

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de L'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Ecole Nationale Polytechnique



LAVALEF

Département du Génie Chimique

Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles

Mémoire de Master en Génie Chimique

Modélisation et optimisation de la consommation énergétique du procédé d'hydrodistillation

Medina MEHENAOU

Sous la direction de M. El-Hadi BENYOUSSEF, Professeur

Présenté et soutenu publiquement le 20/06/2017

Composition du jury :

Président	M. A. SELATNIA,	Professeur	ENP
Rapporteur	M. E-H. BENYOUSSEF,	Professeur	ENP
Examineurs	M. T. AHMED ZAID,	Professeur	ENP
	M. R. BOUARAB,	Professeur	ENP
Invitée	M ^{elle} I. AITAMER MEZIANE,	Doctorante	ENP

ENP 2017

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de L'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Ecole Nationale Polytechnique



LAVALEF

Département du Génie Chimique

Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles

Mémoire de Master en Génie Chimique

Modélisation et optimisation de la consommation énergétique du procédé d'hydrodistillation

Medina MEHENAOU

Sous la direction de M. El-Hadi BENYOUSSEF, Professeur

Présenté et soutenu publiquement le 20/06/2017

Composition du jury :

Président	M. A. SELATNIA,	Professeur	ENP
Rapporteur	M. E-H. BENYOUSSEF,	Professeur	ENP
Examineurs	M. T. AHMED ZAID,	Professeur	ENP
	M. R. BOUARAB,	Professeur	ENP
Invitée	M ^{elle} I. AITAMER MEZIANE,	Doctorante	ENP

ENP 2017

DEDICACE

A ma grand mère chérie,

Qui m'a accompagné par ses prières, sa douceur, puisse Dieu lui prêter longue vie et beaucoup de santé et de bonheur dans les deux vies.

A mes chers parents

*Je vous remercie pour tout le soutien et l'amour que vous me portez
Je te remercie maman spécialement pour tous les sacrifices que tu avais consenti pour mon
Instruction et mon bien être.*

*Que ce modeste travail soit l'exaucement de vos vœux tant Formulés, le fruit de vos
innombrables sacrifices, bien que je ne vous en Acquitterai jamais assez.*

A ma tante préférée Radhia,

Pour son amour, ses conseils et son soutien qui m'ont assisté dans les moments difficiles.

A mes chers et adorables frères, Amar et Amine

Que j'aime profondément.

*En témoignage de mon affection fraternelle, de ma profonde tendresse et reconnaissance, je
vous souhaite une vie pleine de bonheur et de succès et que Dieu, le tout puissant, vous
protège et vous garde.*

A mes chers oncles, tantes, leurs époux et épouses

A mes chers cousins et cousines

***A mes amis : Nadia (ma binôme et mon amie de toujours), Amira, Yasmine, Ghizlène,
Fatima, Dahmen, Hamza, Nawel, Lydia, Nouhad, Houda, en souvenir de notre sincère et
profonde amitié et des moments agréables que nous avons passés ensemble***

A tous ceux qui me sont chers et que j'ai omis de citer

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je remercie notre Dieu le tout puissant de m'avoir donné la force, la volonté et le courage afin d'accomplir cet humble travail.

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au sein du Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles, département de Génie Chimique de l'Ecole Nationale Polytechnique d'Alger, sous la direction de monsieur E.H. Benyoussef, professeur à l'Ecole Nationale Supérieure Polytechnique.

Je tiens en premier à vous remercier Mr E.H. Benyoussef, mon professeur et mon encadreur, pour l'orientation, la confiance, la patience qui ont constitué un apport considérable sans lequel ce travail n'aurait pas pu être mené au bon port. Qu'il trouve dans ce travail un hommage vivant à sa haute personnalité. Je vous remercie également d'avoir enrichi mes connaissances et de m'avoir guidé durant ces trois années. J'ai toujours admiré en vous l'ardeur, le dévouement scientifique, votre sympathie et vos qualités humaines. Veuillez trouver ici, l'expression de mon profond respect et de ma grande estime.

Je tiens à remercier monsieur A. Selatnia, professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique qui m'a fait l'honneur d'accepter la présidence du jury. Qu'il trouve ici ma profonde reconnaissance pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Je suis également reconnaissante envers :

Monsieur T. Ahmed Zaid, professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique,

Monsieur R. Bouarab, professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique, qui ont accepté d'examiner et de juger ce travail.

Melle I. Aitamer Meziane, doctorante à l'Ecole Nationale Polytechnique, invitée et amie, pour son aide précieuse.

Toute ma reconnaissance aux enseignants qui m'ont enseigné, formé et qui m'ont fourni les outils nécessaires à la réussite de mes études universitaires. Sans oublier de citer également Radia pour son aide et sa gentillesse.

Je remercie mes très chers amis et camarades du Génie Chimique pour l'ambiance conviviale qu'ils m'ont apportée et pour tous les moments inoubliables que nous avons passés ensemble.

Enfin, pour leurs encouragements et leur assistance aussi bien matérielle que morale qui nous ont permis de faire cette thèse dans de bonnes conditions, je remercie chaudement toute ma famille et tous ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à la réalisation de ce travail.

نمذجة و تحسين استهلاك الطاقة في عملية التقطير بالبخار

يهدف هذا العمل إلى تمثيل وتحسين استهلاك الطاقة في حالة عملية التقطير بالبخار من الزيوت الأساسية من أجل توفير الطاقة واحترام البيئة. والواقع أن نمذجة هذا الاستهلاك تظهر تباينا سريعا وأسيا في الطاقة خلال زمن الاستخراج وبما أن الطاقة الكهربائية موحدة طوال تلك الفترة ، فإن المستخلص الذي تم استخلاصه في بداية العملية أقل تكلفة في الطاقة من تلك التي تم الحصول عليها في نهاية الاستخراج. وميزة التحسين هو العثور على الطاقة حيث يمكننا الحصول على عائد أفضل مع استهلاك أقل للطاقة. وهكذا، وجدنا أنه ليس من المفيد تمديد وقت تقطير الزيوت الأساسية حتى استنفاد النبات وذلك لاستهلاك كبير جدا للطاقة مع نقص معتبر للغاية بالنسبة للغلة.

الكلمات الأساسية: التقطير ببخار الماء، الزيوت الأساسية، النمذجة، الحركية، استهلاك الطاقة، الأمواج الميكرومترية

Abstract

Modeling and optimization of the energy consumption of the hydrodistillation process

This work aims at representing and optimizing the energy consumption of the hydrodistillation of essential oils in order to saving energy and respecting the environment for sustainable development. Indeed, the modeling of this consumption shows a fast and exponential variation of the energy during the extraction time and as the electric power is uniform throughout the extraction time, the extract recovered in the outset of the process is less expensive in energy than that obtained at the end of extraction. And, the advantage of optimization is to find the power where we can have a better yield with less energy consumption. Thus, we found that it is not advantageous to extend the extraction time until exhaustion of the plant as energy consumption is very high for a very low yield increase.

Keywords: Hydrodistillation, essential oils, modeling, kinetic, energy consumption, microwaves

Résumé

Modélisation et optimisation de la consommation énergétique du procédé d'hydrodistillation

Ce travail a pour but la représentation et l'optimisation de la consommation énergétique de l'hydrodistillation des huiles essentielles en vue d'une économie d'énergie et du respect de l'environnement pour un développement durable. A cet effet, la modélisation de cette consommation montre une variation rapide et exponentielle de l'énergie au cours du temps d'extraction et comme la puissance électrique est uniforme pendant toute la durée d'extraction, l'extrait récupéré en début du processus s'avère moins coûteux énergétiquement que celui obtenu en fin d'extraction. D'autre part, l'avantage de l'optimisation est de trouver la puissance où nous pouvons avoir un meilleur rendement avec une moindre consommation énergétique. Nous avons constaté qu'il est avantageux de ne pas prolonger la durée d'extraction jusqu'à épuisement du végétal car la consommation énergétique augmente fortement pour un rendement qui évolue très faiblement

Mots clés : hydrodistillation, huiles essentielles, modélisation, cinétique, consommation énergétique, micro-ondes.

TABLE DES MATIERES

Liste des tableaux

Liste des figures

Liste des sigles et abréviations

Introduction générale.....12

Chapitre 1 Généralités sur les huiles essentielles 13

1.1 Introduction 14

1.2 Les huiles essentielles..... 14

1.2.1 Définition 14

1.2.2 Localisation de l'huile essentielle au sein de la plante..... 14

1.2.3 Propriétés physiques..... 15

1.3 Extraction des huiles essentielles par hydrodistillation et procédés similaires 15

1.3.1 Hydrodistillation..... 15

1.3.2 Turbodistillation 17

1.3.3 Distillation « sèche » 17

1.3.4 Extraction assistée par chauffage micro-ondes 17

1.3.4.1 Le chauffage micro-ondes 18

1.3.4.2 Hydrodistillation assistée par micro-ondes 18

1.3.4.3 Procédé d'extraction sans solvant assistée par micro-ondes (ESSAM) 19

1.4 Composition chimique..... 20

1.5 Les utilisations des huiles essentielles..... 20

1.5.1 Industrie pharmaceutiques et cosmétiques 21

1.5.2 Industrie agro-alimentaire 21

1.5.3 Industries chimiques..... 22

1.6 Conclusion..... 22

Chapitre 2 Modèles de transfert de matière lors de l'extraction des huiles essentielles.. 23

2.1 Introduction 24

2.2 Généralité sur le transfert de matière 24

2.2.1 Transfert de matière..... 24

2.2.2	Transfert de matière à travers une interface	24
2.2.3	Lois de Fick	25
2.3	Modèles mathématiques de transfert de matière	27
2.3.1	Modèle de Koul et al (2004) ou modèle pseudo 1 ^{er} ordre	27
2.3.2	Modèle de Sovová et Aleksovski (2006).....	28
2.3.3	Modèle de Milojević et al (2008)	29
2.3.4	Modèle empirique de Babu et Singh (2009).....	31
2.3.5	Modèle de Benyoussef et al (2013).....	31
2.4	Conclusion.....	33
Chapitre 3 Cinétiques d'extraction et modélisation de la consommation énergétique....		34
3.1	Introduction	35
3.2	Cinétiques d'extraction des huiles essentielles	35
3.2.1	Présentation du matériel végétal :	35
3.2.2	Cinétiques d'extraction.....	37
3.2.2.1	Cinétiques d'extraction du genévrier:	37
3.2.2.2	Cinétiques d'extraction de Magnolia sieboldii.....	38
3.2.3	Simulation des cinétiques d'extraction.....	39
3.2.3.1	Modèle pseudo premier ordre :	40
3.2.3.2	Modèle 1.....	42
3.2.3.3	Modèle 2.....	44
3.3	Modélisation de la consommation énergétique	47
3.3.1	Modélisation énergétique du genévrier	48
3.3.2	Modélisation énergétique de Mangnolia Sieblodii.....	55
3.4	Conclusion.....	57
Conclusion générale		58
Bibliographie.....		59

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 3. 1 : Paramètres du modèle pseudo 1 ^{er} ordre simulé pour la cinétique d'extraction d'HE du genièvre par hydrodistillation (milojevic et al, 2008).	40
Tableau 3. 2 : Paramètres du modèle pseudo 1 ^{er} ordre simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015).....	41
Tableau 3. 3 : Paramètres du modèle pseudo 1 ^{er} ordre simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de Mangnolia Sieblodii par HD et MAHD.....	42
Tableau 3. 4 : Paramètres du modèle 1 simulé pour la cinétique d'extraction d'HE du genièvre par hydrodistillation (milojevic et al, 2008).....	43
Tableau 3. 5 : Paramètres du modèle 1 simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015).....	44
Tableau 3. 6 : Paramètres du modèle 1 simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de Mangnolia Sieblodii par HD et MAHD.	44
Tableau 3. 7 : Paramètres du modèle 2 simulé pour la cinétique d'extraction de HE du genièvre par hydrodistillation (Milojevic et al ,2008).....	45
Tableau 3. 8 : Paramètres du modèle 2 simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015).....	46
Tableau 3. 9 : Paramètres du modèle 2 simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de Mangnolia Sieblodii par HD et MAHD.	47

LISTE DES FIGURES

Figure 1. 1 : Schéma d'une installation d'hydrodistillation (Kusuma et al, 2015)	16
Figure 1. 2 : Schéma de principe de la turbodistillation (Chemat et al, 2013).....	17
Figure 1. 3 : Transferts thermiques sous les deux modes de chauffage (Lucchesi, 2005).....	18
Figure 1. 4 : Schéma d'une installation d'hydrodistillation assisté par micro-ondes (Golmakani, 2008)	18
Figure 1. 5 : Schéma de principe du procédé d'extraction sans solvant assisté par micro-ondes (Chemat et al, 2004).....	19
Figure 3. 1 : Genévrier commun (<i>Juniperus communis</i>) (Blondeau, 2009-2011)	35
Figure 3. 2 : <i>Magnolia sieboldii</i> (Coatham, 2013)	36
Figure 3. 3 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle de genévrier par hydrodistillation (Milojevic et al, 2008).....	37
Figure 3. 4 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle des baies de genièvre par hydrodistillation et hydrodistillation assistée par micro-ondes (Pavicevic et al, 2015).....	38
Figure 3. 5 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle de <i>Magnolia sieboldii</i> (Chen et al, 2015).....	39
Figure 3. 6 : Simulation de la cinétique d'extraction par le modèle pseudo premier ordre (Milojevic et al, 2008).....	40
Figure 3. 7 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle pseudo premier ordre (Pavicevic et al, 2015).....	41
Figure 3. 8 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle pseudo 1 ^{er} ordre (Chen et al, 2015).....	42
Figure 3. 9 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Milojevic et al, 2008)..	43
Figure 3. 10 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Pavicevic et al, 2015).	43
Figure 3. 11 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Chen et al, 2015).....	44
Figure 3. 12 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Milojevic et al, 2008)	45
Figure 3. 13 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Pavicevic et al, 2015)	46
Figure 3. 14 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Chen et al, 2015).....	47
Figure 3. 15 : Vitesse d'extraction de l'huile essentielle du genévrier en fonction du temps et pour différentes puissances de chauffage par HD (Milojevic et al, 2008).....	48
Figure 3. 16 : Vitesse d'extraction de l'huile essentielle du genévrier en fonction du temps et pour différentes puissances de chauffage par MAHD (Pavicevic et al, 2015)	49
Figure 3. 17 : L'évolution de la consommation énergétique par gramme d'huile essentielle de genévrier extraite en fonction du temps par HD, simulée par le modèle 1 (Milojevic et al, 2008).....	50
Figure 3. 18 : L'évolution de la consommation énergétique par gramme d'huile essentielle de genévrier extraite en fonction du temps par MAHD, simulée par le modèle 1 (Pavicevic et al, 2015).....	50

Figure 3. 19 : Evolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération, simulée par le modèle du 1er ordre, dans le cas de l'extraction de genévrier par HD (Milojevic et al, 2008).....	52
Figure 3. 20 : Evolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération, simulée par le modèle du 1er ordre, dans le cas de l'extraction de genévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).....	52
Figure 3. 21 : Histogramme représentant la consommation énergétique pour différentes puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par HD (Milojevic et al, 2008).	53
Figure 3. 22 : Histogramme représentant la consommation énergétique pour différentes puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).....	53
Figure 3. 23 : L'énergie consommée en fonction des puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par HD (Milojevic et al, 2008).....	54
Figure 3. 24 : L'énergie consommée en fonction des puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).	54
Figure 3. 25 : Consommation énergétique du procédé classique HD et du procédé analogue	56
Figure 3. 26 : Histogramme représentant la consommation énergétique du procédé classique HD et du procédé analogue MAHD pour l'extraction de Mangnolia Sieblodii (Chen et al, 2015).....	56

LISTE DES SIGLES ET ABREVIATIONS

<i>b</i>	Paramètre du modèle de (Milojevic et al, 2008)
<i>b</i>	Le facteur pré-exponentiel (modèle de Benyoussef, 2013)
<i>C</i>	Concentration du soluté en phase aqueuse à l'instant t (masse de soluté / volume de solution)
<i>C_j</i>	Concentration du constituant j [mg/L]
<i>D_{jk}</i>	Coefficient de diffusion de j dans k [cm ² /min]
<i>f</i>	Fraction de l'huile essentielle dans les cellules externes
<i>G</i>	la fraction initiale de l'extrait dans les cellules ouvertes
<i>I_j</i>	Flux diffusionnel du composant j [mol/cm ² .s]
<i>k</i>	Paramètre du modèle de Koul (2004) [s ⁻¹]
<i>k_v</i>	Coefficient de partage vapeur- liquide.
<i>k_w</i>	Coefficient de partage entre les cellules cassées et le liquide
<i>k₁, k₂</i>	Constantes cinétiques
<i>m</i>	La quantité de l'huile essentielle résiduelle [kg] (modèle de Koul, 2004)
<i>m₀</i>	Quantité initiale de l'huile essentielle dans le solide [kg] (modèle de Koul, 2004)
<i>N_j</i>	Densité de flux de matière [mol/cm ² .s]
<i>N</i>	Masse de la matière végétale [kg] (modèle de Sovova et Aleksovski, 2006)
<i>Q</i>	Débit de vapeur kg/s
<i>q_∞</i>	Masse totale de soluté diffusé [g]
<i>q_∞</i>	Le rendement en huile à l'équilibre [g/g]
<i>q₀</i>	La concentration initiale moyenne de l'huile essentielle présente dans les baies

	[g/g]
q_p	La concentration massique de l'huile dans la particule [g/g]
q_w	La quantité d'huile superficielle [g/g] (modèle de Milojevic et al, 2008)
$q(t)$	Masse de soluté diffusé à l'instant t
r_j	Vitesse de création de l'espèce j dans le bilan de matière
\vec{T}_j	Flux de transport [mol/cm ² .s]
T_1, T_2	Constantes de temps (min)
v_j	Vitesse absolue locale du constituant j (m/s)
x_i	Concentration de l'huile dans les cellules intactes [g d'huile/ kg de matière végétale]
x_b	Concentration de l'huile dans les cellules cassées [g d'huile/ kg de matière végétale] [g d'huile/ kg d'eau]
x_s	Concentration de l'huile essentielle dans le courant liquide de recyclage
x_u	Concentration de l'huile dans le solide avant traitement [g d'huile/ kg de matière végétale]
x_v	Concentration de l'huile dans la phase vapeur [g d'huile/ kg d'eau]
x_w	Concentration de l'huile dans l'eau bouillante [g d'huile/ kg d'eau]
x_μ	le rendement d'extraction asymptotique (%)
y_∞	Rendement en huile essentielle à l'équilibre
$y(t)$	Rendement en huile essentielle à l'instant t
HE	Huile essentielle
HD	Hydrodistillation
MAHD	Hydrodistillation assistée par micro-ondes

INTRODUCTION GENERALE

De tous temps, les chercheurs scientifiques dans le secteur pharmaceutique, cosmétique et agrochimique ont cherché à maîtriser, à accélérer les extractions des plantes naturelles et à économiser la consommation énergétique des méthodes d'extraction.

