'eau, que nous avons mis au point, en tenant compte des capacités de l'installation. Les essais réalisés selon ce protocole ont fourni des rendements supérieurs à ceux obtenus lors de l'extraction en absence de tensioactif. Ce résultat nous a incités à procéder à l'optimisation, par planification des expériences, du débit spécifique de vapeur et la masse de tensioactif à utiliser. Les résultats des essais programmés et réalisés, par la suite, traités à l'aide du logiciel Statgraphics centurion XVI, ont permis d'établir un modèle mathématique, donnant l'évolution du rendement, en fonction des paramètres étudiés et de localiser les conditions opératoires maximisant le rendement en huile, dans le domaine d'étude.

Les propriétés physico-chimiques des échantillons d'huile obtenus, déterminés par des méthodes normalisés, sont conformes aux normes AFNOR, à l'exception de l'indice d'acide. L'acidité élevée des huiles, obtenues en présence de tensioactif, a permis d'élucider en partie la manière dont le tensioactif intervient lors de l'extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinalis* L.

Cette étude mérite d'être approfondie et orientée, notamment vers la détermination de la composition chimique de l'huile essentielle et l'évaluation de ses propriétés biologiques.

# **Bibliographie**

**[1]- J .BRONETON,**

Pharmacognosie, phytochimie, plantes médicinales, 8<sup>ème</sup> édition, 1993

**[2]-M. WICHTL, R. ANTON**

Plantes thérapeutiques : tradition, pratique officinale, science et thérapeutique, 2<sup>ème</sup> édition, Ed. TEC et DOC, 2003.

**[3]- Association Française de Normalisation, Huiles essentielles, Tome 2,**

Monographies relatives aux huiles essentielles. 6<sup>ème</sup> édition. AFNOR, Paris, 2000.

**[4]-P. BLACK**

The folklore and cosmetic use of various Salvia species, Chapter one, Ed White house, UK, 1997

**[5]- F. FEKAM BOYOM,**

Huiles essentielles de quelques Annonacées du Cameroun : teneur, caractéristiques chimiques et propriétés pharmacodynamiques. Thèse de doctorat, Université de Yaoundé, 1992.

**[6]- M. HURABIELLE**

Abrégé de matière médicale pharmacognosie, Ed. Masson, Paris, pp.182-194, 1981.

**[7]- Site web:** <http://www.Comment utiliser les huiles essentielles.htm>

**[8]- Site web:** <http://www.aromimport.com/proprietes.htm>

**[9]- Y. R NAVES,**

Technologie des parfums naturels ; Ed Masson, 1974.

**[10]- M. CAPON, V. COURILLEAU-HAVERLANT, C. VALETTE**

Chimie des couleurs et des odeurs, Ed. Cultures et Techniques, Nantes, 1993.

**[11]- M. CHAVANNE, G. J. BEAUDOUIN, A. JULLIEN, F. FLAMMAND**

Chimie organique expérimentale. Ed. Modulo, 1991.

**[12]- C. VON ROCHENBERG**

Theorie der gewinning und trennung der ätherischen öl durch destillation ; Selbot- Verlag Von Shimmel,432, 1910.

**[13]- C. GUENTHER**

The Essential Oils, Tome1, Ed. KRIFGER.RE, 1972.

**[14] -N. GOKHALE, Y. MASADA**

Proceedings of VII International congress of Essential Oils, 242, 1977.

**[15] -J. GARNERO**

Phytochemistry, 13, 5, 1985.

**[16]-E. GUEORGUIEV**

Technologie des produits aromatiques naturels et synthétiques, Ed. Zemizdat, Sofia, 1995

**[17]- E. BOCCHIO,**

Natural essentials oils", Parfums Cosmét. Arômes, pp61 – 63, 1985.

**[18]- J. VIDAL,**

Thermodynamique méthodes appliquées au raffinage et au génie chimique, Société des éditions Technip & IFP, Paris, pp386, 228, 1973.

**[19]- D.L. PAVIDA. G.M. LAMPMAN et G.S. KRIZ,**

Introduction to organic laboratory techniques, Ed. W.B. Sauders Co. Philadelphia, USA. pp567-573, 1976.

**[20]- S. MARTINEZ, A. MARCO,**

Application de la coalescence sur lit fibreux à la séparation des huiles essentielles en parfumerie, Thèse de l'Institut National des Sciences Appliquées, Toulouse, France, 1981.

**[21] T. TRANDAFILOV, E. MINKOV,**

Die Pharmazie, vol.24, pp. 327-328, 1969.

**[22] E. MINKOV, D. MIHAILOVA, T. TRANDAFILOV,**

Die Pharmazie, vol. 22, pp 213-215, 1967.