Ce travail, est basé sur l'étude de la consommation énergétique de l'hydrodistillation, le but est de modéliser cette consommation et de trouver son optimum au cours du processus d'extraction.

L'hydrodistillation classique est connue pour sa forte consommation d'énergie. Les avancées technologiques ont fait naître des applications, le chauffage par micro-ondes, par exemple, qui participe à la maîtrise de l'extraction, tout en réduisant au maximum la consommation d'énergie donc une performance accrue et un meilleur respect de l'environnement.

Ainsi, notre travail est organisé autour de trois chapitres:

Dans le premier chapitre, nous avons présenté des généralités sur les huiles essentielles ainsi que les techniques traditionnelles et innovantes permettant de les extraire à partir des plantes.

Dans le deuxième chapitre, des rappels théoriques sur le transfert de matière et quelques travaux modélisant l'extraction solide-liquide ont été présentés.

Le dernier chapitre, est réservé à la représentation et l'optimisation de l'évolution de la consommation énergétique lors de l'extraction des huiles essentielles par hydrodistillation classique et assistée par micro-ondes dans l'intérêt est d'économiser et de rationaliser cette consommation énergétique.

Chapitre 1

Généralités sur les huiles essentielles

1.1 Introduction

Les huiles essentielles sont de plus en plus reconnues pour leurs bienfaits sur le bien-être et la santé. Utilisées à des fins multiples, depuis la plus haute antiquité, ces substances offrent de nombreux avantages, en termes de qualité et d'impact environnemental.

Le présent chapitre est consacré aux huiles essentielles (définition, composition chimique,...), procédés d'extraction traditionnels et innovants ainsi qu'aux principales utilisations des huiles essentielles.

1.2 Les huiles essentielles

1.2.1 Définition

L'Association Française de Normalisation (AFNOR, 2000), a défini les huiles essentielles comme étant des produits obtenus soit à partir de matières premières naturelles par distillation à l'eau ou à la vapeur d'eau, soit à partir des fruits de Citrus par des procédés mécaniques et qui sont séparés de la phase aqueuse par des procédés physiques.

L'Encyclopédie Funk et Wagnalls (Funk et Wagnalls, 2004) décrit les huiles essentielles comme des liquides volatils, la plupart du temps insolubles dans l'eau, mais solubles dans l'alcool, l'éther et les huiles végétales et minérales. Elles sont habituellement non huileuses au contact de la peau. Leurs composants peuvent être regroupés en six classes selon leur structure chimique :

- Les hydrocarbures, tel que le limonène dans l'huile de citron;
- Les alcools, tel que le bornéol dans le camphrier de Bornéo;
- Les esters, tel que le salicylate de méthyle dans l'huile de wintergreen;
- Les aldéhydes, tel que l'aldéhyde benzoïque dans l'huile d'amandes amères;
- Les cétones, telle que la menthone dans l'huile de menthe poivrée;
- Les lactones et oxydes, telle que la coumarine des haricots de Tonka. »

1.2.2 Localisation de l'huile essentielle au sein de la plante

Toutes les parties des plantes aromatiques, tous leurs organes végétaux, peuvent contenir de l'huile essentielle (Bruneton, 1993).

- les fleurs par exemples: oranger, rose, lavande ; le bouton floral (girofle) ou les bractées (ylang-ylang)
- les feuilles, exemples : eucalyptus, menthe, thym, laurier, sarriette, sauge, aiguilles de pin et sapin
- les organes souterrains, exemples : racines (vétiver), rhizomes (gingembre, acore)
- les fruits, exemples : fenouil, anis, épicarpes des Citrus

- les graines : noix de muscade
- le bois et les écorces, exemples : cannelle, santal, bois de rose

Les huiles essentielles sont synthétisées dans le cytoplasme des cellules végétales spécialisées. Elles s'accumulent en général dans des structures glandulaires variables suivant les familles botaniques. Elles sont localisées en surface sous la cuticule pour une sécrétion exogène ou en profondeur dans les tissus parenchymateux pour une sécrétion endogène (Guenther, 1948).

Ces structures peuvent être des cellules sécrétrices (Lauraceae, Magnoliaceae, Zingiberaceae), des poils sécréteurs (Labiaceae et Geraniaceae), des poches sécrétrices (Myrtaceae et Rutaceae) ou des canaux sécréteurs (Ombellifereae et Conifereae) (Gilly, 2005).

La teneur des plantes en huiles essentielles est faible ; elle est de l'ordre de 1 à 3 % à l'exception du clou de Girofle (14 à 19 %), du Macis (10 à 13 %), de la noix de muscade (8 à 9 %) et de la Cardamome (4 à 10 %)

Parmi les familles végétales les plus productrices d'huiles essentielles, on distingue les Labiaceae (famille du thym, de la lavande, de la menthe, du basilic etc..), les Asteraceae (camomille, absinthe...), les Myrtaceae (eucalyptus, melaleuca, myrte, girofle...), les Lauraceae (cannelle, laurier...).

1.2.3 Propriétés physiques

Les huiles essentielles sont généralement liquides à température ordinaire. Elles sont incolores ou jaune pâle, volatiles, odorantes et inflammables (Wichtk, 1999). Leurs densités sont inférieures à « 1 » sauf exceptions (huiles essentielles de Cannelle, girofle en particulier).

Elles ne sont pas solubles dans l'eau mais en revanche elles le sont dans les solvants organiques et huiles végétales (Bruneton, 1995).

L'indice de réfraction des huiles essentielles est souvent utilisé pour l'identification et comme critère de pureté des huiles essentielles et de composés liquides divers. Chaque substance a son indice de réfraction spécifique.

1.3 Extraction des huiles essentielles par hydrodistillation et procédés similaires

1.3.1 Hydrodistillation

L'hydrodistillation proprement dite, est la méthode normée pour l'extraction d'une huile essentielle, ainsi que pour le contrôle de qualité. Le principe de l'hydrodistillation correspond à une distillation hétérogène.

Le procédé consiste à immerger la matière première végétale dans un bain d'eau. L'ensemble est ensuite porté à ébullition généralement à pression atmosphérique (Fernandez et Casale, 2015). Ainsi, à pression atmosphérique, le mélange « eau - huile » distille à 100 °C.

La chaleur permet l'éclatement et la libération des molécules odorantes contenues dans les cellules végétales. Ces molécules aromatiques forment avec la vapeur d'eau, un mélange azéotropique.

La distillation peut s'effectuer avec ou sans recyclage (cohobage) de la phase aqueuse obtenue lors de la décantation. Et la durée d'une hydrodistillation peut considérablement varier, pouvant atteindre plusieurs heures selon le matériel utilisé et la matière végétale à traiter.

Afin de traiter certaines matières premières dont les constituants ne peuvent être entraînés par la vapeur à pression atmosphérique du fait de leur masse moléculaire élevée, par exemple le santal, le girofle, les rhizomes de vétiver, de gingembre ou d'iris et pour lesquelles il est difficile d'extraire l'huile essentielle (Bocchio, 1985), l'hydrodistillation à pression réduite représente une bonne alternative.

Bien que le procédé sous pression conduise à une amélioration du rapport d'entraînement donc à des économies d'énergie, l'influence d'une température élevée (supérieure à 100°C) sur la qualité de l'huile essentielle donne lieu à certains artéfacts. D'autre part, le prix et les contraintes des équipements nécessaires contribuent à freiner l'utilisation du procédé (Tournalre, 1980).

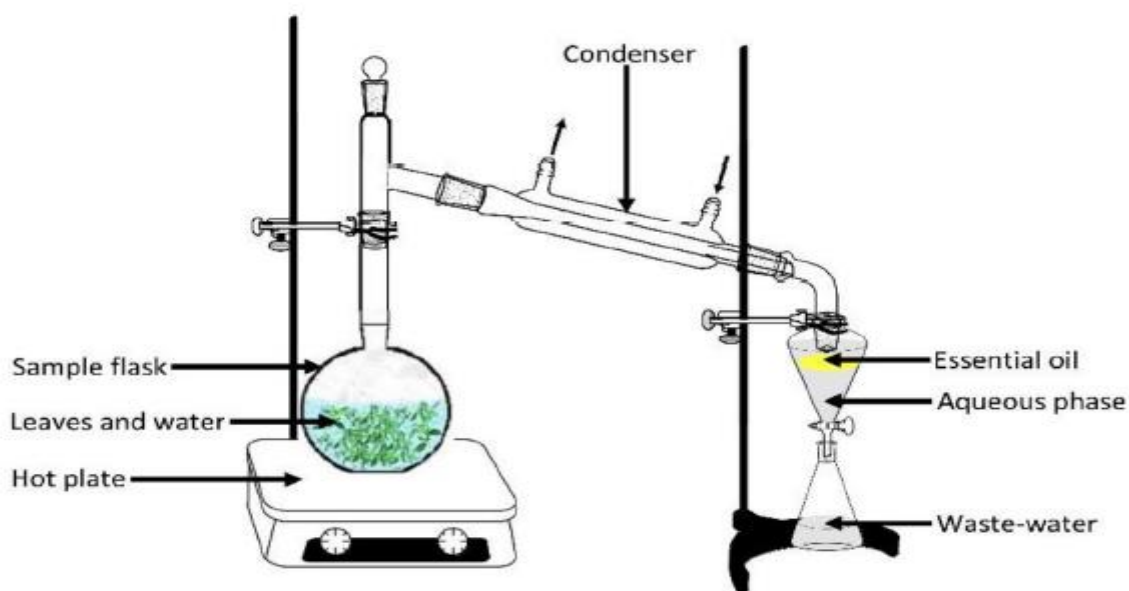


Figure 1. 1 : Schéma d'une installation d'hydrodistillation (Kusuma et al, 2015)

1.3.2 Turbodistillation

L'hydrodistillation accélérée en discontinu a été développée en France par la Société DCF-AROMAPROCESS (Martel, 1977). Son objectif est de limiter les inconvénients d'une longue durée d'extraction ou d'une surpression.

Pour activer la distillation à pression atmosphérique, l'alambic est équipé d'une turbine qui permet d'une part, la dilacération des matières végétales, d'autre part une agitation turbulente, d'où un meilleur coefficient de transfert thermique et une augmentation de la surface de vaporisation. Cette technique est prédestinée aux matières premières végétales difficiles à traiter (les racines, les ligneux ou les graines, exemple : badiane de Chine ou les graines de céleri).

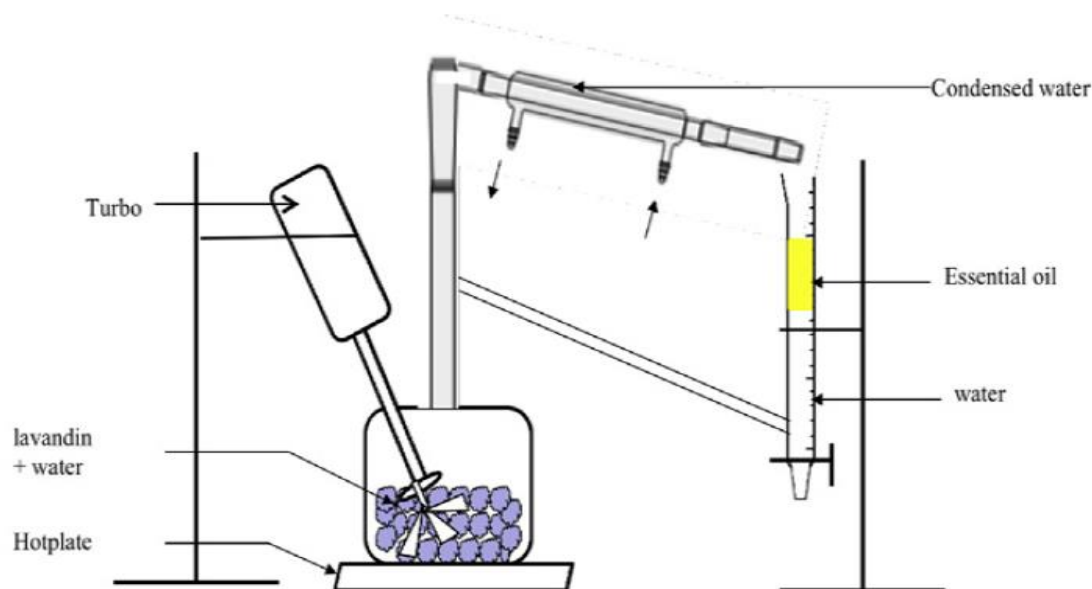


Figure 1. 2 : Schéma de principe de la turbodistillation (Chemat et al, 2013)

1.3.3 Distillation « sèche »

La distillation « sèche », aussi appelée distillation destructive, est utilisée pour la séparation des produits chimiques liquides contenus dans des matériaux solides. On peut ainsi obtenir, à partir du bois, par calcination, de la créosote (mélange de phénols), de l'alcool méthylique et de nombreux autres produits. Un avantage certain au niveau de la qualité, Les rendements extrêmement faibles.

1.3.4 Extraction assistée par chauffage micro-ondes

L'avantage essentiel de ce procédé est de réduire considérablement la durée de distillation (ramenée à quelques minutes) et incrémente le rendement d'extrait. Cependant l'irradiation d'un volume important pose des problèmes techniques.

1.3.4.1 Le chauffage micro-ondes

Le transfert de chaleur sous chauffage micro-ondes est complètement inversé par rapport au chauffage conventionnel. Le transfert de chaleur classique se transmet de l'extérieur vers l'intérieur du récipient. Sous chauffage micro-ondes, le volume traité devient lui même source de chaleur. On parle de dégagement de la chaleur de l'intérieur vers l'extérieur du récipient.

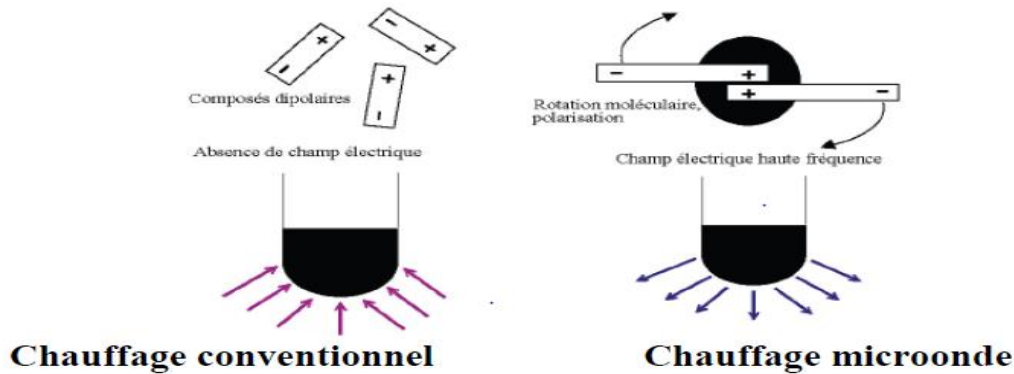


Figure 1. 3 : Transferts thermiques sous les deux modes de chauffage (Lucchesi, 2005).

1.3.4.2 Hydrodistillation assistée par micro-ondes

Récemment, Stashenko et ses collaborateurs (Stashenko et al, 2004), utilisent un procédé d'hydrodistillation par micro-ondes. Ce procédé basé entièrement sur le principe de l'hydrodistillation classique consiste à placer une partie du montage d'hydrodistillation dans le four à micro-ondes (Figure 1.4). Le matériel végétal est donc placé en présence d'une quantité d'eau suffisante dans un ballon disposé dans l'enceinte du four à micro-ondes. Le système de réfrigération ainsi que la partie prévue pour la récupération des essences sont situés à l'extérieur du four. Les avantages cités par ces auteurs sont la rapidité et la similitude de la composition de l'huile par rapport à une hydrodistillation classique.

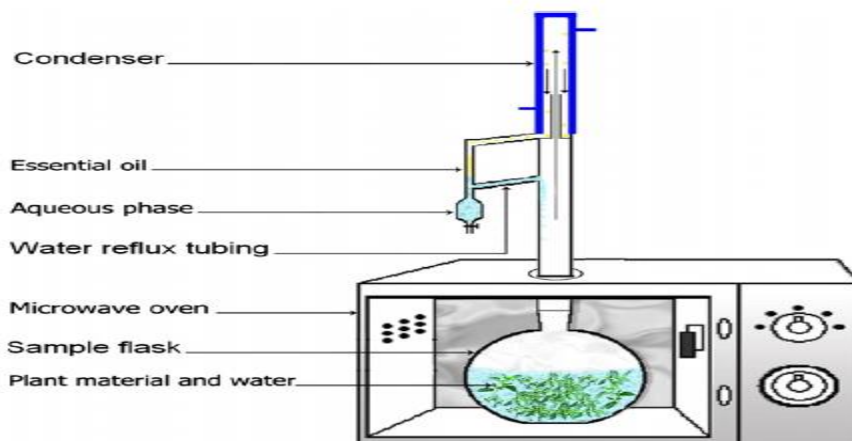


Figure 1. 4 : Schéma d'une installation d'hydrodistillation assistée par micro-ondes (Golmakani, 2008)

1.3.4.3 Procédé d'extraction sans solvant assistée par micro-ondes (ESSAM)

En 2004, une méthode originale d'extraction des produits naturels assistée par microondes à pression atmosphérique, sans solvant et sans eau a été développée et brevetée par Chemat et ses collaborateurs (Chemat et al, 2004), basée sur un principe relativement simple.

Cette méthode décrit une distillation sèche assistée par micro-ondes qui consiste à placer le matériel végétal dans un réacteur micro-ondes sans ajouter ni eau ni solvant organique. Le chauffage de l'eau contenue dans la plante permet la rupture des glandes contenant l'huile essentielle. Cette étape libère l'huile essentielle qui est ensuite entraînée par la vapeur d'eau produite à partir de l'eau de la matière végétale. Un système de refroidissement à l'extérieur du four micro-ondes permet la condensation de façon continue du distillat, composé d'eau et d'huile essentielle, et le retour de l'excès d'eau à l'intérieur du ballon afin de maintenir le taux d'humidité propre au matériel végétal (Figure 1.5).

La distillation sèche assistée par micro-ondes, a été appliquée à deux types de plantes, les épices et les herbes aromatiques par l'équipe de Lucchesi et ses collaborateurs (Lucchesi et al, 2005).

Pour les plantes aromatiques, après seulement 30 minutes d'extraction les rendements en huiles essentielles obtenus par ESSAM sont identiques à ceux obtenus après 6 heures d'hydrodistillation. D'un point de vue qualitatif, on retrouve dans les huiles essentielles obtenues par ESSAM une proportion plus importante de composés oxygénés, les plus valorisables sur le plan olfactif.

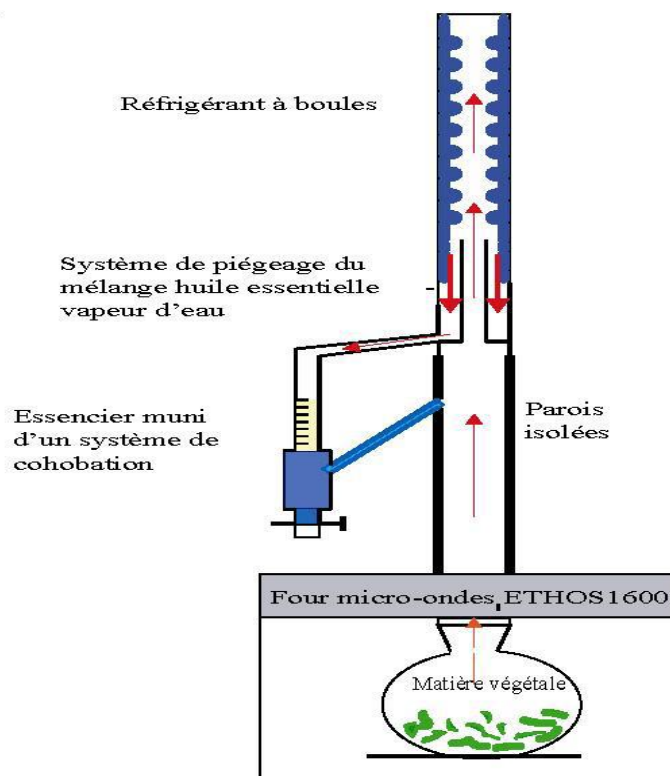


Figure 1. 5 : Schéma de principe du procédé d'extraction sans solvant assisté par micro-ondes (Chemat et al, 2004)

1.4 Composition chimique

Les huiles essentielles sont des mélanges complexes de différents constituants chimiques. Cependant, ces constituants peuvent être regroupés en deux grands groupes chimiques en fonction de leurs origines biogénétiques bien distinctes, il y a le groupe des terpénoïdes et des composés aromatiques (Teisseire, 1991).

Dans les huiles essentielles nous ne pouvons rencontrer que les terpènes (hydrocarbure de formule brute C_{5H_8} produit par le métabolisme secondaire des plantes) les plus volatils. C'est à dire les terpènes dont la masse moléculaire n'est pas trop élevée (Lamarti et al, 1994) comme :

- Les terpénoïdes sont en général très nettement dominants : monoterpènes et sesquiterpènes. Ils se présentent sous forme de carbures (myrcène, ocimène, bisabolène, caryophyllène...), d'alcools (géraniol, menthol, terpinéol...), d'aldéhydes (géralial, santalal, citronellal...), de phénols (thymol, carvacrol...), de cétones (menthone, thuyone, pulégone, vétivone...), d'esters (acétate de linalyle, de menthyle, de cédryle ...), d'éther (cinéole) (Teisseire, 1991).

Ces terpénoïdes ont une structure acyclique ou cyclisée ; plus la chaîne carbonée est longue plus les cyclisations sont possibles.

- Les composés aromatiques sont moins fréquents mais néanmoins très importants : eugénol, anéthole, safrole, asarone, fenchone, myristicine, apiole (Teisseire, 1991).

Cependant la composition chimique d'une huile essentielle peut varier considérablement :

- dans une même plante selon les organes (feuille, fleur, fruit, bois)
- dans l'année selon la saison pour une même plante,
- selon les conditions de culture pour une même souche végétale (ensoleillement, humidité, longueur du jour, fertilité du sol),
- selon les races chimiques (ou chimiotypes) pour une même espèce (l'exemple classique est le thym avec 7 races chimiques).

Connaître avec exactitude les constituants d'une huile essentielle est fondamental, à la fois pour vérifier sa qualité, expliquer ses propriétés et prévoir sa toxicité potentielle.

1.5 Les utilisations des huiles essentielles

Il existe une grande variété d'huiles essentielles connues dans le monde et plusieurs milliers d'entre elles ont été caractérisées. Cependant, de ce nombre, une faible proportion seulement présente un intérêt commercial. Cela s'explique par la composition chimique des huiles, les différentes utilisations possibles et leur coût de production. On évalue qu'environ 300

produits naturels servent de matières premières pour l'industrie des parfums et des arômes (Bakkali et al, 2008).

Les huiles essentielles constituent une matière première destinée à divers secteurs d'activités (Balandrin, 1985) tels que la parfumerie, la cosmétologie, l'agro-alimentaire et l'industrie chimique. Deux industries se partagent le marché mondial florissant des huiles ; il s'agit de l'industrie agroalimentaire et la parfumerie.

1.5.1 Industrie pharmaceutiques et cosmétiques

Plus génériquement, la phytothérapie, ou l'art d'utiliser des substances issues des plantes dans la médecine, est connue de tous temps et de toutes civilisations tandis que la naissance de l'aromathérapie moderne (l'utilisation médicale des extraits aromatiques de plantes, et non d'éléments complets d'une plante) est attribuée au chimiste René Maurice Gattefossé, dans les années 1920 (Gattefossé, 1937).

Au niveau des effets et des utilisations dans les domaines pharmaceutiques et/ou cosmétiques, ils sont variés. Les huiles essentielles sont utilisées pour leurs différentes propriétés et effets thérapeutiques divers (Franchomme, 1990).

- les effets anti-infectieux; notamment sur les souches résistant à des antibiotiques récents. Parmi ces molécules antibactériennes les plus puissantes, nous pouvons citer: le Carvacrol, le Thymol et l'Eugénol, le Géraniol, le Linalol, Térpineol menthol, etc. Cette activité antivirale se retrouve surtout dans les huiles essentielles contenant des cétones, des monoterpénols ou certains aldéhydes ;
- des effets calmants et antispasmodiques; les aldéhydes (citral de la verveine,...), les esters (salicylate de méthyle,...) ;
- des effets antiparasitaires; surtout les phénols ;
- des effets anti-inflammatoires; selon le type de douleurs, on peut utiliser les esters, des alcools (menthol) ou des aldéhydes (cuminal).

1.5.2 Industrie agro-alimentaire

L'industrie alimentaire utilise les huiles essentielles pour rehausser le goût des aliments, pour parfumer et colorer (Heath, 1981). Le secteur des boissons gazeuses s'avère un gros consommateur d'huiles. En effet, l'utilisation des huiles essentielles dans les arômes alimentaires est en train de se développer énormément vu l'omniprésence des arômes. De nos jours, ils sont utilisés comme « rehausseurs » de goût dans divers produits comme les cafés, tabacs, thés, vins, yaourts...

Dans ce secteur, les volumes d'huiles essentielles peuvent être très importants. L'huile la plus utilisée dans le monde est l'huile essentielle d'orange.

1.5.3 Industries chimiques

Les industries chimiques utilisent les huiles essentielles comme matières premières pour la synthèse de principes actifs médicamenteux, de vitamines et de substances odorantes (Bruneton, 1993).

Les huiles essentielles entrent dans la composition des produits d'entretien et de dégraissage. Le d-limonène employé depuis cinquante ans comme arôme, est de plus en plus utilisé ces dernières années comme nettoyant et dégraissant. On le retrouve dans l'entretien mécanique, la fabrication de produits métalliques, le nettoyage du fuselage des avions et le nettoyage des modules de circuits imprimés (Dubey, 2008).

1.6 Conclusion

La composition chimique d'une huile essentielle est très complexe et soumise à de très nombreuses variables. Connaître avec exactitude les constituants d'une huile essentielle est fondamental, à la fois pour vérifier sa qualité, expliquer ses propriétés et prévoir sa toxicité potentielle.

En pratique il existe plusieurs méthodes d'extraction des huiles essentielles, cependant la plus courante est l'hydrodistillation. Le développement des nouvelles technologies telles que les microondes ont permis de minimiser considérablement le temps d'extraction tout en augmentant le rendement en huile essentielle.

Les industries, qu'elles soient cosmétiques, pharmaceutiques ou aromatiques sont très friandes d'huiles essentielles car ce sont les produits les plus susceptibles d'ajouter des odeurs. Ceci s'explique par le fait qu'elles ont une forte volatilité, et qu'elles ne laissent aucune trace grasse. Dès lors, l'industrie agro-alimentaire s'en sert également afin d'incorporer des saveurs aux aliments.

Chapitre 2

Modèles de transfert de matière lors de l'extraction des huiles essentielles

2.1 Introduction

La modélisation mathématique des cinétiques d'extraction permet de décrire les problèmes de transfert de matière qui sont généralement complexes par l'établissement de modèles à paramètres significatifs, permettant ainsi une meilleure compréhension du phénomène, une meilleure description de l'évolution du rendement d'extraction mais aussi l'optimisation des techniques utilisées.

L'objectif principal de ce deuxième chapitre, est de rapporter les travaux effectués par les différents auteurs qui se sont intéressés à la modélisation du transfert de matière entre phases lors de l'extraction des essences végétales.

2.2 Généralité sur le transfert de matière

2.2.1 Transfert de matière

Le transfert de matière désigne le passage de toute espèce moléculaire d'une phase à une autre tendant à amener le système à l'équilibre thermodynamique. Si, par conséquent, un constituant prend naissance ou disparaît localement dans le mélange, il se produira un transfert de ce constituant de la partie la plus concentrée vers la partie la moins concentrée (Moulin, 1998).

L'émission où la disparition d'un ou plusieurs constituants peut être due, soit à une réaction chimique, soit à un phénomène physique du type dissolution. Dans les deux cas, il est important alors de connaître la vitesse à laquelle s'effectue le transfert de matière.

Cette vitesse de transfert est mesurée par le flux de matières transférées par unité de temps et par unité de surface d'interface. Elle dépend directement des écarts à l'équilibre, appelés potentiels de transfert globaux ou potentiels d'échange. Le potentiel de transfert particulier dans chaque phase s'exprime par la différence positive entre la concentration moyenne du soluté dans la phase et sa concentration à l'interface.

Toutefois, pour chaque expression définissant le potentiel d'échange correspond un coefficient de transfert, qui dépend essentiellement des propriétés physico-chimiques du système et des conditions hydrodynamiques.

2.2.2 Transfert de matière à travers une interface

Dans cette approche, la résistance au transfert de matière est considérée seulement dans les deux couches limites se trouvant de chaque côté de l'interface. Plusieurs modèles se basant sur cette approche ont été développés afin d'émettre une loi phénoménologique du transfert et relier le coefficient de transfert aux caractéristiques physico-chimiques des phases en présence et aux conditions hydrodynamiques de leur écoulement (Leybros, 1990).

Les plus connus sont :

- le modèle du double film, dû à Lewis et Withman (1924), suppose que le transfert de matière a lieu par diffusion moléculaire à travers un film stagnant ou par écoulement laminaire de chaque côté de l'interface. Au-delà, l'écoulement est turbulent, le gradient de concentration est donc linéaire dans les films et nul par ailleurs. L'interface ne présente pas de résistance au transfert de matière qui est en régime stationnaire ;
- le modèle de pénétration, proposé par Higbie (1935), suppose que le transfert de matière a lieu sur un court instant. Cette théorie fait appel à une diffusion en régime transitoire, l'interface est constituée par des éléments de liquide qui sont continuellement remplacés par d'autres éléments provenant du cœur du liquide ;
- le modèle du renouvellement de la surface, de Danckwerts (1951), fait également appel à la diffusion moléculaire en régime transitoire. Cependant, il considère que les éléments liquides ne séjournent pas tous pendant la même durée à l'interface et que la probabilité pour qu'un élément quitte l'interface ne dépend pas du temps pendant lequel il y a séjourné.

2.2.3 Lois de Fick

La diffusion moléculaire est souvent régie par les deux lois de Fick. La première qui exprime en régime permanent l'évolution d'un ensemble hétérogène d'atomes mal répartis dans l'espace vers un état d'équilibre plus stable. Et la seconde loi en régime transitoire, qui exprime quant à elle la variation de la concentration en fonction du temps.

- **Densité de flux de matière**

La première loi de Fick énonce que le flux de diffusion est proportionnel au gradient de concentration. Les idées de bases de cette loi ont d'abord concerné les liquides avant d'être généralisées pour les gaz et les solides. Ainsi, à température et pression constantes, la densité de flux de transfert s'exprime comme suit :

$$J = -D \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2.1)$$

J : Densité de flux de transfert ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ou bien $\text{mole} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

C : Concentration de l'espèce diffusante ($\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ou $\text{mole} \cdot \text{m}^{-3}$).

D: Coefficient de diffusion

Le coefficient de diffusion D exprime le rapport du flux de transfert des particules diffusantes, perpendiculairement à l'unité de surface, et le gradient de concentration.

Généralement, la première loi s'écrit :

$$\mathbf{J} = -\mathbf{D} \cdot \overline{\text{grad}}(\mathbf{C}) \quad (2.2)$$

- **L'équation de conservation**

Afin d'atteindre la diffusion à l'intérieur d'une matrice solide, tout d'abord il faudra déterminer les variations de la concentration de l'espèce considérée en fonction du temps et des coordonnées spatiales.

Soit un volume V dans lequel la diffusion a lieu, délimité par une surface S , dont la normale est dirigée vers l'extérieur. Le bilan de matière sur ce volume est :

$$\text{Entrée} - \text{Sortie} \pm \text{Création} = \text{Accumulation} \quad (2.3)$$

$$\mathbf{E} - \mathbf{S} = - \int_S \vec{n} * (\mathbf{C}_j * \vec{v}_j) * dS \quad (2.4)$$

En appliquant le théorème de Green-Ostrogradsky, l'équation (2.4) devient :

$$\mathbf{E} - \mathbf{S} = - \int \text{div}(\mathbf{C}_j * \mathbf{v}_j) dV \quad (2.5)$$

Notant que le taux de production de l'espèce chimique est donné comme suit :

$$\mathbf{R} = \pm \int r_j dV \quad (2.6)$$

La variation de la concentration de l'espèce j avec le temps est représentée par l'intégrale suivante: $\int \frac{\partial C_j}{\partial t} dV$

L'équation (2.3) devient :

$$- \int \text{div}(\mathbf{C}_j * \mathbf{v}_j) dV \pm \int r_j dV = \int \frac{\partial C_j}{\partial t} dV \quad (2.7)$$

$$- \text{div} \mathbf{N}_j \pm r_j = \frac{\partial C_j}{\partial t} \quad (2.8)$$

Comme le transfert se fait selon deux mécanismes : la diffusion et le transport. La densité de flux de matière est donnée par l'équation (2.7)

$$\vec{N}_j = \vec{J}_j + \vec{T}_j \quad (2.9)$$

Où :

- N_j : Densité de flux de matière
- J_j : Flux propre à la diffusion
- T_j : Flux de transport

Selon la première loi de Fick, l'équation (2.7) devient :

$$N_j = -\overrightarrow{D} \text{grad}(C_j) + C_j * v \quad (2.10)$$

Dans le cas d'un milieu au repos, le transfert par transport est négligeable. L'équation (2.6) devient

$$-\text{div}(-D_{jk} \overrightarrow{\text{grad}} C_j) = \frac{\partial C_j}{\partial t} \pm r_j \quad (2.11)$$

En absence de réaction chimique

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\text{div}(-D_{jk} \overrightarrow{\text{grad}} C_j) \quad (2.12)$$

Cette dernière équation est appelé l'équation de conservation ou la deuxième loi de Fick, elle est valide pour la diffusion d'un soluté dans un corps poreux rigide sous la condition que la structure du solide soit considérée comme quasi homogène et macroscopiquement isotrope. Dans le cas de la matière végétale, le coefficient de diffusion moléculaire doit être un coefficient de diffusion apparent qui tient compte de la porosité et de la tortuosité de la matrice solide.