**[23] G. GANTCHEV, L. PETKOV, L. KOUPENOV,**

Travaux scientifiques de l'Université des Technologies Alimentaires, vol. 25, N3, pp. 193-196, Polvdiv, Bulgarie, 1978

**[24] H. BAYDAR, N. BAYDAR,**

Industrial Crops and Products, vol. 21, pp 251- 255, 2005

**[25] A. DOBREVA, N. KOVATCHEVA,**

Travaux scientifiques de l'Université des Technologies Alimentaires, vol. LV, N°1, pp 303 - 307, Polvdiv, Bulgarie, 2007.

**[26] V. STAIKOV, G. ZOTOVITCH,**

Risvista Italiana, N° 12, pp 547-549, 1963.

**[27] G. E. STOLZENBERG,**

Adjuvants and Agrochemicals. Ed. Chow P.N.P, Boca Raton, Floride, USA, Vol.1,17-25, 1989

**[28] T. F. TADROS,**

Surfactant in Agrochemicals, Vol. 54, Ed. Marcel Dekker, New York, 101-102, 1994.

**[29] C. GAUVRIT,**

Oils in plant protection: herbicide case study. Phytoma. 458(37-38), 40-42, 1994

**[30] C. GAUVRIT,**

Les principaux types d'adjuvants et leurs actions majeurs, ANPP, Seizième conférence de Columa, Reims. 445-452, 1995.

**[31] G.G. BRIGGS, R.H. BROMILOW,**

Influence of physicochemical properties on uptake and loss of pesticides and adjuvants from the leaf surface, In Interactions between adjuvants agrochemicals and target organisms, Ed. by P.J. Holloway, R. Rees, D. Stock 1-26, 1994.

[32] **J. CORET, A. CHAMEL,**

Surfactant and cuticular penetration of herbicides. *Phytoma*, 464, 15-18, 1994.

[33] **P. J. HOLLOWAY,**

Phytochemical factors influencing the adjuvant-enhanced spray deposition and coverage of foliage –applied agrochemicals, In *Interactions between adjuvants agrochemicals and target organisms* Ed. by P.J. Holloway, R. Rees, D. Stock, 83-148.

[34] **H. GÖHLICH,**

Efficient application of herbicides, In *Proceeding of the first International Weed Control Congress*. 1, 150-158, 1992.

[35 ] **R. WAGNER., L. RICHTER., J. WEIBMÜLLER., J. REINERS., K.D. KLEIN.,**

*Appl. Organometal. Chem.*, 11, 617-632, 1997.

[36] **H.D. ASHMEAD,**

An Introduction to Albion's Research in Plant Nutrition, *Proceedings of Albion's International Conference on Plant Nutrition*, 1-8, 1999.

[37] **O. LOPEZ, A. MAZA, L. CODERCH, C. LOPEZ-IGLESIAS, E. WEHRLI, J. L. PARRA,**

Direct formation of mixed micelles in the solubilization of phospholipid liposomes by Triton X-100, *FEBS Letters* 426, 314-318, 1998

[38] **E. KOLLER,**

"Aide-mémoire de l'ingénieur", Ed. DUNOD, Paris, pp58-59, 2001.

[39] **Site internet :** [www.fr.Wikipédia.org/wiki/sauge](http://www.fr.Wikipédia.org/wiki/sauge)

[40] **S. CHARCHARI, I. CHAFAA, K. KASSOUSSI, M. M. ZEKRI, A. BENHALLA, N. BOUDINA**

Glandular Trichomes, Secretory Cavities and Essential Oil of Sage (*Salvia officinalis* L.), *JEOBP*, 13 (3), pp 267-274, 2010

[41]. **P. DAGNELLE**

Principe d'expérimentation, Ed. Presses agronomiques de Gembloux, Belgique, 1981.

[42]. **Site web :** <http://fr.wikipedia.org/wiki/échantillonnage>, article de «Wikipédia, l'encyclopédie libre » 2008.

[43] **Site web** : <http://www.faidherbe.org/site/cours/dupuis/alcools.htm>.

[44] **S. CHARCHARI, M. ABDELLI**, ENP, Département de Génie chimique, Alger, Travaux en cours, 2010

[45] **A. BENHALLA, N. BOUDINA**,  
Extraction de l'huile essentielle de *Salvia officinallis* L. par hydrodistillation, Projet de fin d'études, Ecole Nationale Polytechnique, Département de Génie chimique, Alger, 2009

[46] **J. GOUPY**  
Plans d'expériences pour surfaces de réponse, Ed. Dunod, Paris, 1999

[47] **J. GOUPY, L. CREIGHTON**  
Introduction aux plans d'expériences, 3<sup>ème</sup> édition, Dunod, 2006

[48] **STATGRAPHICS® CENTURION XVI USER MANUAL**, Ed. StatPoint Technologies Inc., 2009

[49] **F. TIFAOU, M. SI MEHAND**  
Mise en œuvre d'une installation d'extraction solide/vapeur et solide/liquide à l'échelle semi-pilote, Projet de fin d'études, Ecole Nationale Polytechnique, Département de Génie chimique, Alger, 2007