2.3 Modèles mathématiques de transfert de matière

2.3.1 Modèle de Koul et al (2004) ou modèle pseudo 1^{er} ordre

Koul et ses collaborateurs (Koul et al, 2004) ont proposé un modèle du pseudo premier ordre pour décrire l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de citron. Selon ces auteurs, la quantité d'huile extraite par unité de temps est proportionnelle à la quantité d'huile restante. Ainsi

$$-\frac{dm}{dt} = km \quad (2.13)$$

Après intégration, on obtient

$$\frac{\ln m_0}{m} = kt \quad (2.14)$$

Le modèle de premier ordre s'écrit donc sous la forme

$$m = m_0(1 - e^{-kt}) \quad (2.15)$$

Où :

m : la quantité de l'huile essentielle résiduelle dans le solide.

m_0 : quantité initiale de l'huile essentielle dans le solide.

k : paramètre du modèle.

Ces auteurs ont aussi montré que l'augmentation du débit de vapeur ainsi que le broyage de la matière végétale favorisent l'augmentation du rendement en huile essentielle.

2.3.2 Modèle de Sovová et Aleksovski (2006)

Sovová et Aleksovski (Sovova et al, 2006), ont élaboré un modèle selon lequel on peut distinguer deux types de cellules végétales, cassées et intactes, au sein des particules solides. Les cellules cassées par le prétraitement mécanique sont localisées près de la surface des particules, tandis que le noyau des particules contient des cellules intactes, par conséquent, l'huile essentielle localisée dans des cellules à parois cassées est facilement extractible par contre l'autre fraction qui se trouve dans des cellules à parois intactes est plus difficile à extraire.

Plusieurs hypothèses simplificatrices ont été considérées

- les particules ont la même taille, la même forme, et le même contenu en huile initialement;
- initialement, la fraction (f) d'huile essentielle est présente dans les cellules cassées, facilement accessibles, et la fraction ($1 - f$) est présente dans les cellules intactes;
- la résistance au transfert de matière est supposée négligeable dans les cellules végétales cassées, l'eau bouillante et la phase vapeur et un équilibre thermodynamique est établi ainsi quasi instantanément entre les phases

$$x_v = k_v x_w = k_v k_w x_b \quad (2.16)$$

x_b : la concentration massique d'huile dans les cellules cassées, g (huile).Kg⁻¹ (végétal),

x_v : la concentration massique de l'huile dans la phase vapeur, g (huile). Kg⁻¹ (vapeur),

x_w : la concentration massique en huile dans l'eau bouillante, g (huile). Kg⁻¹ (eau),

k_v : le coefficient de partage du soluté entre les phase vapeur et liquide,

k_w : le coefficient de partage du soluté entre l'huile des cellules cassées et la phase liquide.

x_s : la concentration massique en composés hydrosolubles dans le flux de cohobage.

- Avant traitement (broyage et extraction), la concentration de l'huile dans les cellules intactes est : $x_i(t=0) = x_u$

Avec : x_u : concentration de l'huile dans le solide avant traitement.

x_i : concentration de l'huile dans les cellules intactes.

En notant la concentration x_s de l'huile essentielle dans le courant liquide de recyclage (de Cohobage), supposée constante, Le rendement en huile essentielle s'écrit ainsi :

$$y = \frac{Q}{N} \int_0^t (x_v - x_s) dt \quad (2.17)$$

Avec :

Q : débit de vapeur Kg/s

N : masse de la matière végétale Kg

Ce modèle a été établi en posant les équations de vitesses de transfert et les conditions initiales relatives à chaque type de cellules. L'équation du rendement a été obtenu en résolvant, par la transformée de Laplace, les équations de bilan de matière sur l'huile à l'intérieur du ballon.

Le rendement en huile essentielle correspondant à deux constantes de temps est donné par l'expression suivante :

$$Y = Y_{\infty} \left(1 - f \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) - (1 - f) \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \right) \quad (2.18)$$

2.3.3 Modèle de Milojević et al (2008)

Milojević et ses collaborateurs (Milojevic et al, 2008) ont proposé un modèle décrivant les cinétiques d'extraction de l'huile essentielle des baies de genévrier. Le développement mathématique de ce modèle décrivant la cinétique d'extraction de l'huile essentielle à partir des baies de genévrier est basé sur un mécanisme similaire à celui de l'extraction par solvant. Selon ce mécanisme, la distillation de l'huile de genévrier est constituée de deux étapes successives :

a) Lavage rapide de l'huile superficielle : Dans cette étape l'huile essentielle est lavée depuis les surfaces externes des particules végétales durant une courte période d'hydrodistillation (théoriquement à $t=0$);

b) Diffusion lente de l'huile interne: Dans cette étape l'huile essentielle diffuse lentement depuis l'intérieur des particules végétales vers leurs surfaces externes.

Sur la base de ce mécanisme, les cinétiques d'extraction de l'huile de genévrier ont pu être décrites à l'aide d'un modèle à deux paramètres de diffusion b et k .

Afin de développer leur modèle, Milojević et ses collaborateurs (Milojevic et al, 2008) ont émis des hypothèses simplificatrices permettant la résolution de la seconde loi de Fick.

- Les particules végétales sont isotropes, de même taille et forme et contiennent la même quantité d'huile essentielle initialement;
- L'huile essentielle est considérée comme étant un pseudo composé;
- Une partie de l'huile essentielle est localisée sur la surface externe des baies cassées et le reste est uniformément distribué dans les particules végétales ;
- Le coefficient de diffusion effectif est constant;
- La concentration d'huile essentielle présente sur la surface des baies est nulle en tout moment du processus de distillation à cause de son lavage instantané de la surface ;
- Absence de résistance au transfert de matière depuis les surfaces externes des particules végétales.

En absence de réaction chimique, le processus de transfert de matière peut être décrit par la seconde loi de Fick comme suit :

$$\frac{\partial q_p}{\partial t} = D_{eff} \frac{\partial^2 q_p}{\partial z^2} \quad (2.19)$$

Où

q_p : étant la concentration moyenne de l'huile essentielle dans les particules végétales à un temps t ,

x : la distance le long de la direction de diffusion,

D_{eff} : Le coefficient de diffusion effectif.

L'intégration de l'équation précédente donne en prenant en compte les conditions aux limites:

$t = 0 \rightarrow q = q_w$ où q_w représente la quantité d'huile superficielle, donne :

$$\frac{q_0 - q}{q_0} = (1 - b)e^{-kt} \quad (2.20)$$

Où :

q : le rendement en huile à un temps t ,

q_0 : la concentration initiale moyenne de l'huile essentielle présente dans les baies ;

b : constante ;

k : constante cinétique comprenant le coefficient de diffusion effectif.

Avec

$$b = \frac{q_w}{q_0} \quad (2.21)$$

Les 2 paramètres de la cinétique (b , k) dépendent du débit de vapeur et du rapport (masse baies/masse eau).

2.3.4 Modèle empirique de Babu et Singh (2009)

Babu et Singh (Babu et al, 2009), ont simulé l'hydrodistillation de feuilles fraîches et séchées par un modèle empirique inspiré par Naik et ses collaborateurs (Naik et al, 1989) qui ont traité l'extraction de parfums avec du CO₂ liquide.

Dans cette étude, les résultats expérimentaux montraient une variation linéaire du rendement en fonction du temps pour les temps courts et une stabilisation de celui-ci vers un palier pour les temps « infinis ».

L'allure de la cinétique rappelait l'allure de l'isotherme de Langmuir, ce qui poussa Naik à choisir une équation similaire pour modéliser le rendement d'extraction à la différence qu'elle ne s'exprime pas en fonction de concentrations d'équilibre dans chaque phase mais du temps d'extraction

$$q = \frac{q_{\infty} t}{b + t} \quad (2.22)$$

Où q représente le rendement en huile essentielle et b est un paramètre de l'équation n'ayant pas de relation directe avec le mécanisme d'extraction ni les propriétés de transport du solvant, car l'équation est un modèle empirique basé sur une simple observation de la cinétique de rendement et non sur l'intégration du bilan de matière différentiel.

L'étude de Belbessai et al (Belbessai et al, 2016) a démontré que ce modèle empirique de Babu n'était rien d'autre qu'un modèle du second ordre décrivant la cinétique d'adsorption en posant

$$\frac{1}{b} = q_{\infty} k_2 \quad (2.23)$$

2.3.5 Modèle de Benyoussef et al (2013)

Dans cette étude, Benyoussef et ses collaborateurs (Benyoussef et al, 2013), ont mis en évidence l'influence de la composition d'huile essentielle sur la cinétique d'extraction des graines de coriandre et ont pu développer un modèle qui se base sur la contribution de chaque constituant d'huile. Ce travail a remis en question la validité de l'hypothèse simplificatrice qui considère l'huile essentielle comme étant un pseudo-composant.

En effet selon ces auteurs, l'huile essentielle peut être considérée comme un pseudo-composant que dans les deux cas suivants :

- Le changement dans la composition d'huile essentielle est peu significatif durant tout le processus d'extraction.
- Un changement insignifiant dans la constante cinétique.

Le modèle développé lors de cette étude, admet que la variation de la concentration de chaque constituant de l'huile essentielle suit une cinétique du premier ordre. Ainsi, le rendement en huile essentielle total serait la somme des rendements relatifs à chaque composé :

$$y = \sum y_i^{\infty} (1 - e^{-k_i t}) \quad (2.24)$$

$$\frac{y(t)}{y_{\infty}} = \sum_{i=1}^n \frac{y_{\infty i}}{y_{\infty}} (1 - \exp(-k_i * t)) \quad (2.25)$$

Avec :

i : indice du composé

k: constante cinétique.

Ce dernier modèle, appelé modèle général de contribution des constituants (GMCC) est difficile à appliquer du fait qu'il contient un très grand nombre de termes. Étant donné que l'huile essentielle peut être caractérisée par deux ou trois composants majoritaires, une simplification du dernier modèle peut être faite tout en garantissant une bonne précision.

Ainsi, un modèle plus simplifié appelé (SMCC) a été développé, le nombre de termes de ce dernier dépend du nombre de constituants majoritaires de l'huile essentielle. Deux modèles ont été développés et testés par les auteurs.

SMCC1 (simplified model of components contribution) : ce modèle est valable lorsque l'huile essentielle pourrait être caractérisée par un seul constituant majoritaire. Et se présente sous la forme :

$$Y(t) = Y_{\infty} (1 - f e^{-k_1 t} - (1 - f) e^{-k_2 t}) \quad (2.26)$$

Où

Y(t) : le rendement à un temps t

Y_∞ : le rendement à l'équilibre

f : Fraction du constituant majoritaire

1 - f : Fraction des autres constituants

k₁, k₂ : les constantes cinétiques du constituant majoritaire et des autres constituants respectivement

Ce modèle est identique aux modèles développés par (Milojevic et al, 2015) et (Sovova et al, 2006) même si l'approche n'est pas la même.

SMCC2 qui considère que l'huile essentielle serait constituée de deux constituants majoritaires, il est décrit par l'équation suivante :

$$y(t) = y_{\infty}(1 - g_1 e^{-k_1 t} - g_2 e^{-k_2 t} - (1 - g_1 - g_2) e^{-k_3 t}) \quad (2.27)$$

Où : g_1 : fraction du constituant majoritaire 1 et g_2 : fraction du constituant majoritaire 2

Dans ce travail, Benyoussef et ses collaborateurs (Benyoussef et al, 2013), ont démontré que l'hypothèse de considérer l'huile essentielle comme étant un pseudo-composé est à prendre avec beaucoup de précaution. De ce fait, ils ont développé un modèle qui tient compte de la composition de l'huile essentielle.

2.4 Conclusion

Les différents modèles, développés dans ce chapitre, décrivant le transfert de matière lors de l'extraction des huiles essentielles, reposent sur des hypothèses simplificatrices qui ne reflètent pas fidèlement l'expérience. Ces hypothèses peuvent être source d'erreurs conduisant ainsi à des modèles mathématiques imprécis.

Chapitre 3

Cinétiques d'extraction et modélisation de la consommation énergétique

3.1 Introduction

La préservation de l'énergie et de l'environnement sont aujourd'hui des enjeux majeurs pour les industries surtout avec les exigences des consommateurs qui ne cessent d'augmenter.

L'utilisation des procédés classiques implique des problèmes propres à la durée importante de l'opération et à la forte consommation d'énergie. Ces difficultés ont mené à la considération de l'utilisation des micro-ondes dans les procédés d'extraction des huiles essentielles. En effet, l'utilisation des micro-ondes permettrait d'obtenir une haute qualité de l'extrait, à coût moins élevé.

Pour cela, nous avons mené une étude visant la définition, la modélisation et l'optimisation de la consommation énergétique de l'hydrodistillation traditionnelle et assistée par micro-ondes.

3.2 Cinétiques d'extraction des huiles essentielles

3.2.1 Présentation du matériel végétal :

❖ Le genévrier commun :

Le genévrier commun est une espèce d'arbuste à cônes bleu violacé ressemblant à des baies (cône bacciformes), et aux feuilles épineuses. La taille de cet arbuste ou arbrisseau peut varier de 4 à 10 mètres de hauteur. Les feuilles sont des aiguilles persistantes, très piquantes, qui présentent une carène sur la face supérieure (Auger et Laporte, 1982)



Figure 3. 1 : Genévrier commun (*Juniperus communis*) (Blondeau, 2009-2011)

Espèce : Juniperus communis

Famille : Cupressaceae

Genre : Juniperus

Le genévrier est utilisé dans les cas de dyspepsie, d'acidité gastrique, de troubles de la digestion, mais aussi en cas d'inflammations des voies urinaires ou de calculs urinaires (Minker, 2013).

❖ **Magnolia sieboldii**

Magnolia sieboldii est un grand arbuste de 5 à 10 m de haut. Les tiges, les jeunes feuilles, les jeunes brindilles et les jeunes bourgeons sont pénibles. Les feuilles sont caduques, vertes, simples, alternes et elliptiques à longueur d'ovale.



Figure 3. 2 : *Magnolia sieboldii* (Coatham, 2013)

Espèce : *Magnolia sieboldii*

Famille : Magnoliaceae

Genre : *Magnolia*

La valeur décorative de *Magnolia sieboldii* résulte surtout de la senteur. Appropriée comme plante solitaire et comme arbre d'avenue à petite couronne (Brickell, 2003)

L'huile essentielle de *Magnolia* est réputée pour promouvoir décontraction et éveil des sens. Elle s'utilise notamment en cas de troubles du sommeil. C'est aussi une huile connue pour son odeur florale délicate et miellée.

3.2.2 Cinétiques d'extraction

3.2.2.1 Cinétiques d'extraction du genévrier:

L'huile essentielle du genévrier a été extraite par deux méthodes soit l'hydrodistillation et l'hydrodistillation assistée par micro-ondes

❖ Milojevic et al (2008)

Milojevic et ses collaborateurs (Milojevic et al, 2008) ont étudié l'extraction de l'huile essentielle à partir de baies mûres broyées du genévrier à différentes vitesses d'hydrodistillation en faisant varier la puissance d'entrée.

Dans ce travail, les auteurs ont fixé le rapport baie-eau à 1: 3 (g / g) soit (1000 g de baie pour 3000g d'eau) et ils ont fait varier la vitesse d'hydrodistillation en faisant varier l'entrée de puissance. Le processus d'hydrodistillation a été effectué à quatre vitesses, soit 0.13, 3.6, 10.0 et 11.7 mL/min, correspondant à l'entrée de puissance de 150, 340, 580 et 700 W, respectivement.

Les points expérimentaux sont représentés sur la courbe suivante :

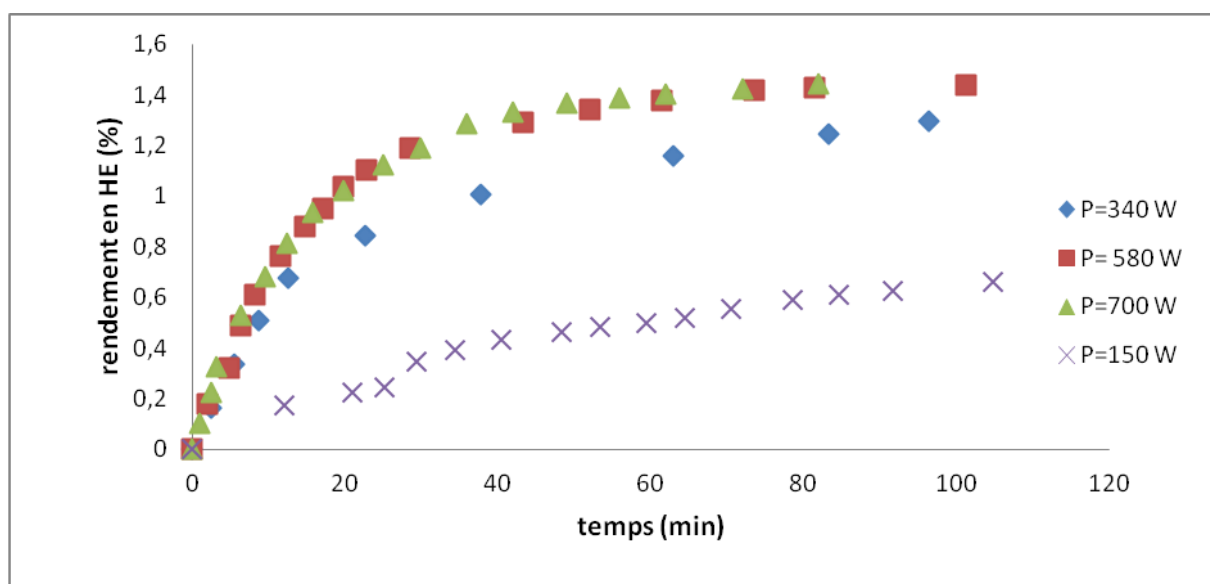


Figure 3. 3 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle de genévrier par hydrodistillation (Milojevic et al, 2008).

La figure 3.3 montre que le rendement en huile de genièvre pendant le processus d'hydrodistillation augmente pour différentes puissances de chauffe. Nous pouvons facilement observer deux étapes de distillation d'huile de genièvre. Pendant la phase initiale de la distillation d'huile, le rendement en huile de genièvre a augmenté rapidement puis avec le déroulement du processus d'hydrodistillation, un rendement d'huile presque constant est atteint. Ce mécanisme d'extraction de l'huile par hydrodistillation est étroitement lié à l'anatomie des baies de genièvre et à leur broyage.

❖ **Pavicevic et al (2015)**

Pavicevic et ces collaborateurs (Pavicevic et al, 2015), ont étudié l'extraction des huiles essentielles des baies de genièvre par hydrodistillation et hydrodistillation assisté par micro-ondes à différents débits de vapeur.

Pour MAHD, les baies de genièvre (300 g) ont été distillées avec de l'eau (900 mL) à la pression atmosphérique à l'intérieur d'un appareil Clevenger placé dans un four à micro-ondes modifié. L'intensité du chauffage dans le processus a assuré un débit de vapeur de 3, 6 et 9 mL. min⁻¹ correspondant à une puissance de 300, 450, 720 W.

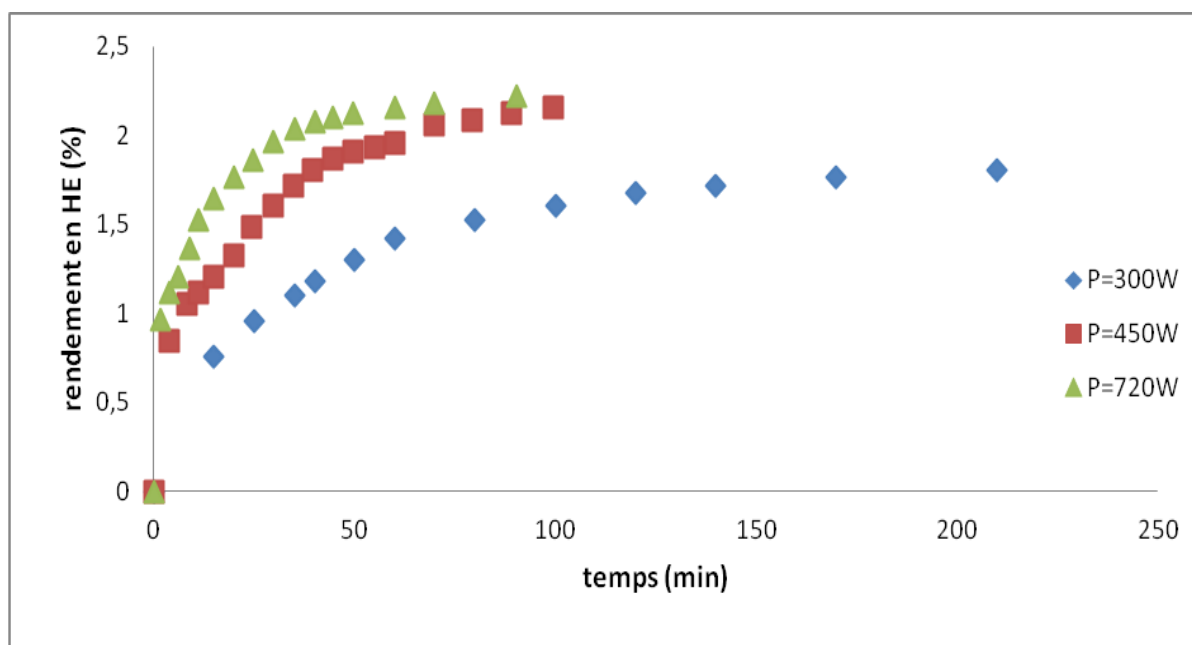


Figure 3. 4 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle des baies de genièvre par hydrodistillation et hydrodistillation assistée par micro-ondes (Pavicevic et al, 2015)

De même, l'augmentation de l'apport d'énergie des micro-ondes, indiquée par l'augmentation du débit de vapeur, entraîne une croissance du rendement d'huile essentielle à l'équilibre.

Nous remarquons deux parties : une première qui évolue rapidement et une deuxième à partir de 50 minutes qui augmente lentement jusqu'à atteindre un palier ou il n'y a plus une augmentation de la quantité d'huile dans le distillat, ce qui indique la fin du processus de l'extraction.

3.2.2.2 Cinétiques d'extraction de *Magnolia sieboldii*

Magnolia sieboldii a été utilisé pour la comparaison entre l'hydrodistillation et l'hydrodistillation assistée par micro-ondes.

❖ **Chen et al (2015)**

L'huile essentielle des feuilles fraîches de *Magnolia sieboldii* a été extraite en utilisant plusieurs méthodes dont HD et MAHD où 30 g des échantillons frais ont été distillés dans un appareil du type Clevenger. Le chauffage s'est fait soit par une enveloppe de chauffage pour HD ou par un four à micro-ondes pour MAHD. La distillation de l'huile essentielle a été préformée pendant 4 h pour HD sous 500 W et pendant 1 h sous 550W pour MAHD. Les résultats expérimentaux obtenus pour l'HD et la MAHD sont représentés dans la figure ci-dessous :

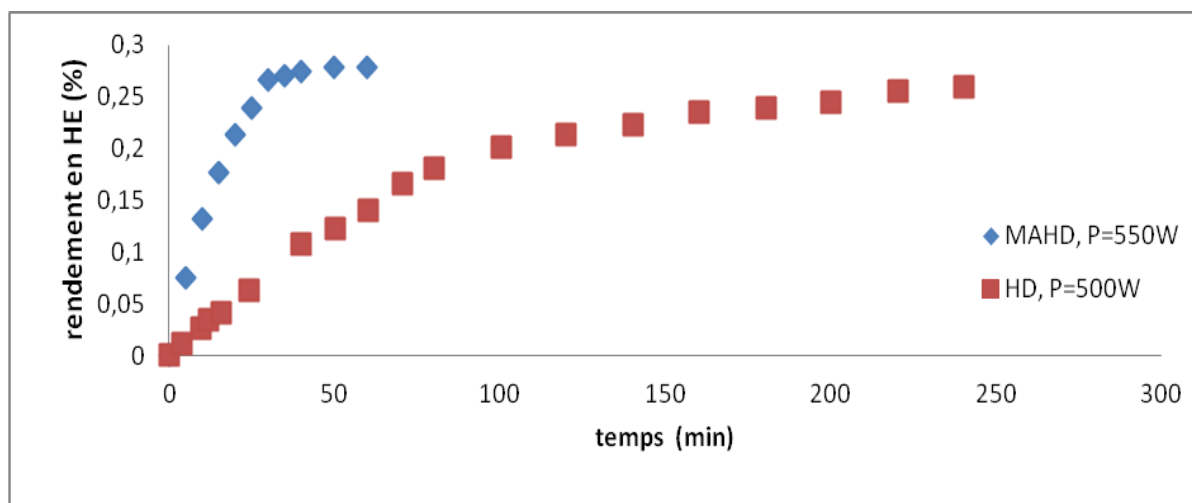


Figure 3. 5 : Cinétiques d'extraction de l'huile essentielle de *Magnolia sieboldii* (Chen et al, 2015)

Le chauffage par micro-ondes a un effet favorable sur la cinétique d'extraction, en effet le rendement a atteint son maximum après seulement 1 h de chauffage, alors que l'hydrodistillation met 4 fois plus de temps pour atteindre le même rendement en huile essentielle. Dans ce cas, nous avons aussi les deux parties citées précédemment.

3.2.3 Simulation des cinétiques d'extraction

A partir de l'étude de l'équipe de Benyoussef (Mehenaoui et Sebbagh, 2017), trois modèles ont été choisis pour la modélisation des cinétiques d'extraction : un modèle pseudo premier ordre (Koul et al, 2004), modèle 1 (Mehenaoui et Sebbagh, 2017) et modèle 2 (Mehenaoui, Sebbagh, 2017) et cela pour les deux plantes considérées (*genévrier* et *Magnolia sieboldii*).

Ces modèles ont été choisis car ils ont donné les meilleures simulations avec un bon coefficient de corrélation.

Les équations des modèles, ainsi que les résultats de la simulation à l'aide de Matlab sont données dans ce qui suit :

3.2.3.1 Modèle pseudo premier ordre :

$$q(t) = q_{\infty}(1 - \exp(-kt)) \quad (3.1)$$

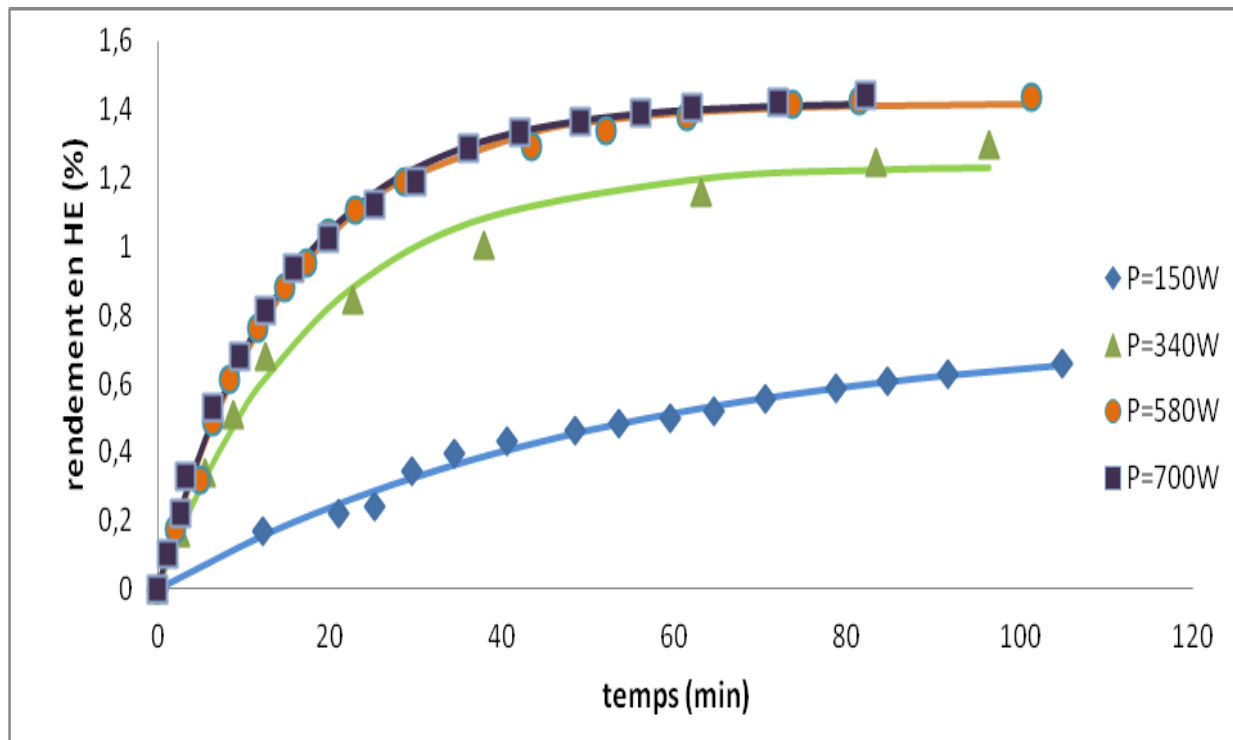


Figure 3. 6 : Simulation de la cinétique d'extraction par le modèle pseudo premier ordre (Milojevic et al, 2008)

Tableau 3. 1 : Paramètres du modèle pseudo 1^{er} ordre simulé pour la cinétique d'extraction d'HE du genévre par hydrodistillation (Milojevic et al, 2008).

	Puissance (W)	Paramètres du modèle		
		q_{∞} (%)	k (min ⁻¹)	R^2
Modèle du pseudo premier ordre	150	0,758	0,018	0,989
	340	1,237	0,055	0,990
	580	1,416	0,064	0,997
	700	1,421	0,066	0,998

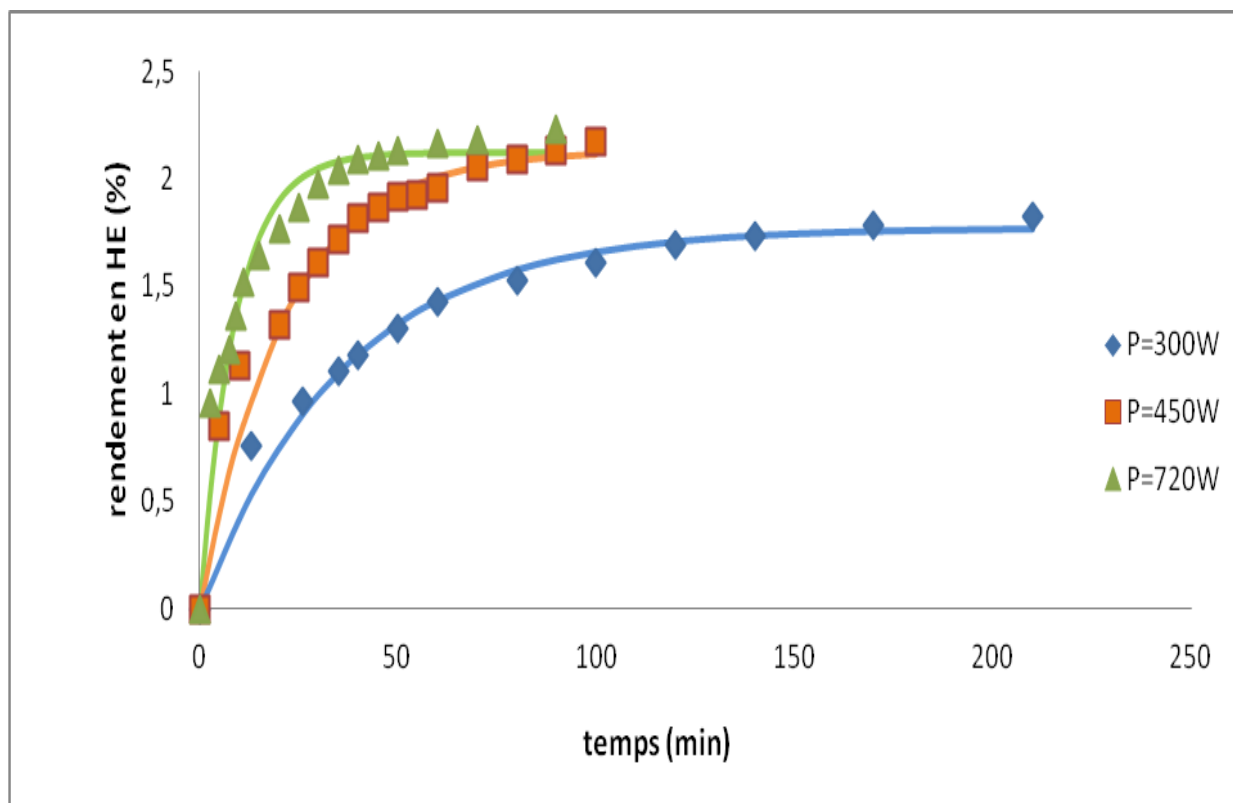


Figure 3. 7 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle pseudo premier ordre (Pavicevic et al, 2015)

Tableau 3. 2 : Paramètres du modèle pseudo 1^{er} ordre simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015)

Modèle du pseudo premier ordre	Puissance (W)	Paramètres du modèle		
		q_{∞} (%)	k (min ⁻¹)	R^2
	300	1,769	0,027	0,995
	450	2,137	0,047	0,991
	720	2,121	0,112	0,990

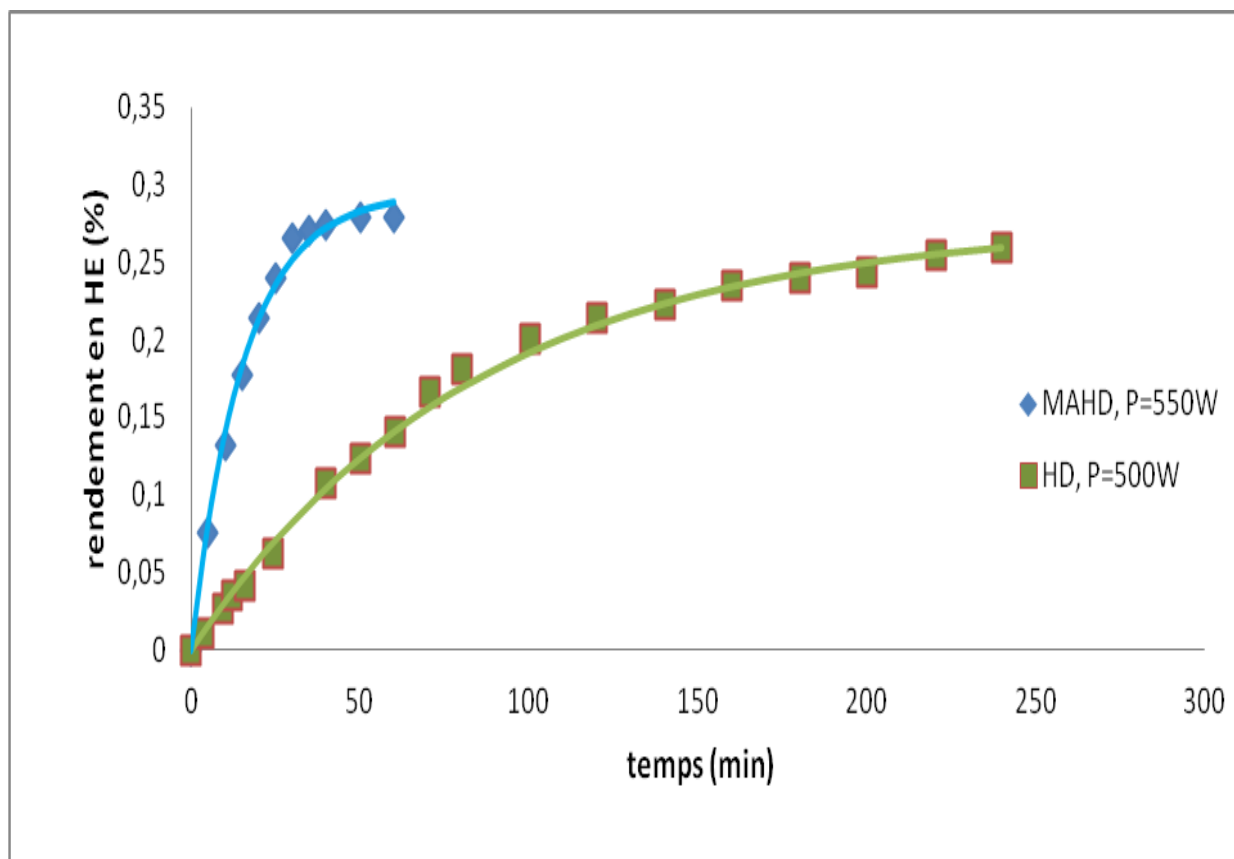


Figure 3. 8 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle pseudo 1^{er} ordre (Chen et al, 2015)

Tableau 3. 3 : Paramètres du modèle pseudo 1^{er} ordre simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de *Mangolia Sieblodii* par HD et MAHD.

Modèle du pseudo premier ordre	Technique	Paramètres du modèle		
		q_{∞} (%)	k (min ⁻¹)	R^2
	HD	0,274	0,011	0,996
	MAHD	0,295	0,064	0,994

3.2.3.2 Modèle 1

$$q(t) = q_{\infty} \left[\frac{f \cdot t}{b + t} + (1 - f) \cdot (1 - \exp(-k \cdot t)) \right] \quad (3.2)$$

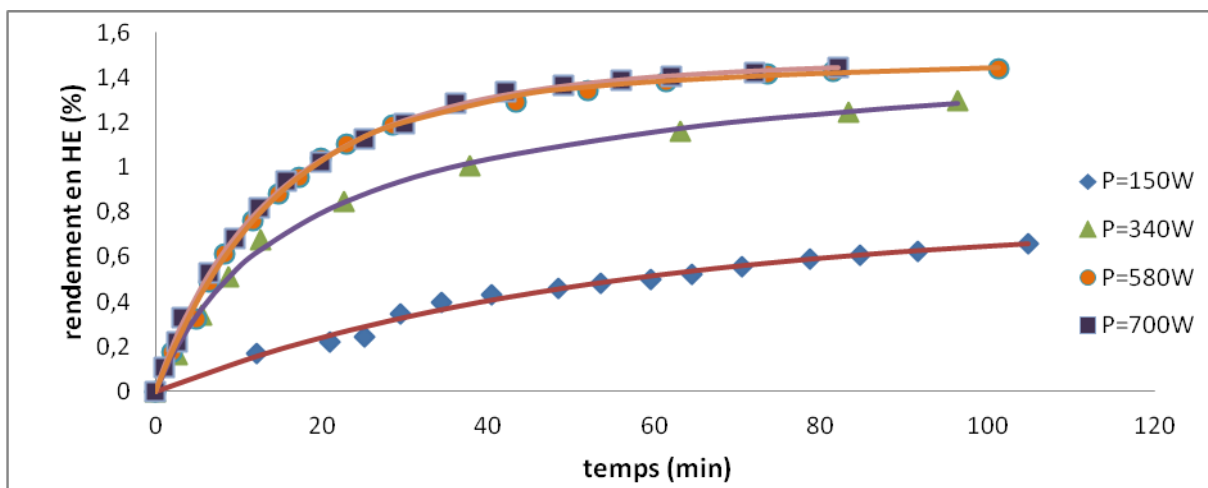


Figure 3. 9 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Milojevic et al, 2008)

Tableau 3. 4 : Paramètres du modèle 1 simulé pour la cinétique d'extraction d'HE du genièvre par hydrodistillation (milojevic et al, 2008).

	Puissance (W)	Paramètres du modèle				
		q_{∞} (%)	f	B	k (min ⁻¹)	R^2
Modèle 1	150	0,877	0,234	230,9	0,0202	0,989
	340	2,359	0,589	15,73	0,0009	0,997
	580	1,458	0,170	15	0,0655	0,997
	700	1,533	0,448	11,51	0,0614	0,999

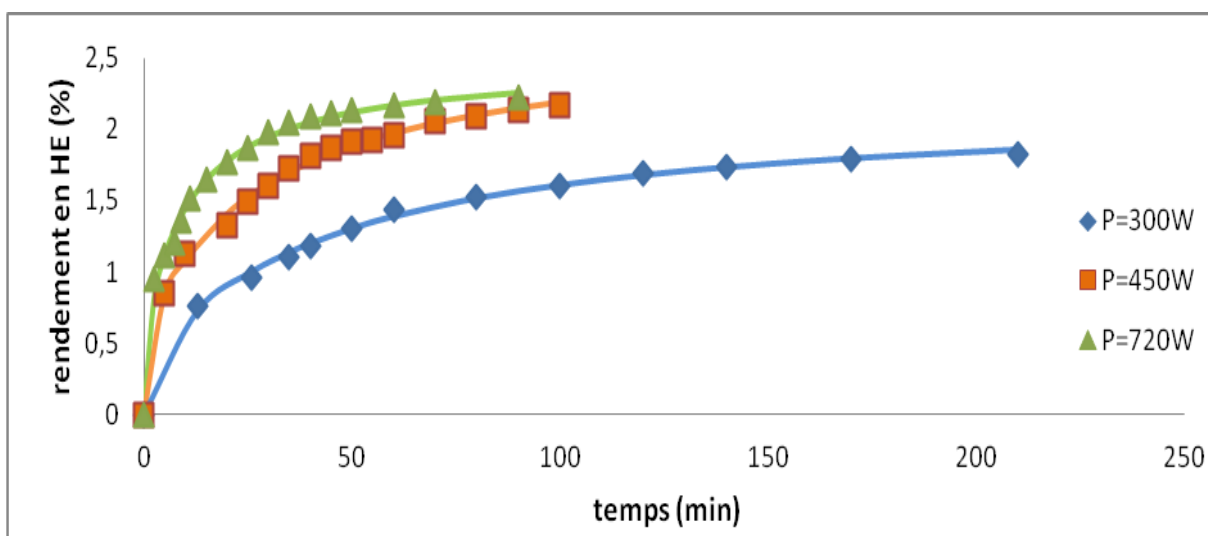


Figure 3. 10 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Pavicevic et al, 2015).

Tableau 3. 5 : Paramètres du modèle 1 simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015)

Modèle 1	Puissance (W)	Paramètres du modèle				
		q_{∞} (%)	f	B	k (min ⁻¹)	R^2
	300	2,174	0,861	43,61	1	0,997
	450	2,675	0,794	29,6	0,821	0,996
	720	2,463	0,804	10,53	1	0,993

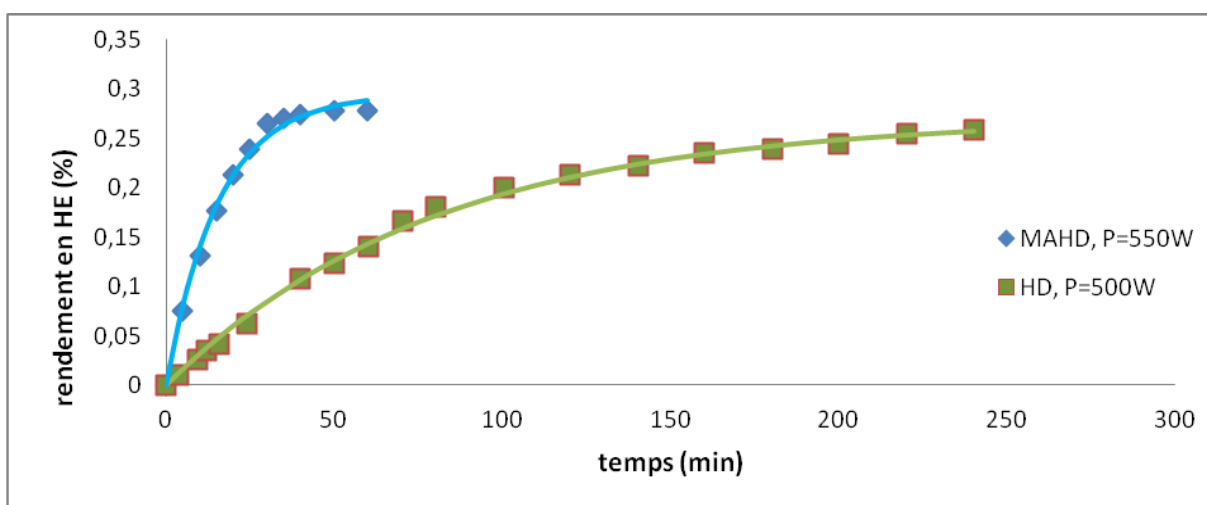


Figure 3. 11 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 1 (Chen et al, 2015)

Tableau 3. 6 : Paramètres du modèle 1 simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de Mangnolia Sieblodii par HD et MAHD.

Modèle 1	Technique	Puissance (W)	Paramètres du modèle				
			q_{∞} (%)	f	b	k (min ⁻¹)	R^2
	HD	500	2,6	0,406	44,36	0,057	0,999
	MAHD	550	0,296	0,002	122,2	0,063	0,994

3.2.3.3 Modèle 2

$$q(t) = \begin{cases} at[1 - \exp(-b)] & \text{pour } t \leq t^* \\ q_{\infty}[1 - (1 - G) \exp(-k(t - t^*))] & \text{pour } t > t^* \end{cases} \quad (3.3)$$

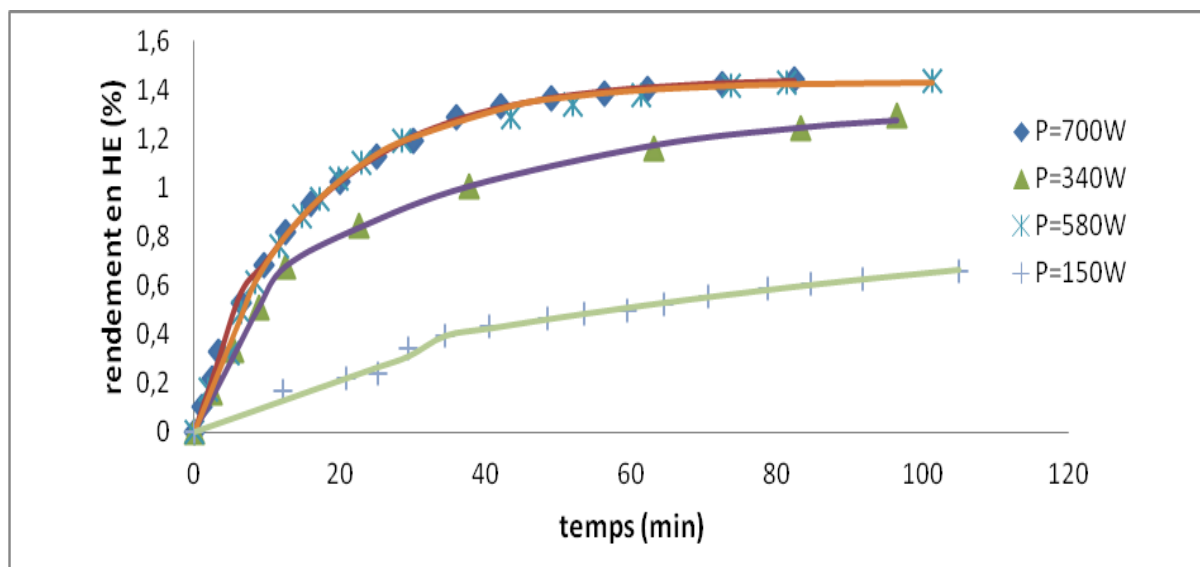


Figure 3. 12 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Milojevic et al, 2008)

Tableau 3. 7 : Paramètres du modèle 2 simulé pour la cinétique d'extraction de HE du genièvre par hydrodistillation (Milojevic et al, 2008).

	Puissance (W)	t^* (min)	Paramètres du modèle						
			Partie 1 : $t \leq t^*$			Partie 2 : $t > t^*$			
			a	B	R^2	q_∞ (%)	G	k (min^{-1})	R^2
Modèle 2	150	29,4	0,103	0,108	0,932	0,989	0,371	0,008	0,996
	340	8,8	0,132	0,569	0,994	1,345	0,451	0,026	0,997
	580	11,6	0,141	0,738	0,989	1,433	0,434	0,059	0,994
	700	6,4	0,153	0,869	0,982	1,445	0,370	0,056	0,998

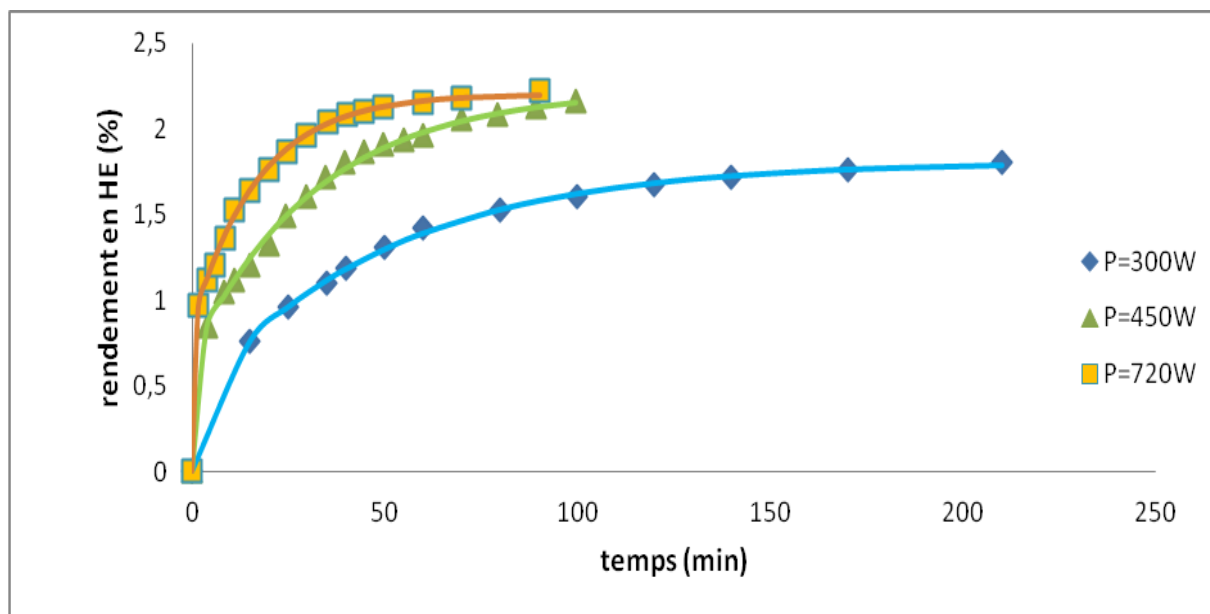


Figure 3. 13 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Pavicevic et al, 2015)

Tableau 3. 8 : Paramètres du modèle 2 simulé pour les cinétiques d'extraction du genièvre par hydrodistillation assistée par micro-onde (Pavicevic et al, 2015)

	Puissance (W)	t^* (min)	Paramètres du modèle						
			Partie 1 : $t \leq t^*$			Partie 2 : $t > t^*$			
			a	b	R^2	q_∞ (%)	G	k (min^{-1})	R^2
modèle 2	300	15	0,126	0,509	0,999	1,809	0,4259	0,020	0,9979
	450	4	0,246	2,197	0,999	2,229	0,3791	0,030	0,9964
	720	2	0,586	5,805	0,999	2,202	0,4411	0,058	0,9964

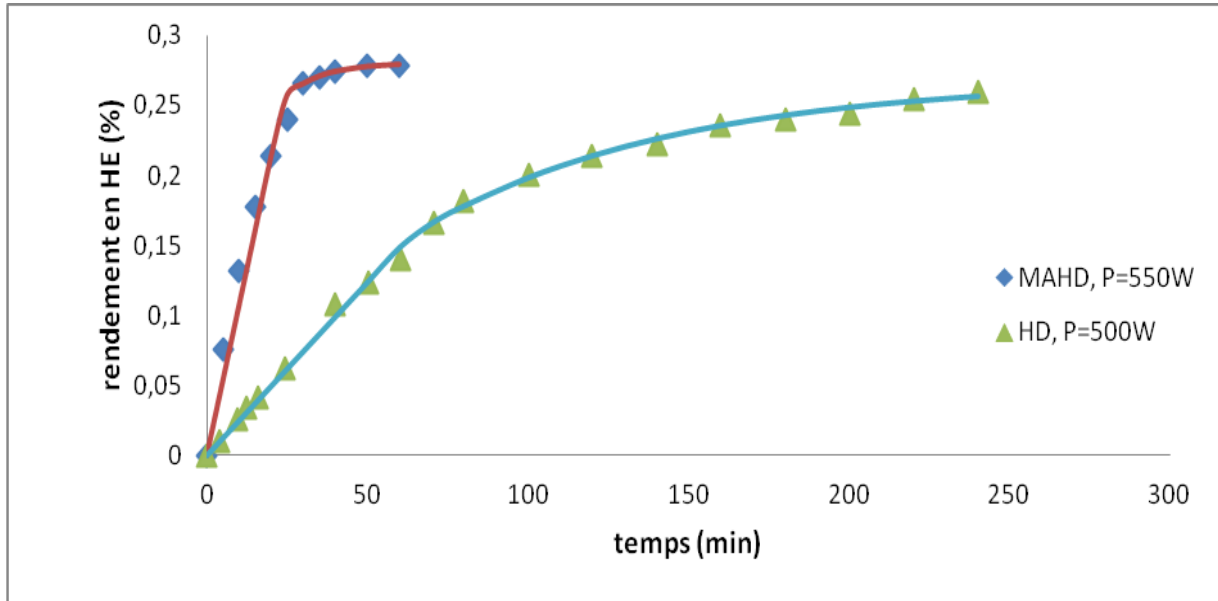


Figure 3. 14 : Simulation des cinétiques d'extraction par le modèle 2 (Chen et al, 2015)

Tableau 3. 9 : Paramètres du modèle 2 simulé pour les cinétiques d'extraction d'HE de Mangnolia Sieblodii par HD et MAHD.

Modèle 2	Technique	Puissance (W)	t^* (min)	Paramètres du modèle						
				Partie 1 : $t \leq t^*$			Partie 2 : $t > t^*$			
				A	b	R^2	q_{∞} (%)	G	k (min^{-1})	R^2
	MAHD	550	25	0,118	0,094	0,947	0,280	0,917	0,089	0,985
	HD	500	70	0,1	0,024	0,992	0,277	0,617	0,010	0,989

Nous remarquons que les trois modèles donnent de bons résultats en comparant avec les données expérimentales

3.3 Modélisation de la consommation énergétique

Pour étudier l'évolution de la consommation énergétique durant le processus d'extraction de l'huile essentielle à partir des deux plantes. Nous utilisons le modèle 1 pour l'extraction de l'huile du genévrier car il représente au mieux les cinétiques d'extraction et le modèle 2 pour l'extraction de l'huile de Mangnolia Sieblodii.

3.3.1 Modélisation énergétique du génévrier

Etant donné que l'équation du modèle 1 utilisée n'est pas linéaire, donc nous ne pouvons pas avoir directement, le temps en fonction du taux de récupération.

Nous allons en premier modéliser la vitesse d'extraction en fonction du temps à partir du modèle 1

Nous avons l'équation (3.2) suivante

$$q(t) = q_{\infty} \left[\frac{f \cdot t}{b + t} + (1 - f) \cdot (1 - \exp(-k \cdot t)) \right]$$

Et

$$v = \frac{dq}{dt} \quad (3.4)$$

D'où

$$v = q_{\infty} \left(\frac{fb}{(t + b)^2} + k(1 - f) \exp(-kt) \right) \quad (3.5)$$

La variation de la vitesse est représentée dans les figures suivantes

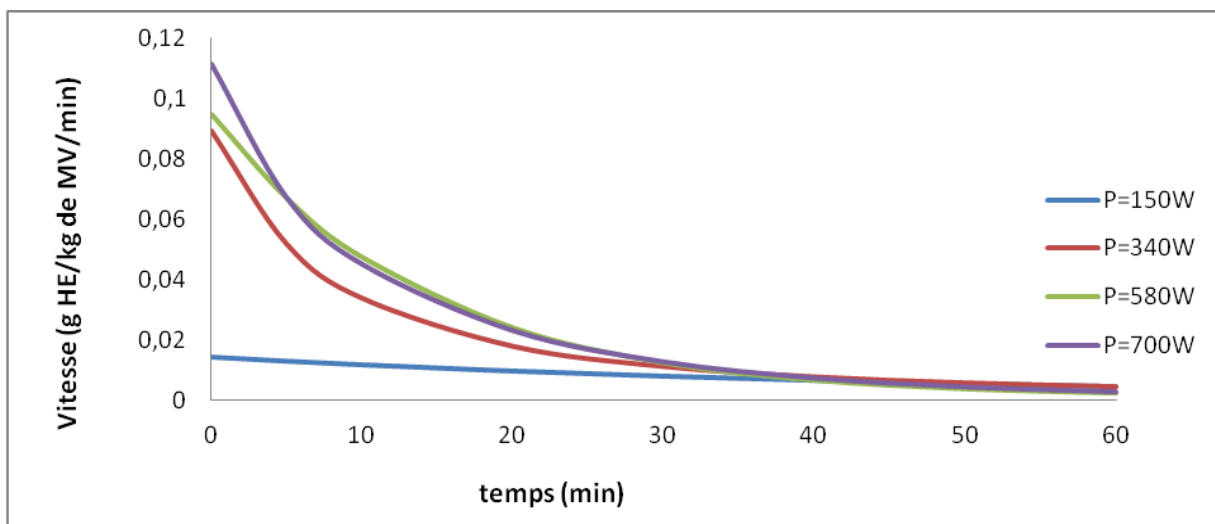


Figure 3. 15 : Vitesse d'extraction de l'huile essentielle du génévrier en fonction du temps et pour différentes puissances de chauffage par HD (Milojevic et al, 2008).

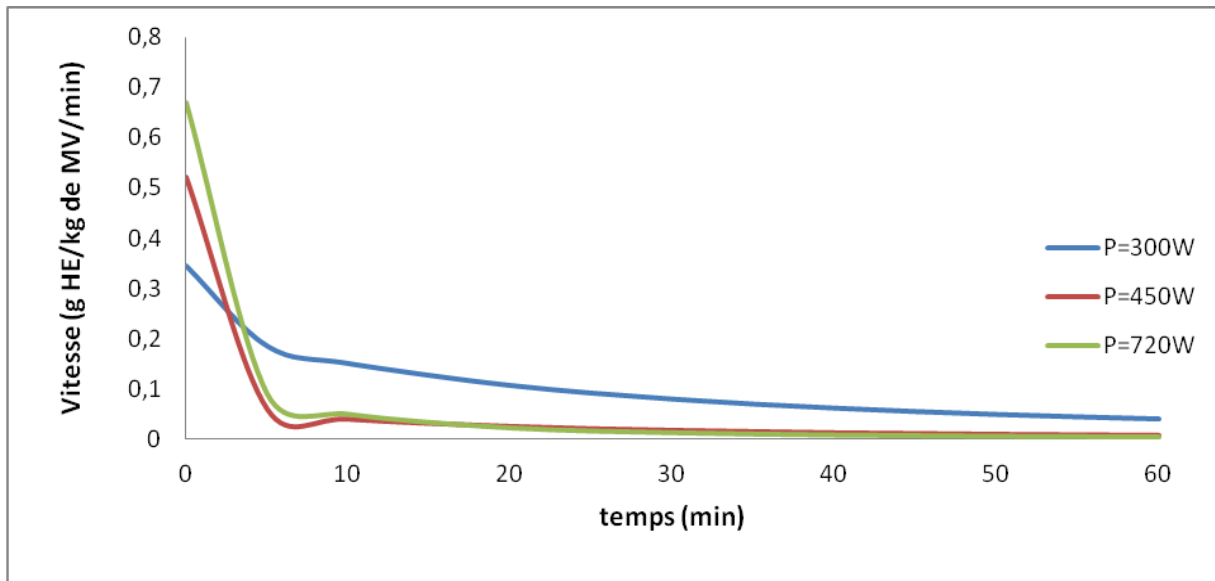


Figure 3. 16 : Vitesse d'extraction de l'huile essentielle du genévrier en fonction du temps et pour différentes puissances de chauffage par MAHD (Pavicevic et al, 2015)

Les figures 3.15 et 3.16 représentent l'évolution de la vitesse d'extraction, de l'huile de genévrier simulé par le modèle 1 (Mehenaoui et Sebbagh, 2017), en fonction du temps sous différentes puissances de chauffe. Les allures des courbes pour les deux méthodes, montrent clairement que plus la puissance de chauffe est importante, plus la vitesse au début de l'extraction est grande, puis elle diminue rapidement jusqu'à s'annuler, après, environ, une demi-heure de temps.

L'analyse de la puissance qui représente l'énergie consommée par unité de temps et de la vitesse d'extraction traduite par la masse d'huile récupérée par unité de temps et par unité de masse de matière végétale utilisée, nous a permis d'écrire le développement mathématique qui exprime la consommation énergétique en quantité d'énergie par gramme d'huile essentielle extraite

Nous avons :

$$P = \frac{E}{t} \quad (3.6)$$

Et

$$v = \frac{dq}{dt}, (gHE/t) \quad (3.7)$$

Nous obtenons ainsi

$$P/v = (E/t)/(gHE/t) = E/gHE \quad (3.8)$$

Donc l'expression de la quantité d'énergie consommée par gramme d'huile extraite en simulant avec le modèle 1 (Mehenaoui et Sebbagh, 2017) est donnée comme suit :

$$E/gHE(t) = P / \left[q_{\infty} \left(\frac{fb}{(t+b)^2} + k(1-f)\exp(-kt) \right) \right] \quad (3.9)$$

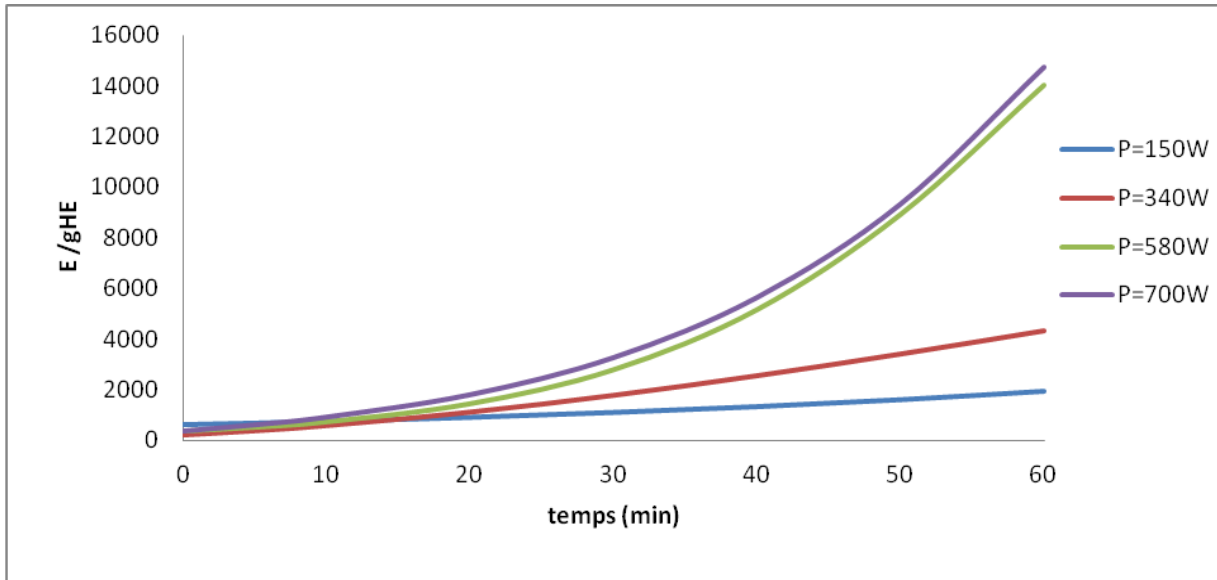


Figure 3. 17 : L'évolution de la consommation énergétique par gramme d'huile essentielle de genévrier extraite en fonction du temps par HD, simulée par le modèle 1 (Milojevic et al, 2008).

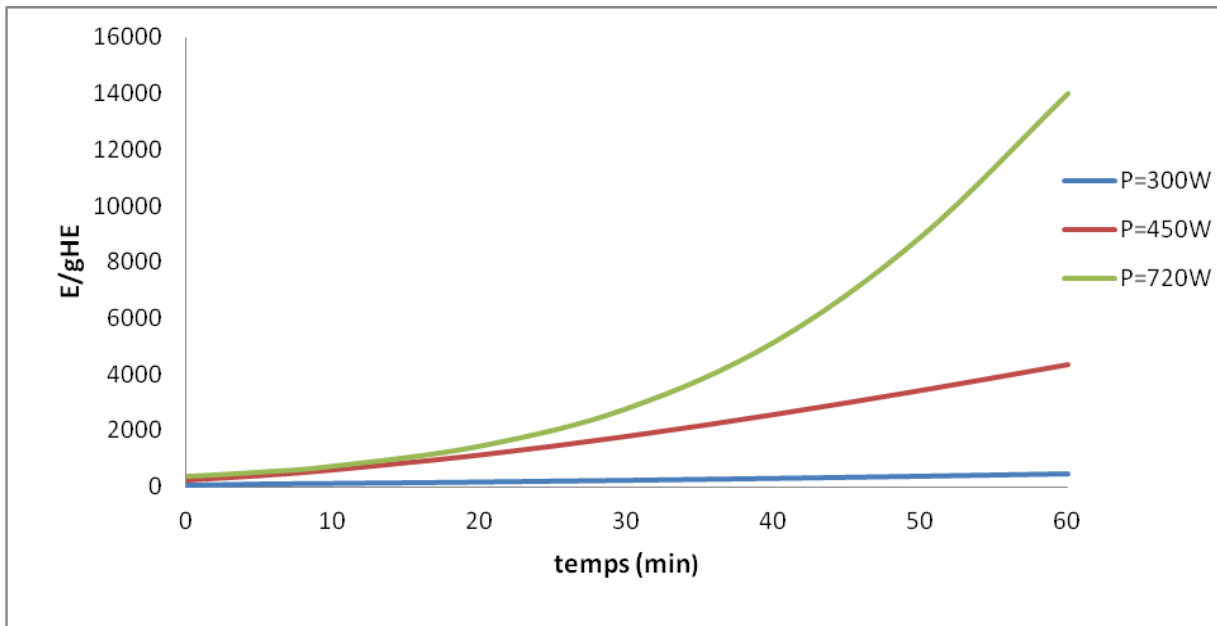


Figure 3. 18 : L'évolution de la consommation énergétique par gramme d'huile essentielle de genévrier extraite en fonction du temps par MAHD, simulée par le modèle 1 (Pavicevic et al, 2015).

La consommation d'énergie par gramme d'huile essentielle extraite en fonction du temps, devient de plus en plus importante quand on augmente la puissance de chauffe comme la montre les figures 3.17 et 3.18 pour le genévrier.

Pour une meilleure maîtrise de la consommation énergétique du procédé d'hydrodistillation classique et assistée par micro-ondes, nous avons pensé à représenter l'évolution de l'énergie consommée en fonction de la quantité d'huile essentielle extraite. Pour cela, nous utilisons le modèle pseudo premier ordre qui lui aussi a donné une bonne simulation des résultats expérimentaux pour exprimer le temps en fonction du taux de récupération.

L'équation du modèle pseudo premier ordre est

$$q(t) = q_{\infty}(1 - \exp(-kt)) \quad (3.10)$$

D'où l'expression du temps en fonction du taux de récupération s'écrit sous la forme suivante

$$t = \frac{-1}{k} \ln\left(1 - \frac{q}{q_{\infty}}\right) \quad (3.11)$$

Sachant que

$$E = P * t \quad (3.12)$$

En remplaçant l'équation (3.11) dans l'équation précédente

$$E = P * \left[\frac{-1}{k} \ln\left(1 - \frac{q}{q_{\infty}}\right) \right] \quad (3.13)$$

La simulation de l'évolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération sous différentes puissances de chauffe, durant l'extraction de l'huile de genévrier par hydrodistillation traditionnelle et assistée par micro-ondes sont représentés dans les figures suivantes

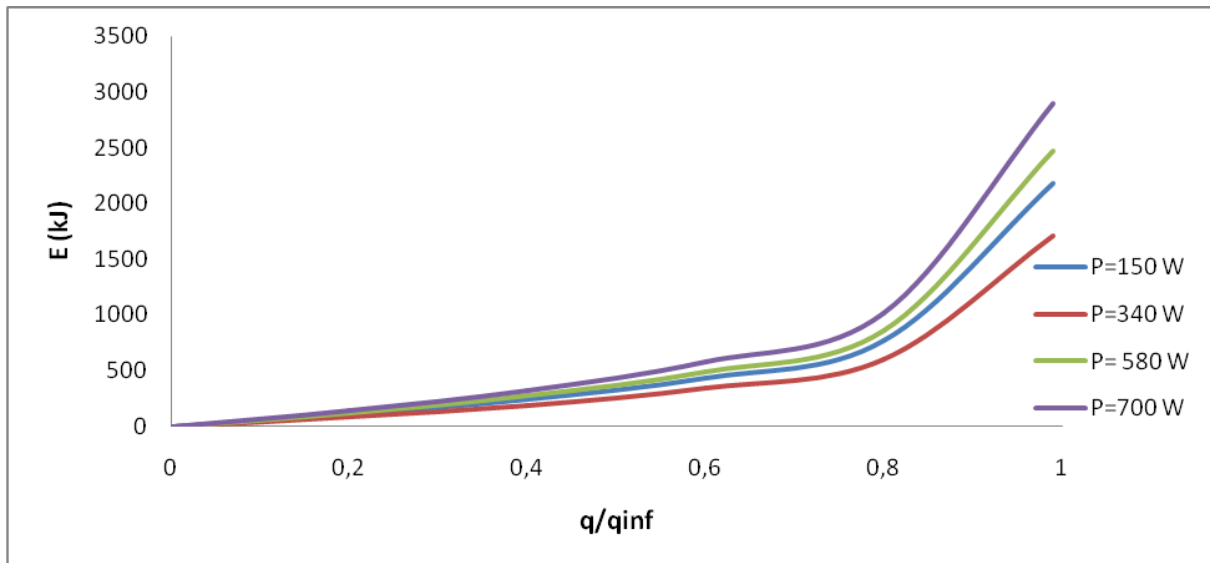


Figure 3. 19 : Evolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération, simulée par le modèle du 1er ordre, dans le cas de l'extraction de génévrier par HD (Milojevic et al, 2008).

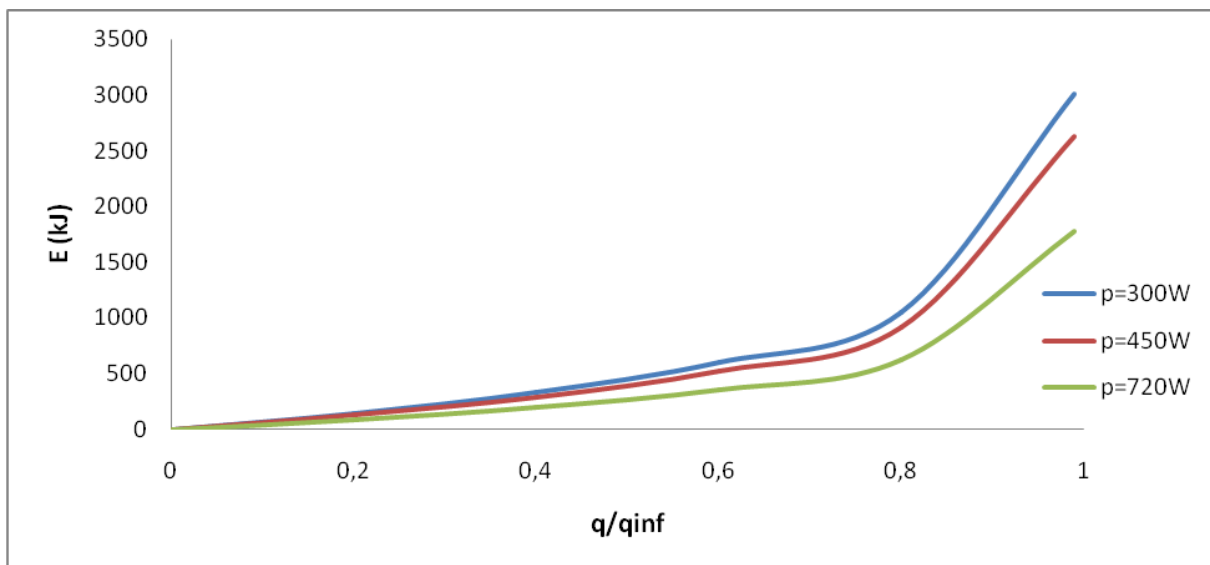


Figure 3. 20 : Evolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération, simulée par le modèle du 1er ordre, dans le cas de l'extraction de génévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).

Pour mieux percevoir les variations de la consommation énergétique, les résultats précédents ont été représentés sous forme d'histogramme

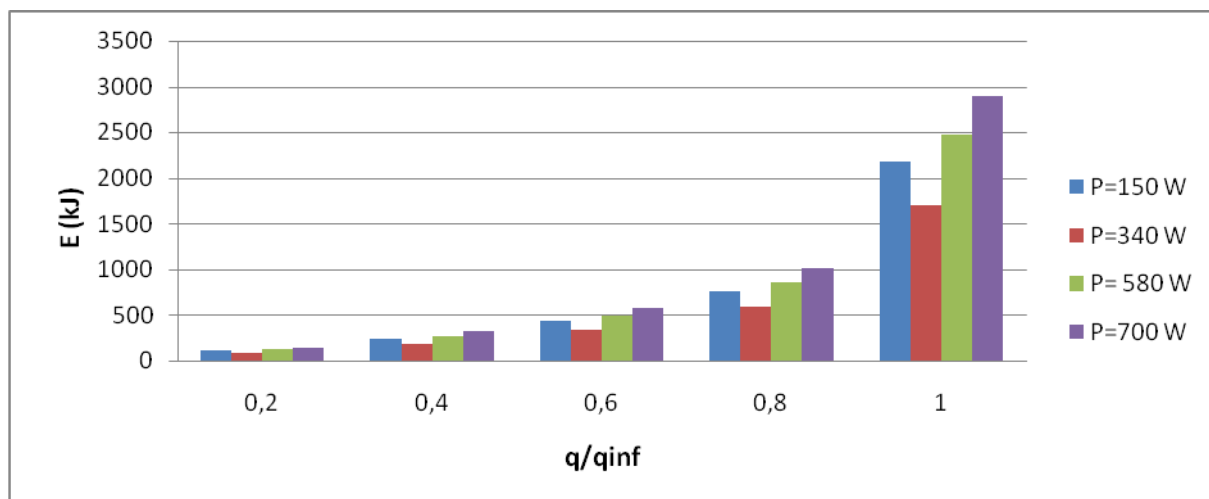


Figure 3. 21 : Histogramme représentant la consommation énergétique pour différentes puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par HD (Milojevic et al, 2008).

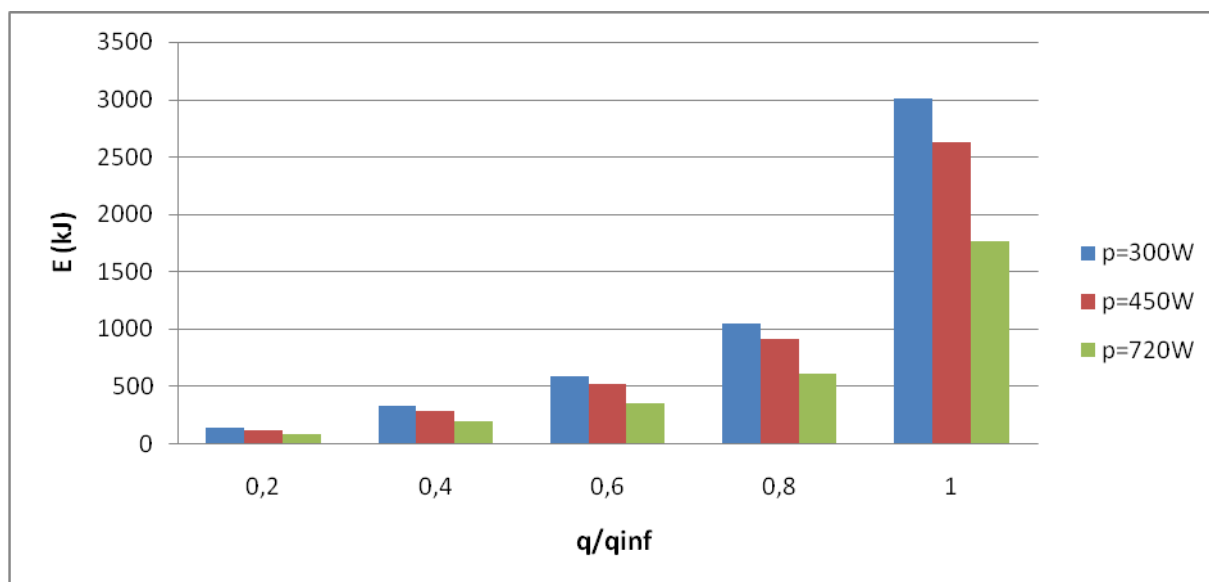


Figure 3. 22 : Histogramme représentant la consommation énergétique pour différentes puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).

Les figures 3.19, 3.20, 3.21 et 3.22 représentent le pourcentage d'énergie consommée en fonction de la quantité d'huile produite.

Les résultats montrent une augmentation rapide de la consommation énergétique avec l'augmentation du taux de récupération, cette augmentation est linéaire au début puis vite devient exponentielle, nous remarquons ainsi que le passage de 80 % de production d'huile à 99 %, nécessite approximativement le double de l'énergie consommée, il n'est donc pas utile de poursuivre l'extraction à sa limite et atteindre un rendement de 99% puisque la consommation énergétique augmente et la qualité de l'huile essentielle se détériore.

Il est préférable d'arrêter l'extraction à un taux de récupération d'huile d'environ 80% pour éviter les pertes considérables d'énergie.

L'observation des deux histogrammes 3.21 et 3.22, nous apporte que la consommation énergétique varie avec l'augmentation de la puissance de chauffe. Comme pour l'extraction de l'huile de genévrier par HD, nous avons une diminution puis une augmentation de la consommation énergétique, par contre, l'extraction de l'huile de genévrier par MAHD, nous apercevons qu'une diminution de l'énergie. Cela indique la présence d'un minimum qui correspond à une puissance optimale.

Pour situer cette puissance, Nous avons tracé l'évolution de la consommation énergétique en fonction des puissances de chauffe.

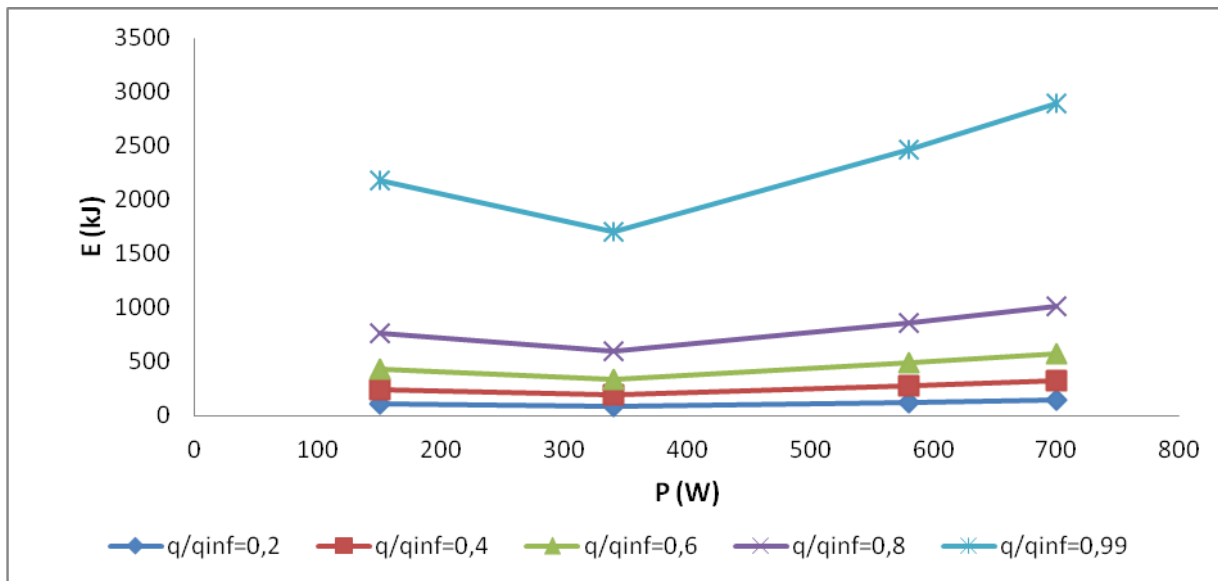


Figure 3. 23 : L'énergie consommée en fonction des puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par HD (Milojevic et al, 2008).

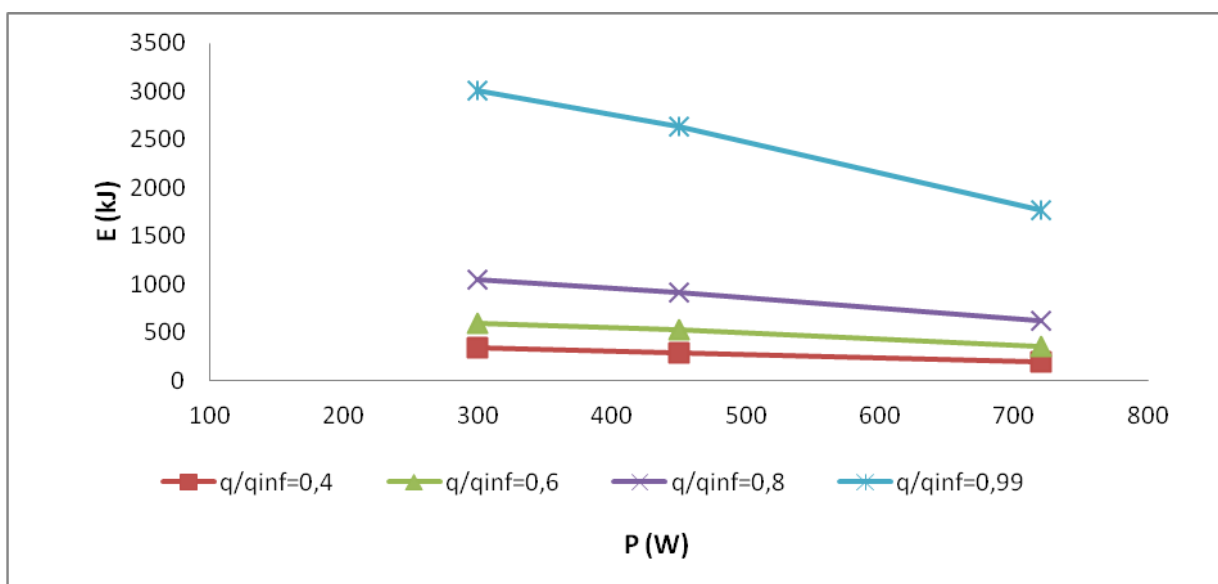


Figure 3. 24 : L'énergie consommée en fonction des puissances de chauffe pour l'extraction de l'huile de genévrier par MAHD (Pavicevic et al, 2015).

Les figures 3.23 et 3.24 confirment la présence d'un optimum. La puissance optimale pour l'extraction de l'huile essentielle de genévrier par HD se situerait d'après les graphiques entre 300 et 400 W mais pour l'extraction de l'huile essentielle de genévrier par MAHD, L'optimum énergétique est atteint pour 700W environ.

3.3.2 Modélisation énergétique de Mangnolia Sieblodii

L'extraction de l'huile essentielle de Mangnolia Sieblodii consiste à comparer entre l'hydrodistillation et l'hydrodistillation assistée par micro-ondes pour mieux comprendre l'avantage d'utiliser les micro-ondes.

Nous utilisons dans ce cas, le modèle 2 (Mehenaoui et Sebbagh, 2017) qui simule bien les deux parties linéaire et exponentielle de la cinétique d'extraction. Nous pouvons directement extraire le temps de ce modèle donc nous allons simuler la consommation énergétique en fonction du taux d'extraction

Soit l'équation (3.3)

$$q(t) = \begin{cases} at[1 - \exp(-b)] & \text{pour } t \leq t^* \\ q_{\infty}[1 - (1 - G) \exp(-k(t - t^*))] & \text{pour } t > t^* \end{cases}$$

Où

$$t = \begin{cases} \frac{q}{q_{\infty}} \left[\frac{1}{c(1 - \exp(-b))} \right] & \text{pour } t \leq t^* \\ \left[\frac{-1}{k} \ln \left(\frac{1}{(1-G)} \left(1 - \frac{q}{q_{\infty}} \right) \right) \right] + t^* & \text{pour } t > t^* \end{cases} \quad (3.14)$$

Et

$$E = P * t$$

Donc

$$E = \begin{cases} P * \frac{q}{q_{\infty}} \left[\frac{1}{c(1 - \exp(-b))} \right] & \text{pour } t \leq t^* \\ P * \left[\frac{-1}{k} \ln \left(\frac{1}{(1-G)} \left(1 - \frac{q}{q_{\infty}} \right) \right) \right] + t^* & \text{pour } t > t^* \end{cases} \quad (3.15)$$

La simulation de l'évolution de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération sous différentes puissances de chauffe pour la comparaison entre l'hydrodistillation et l'hydrodistillation assistée par micro-ondes, durant l'extraction de l'huile de Mangnolia Sieblodii sont représentés dans les figures suivantes :

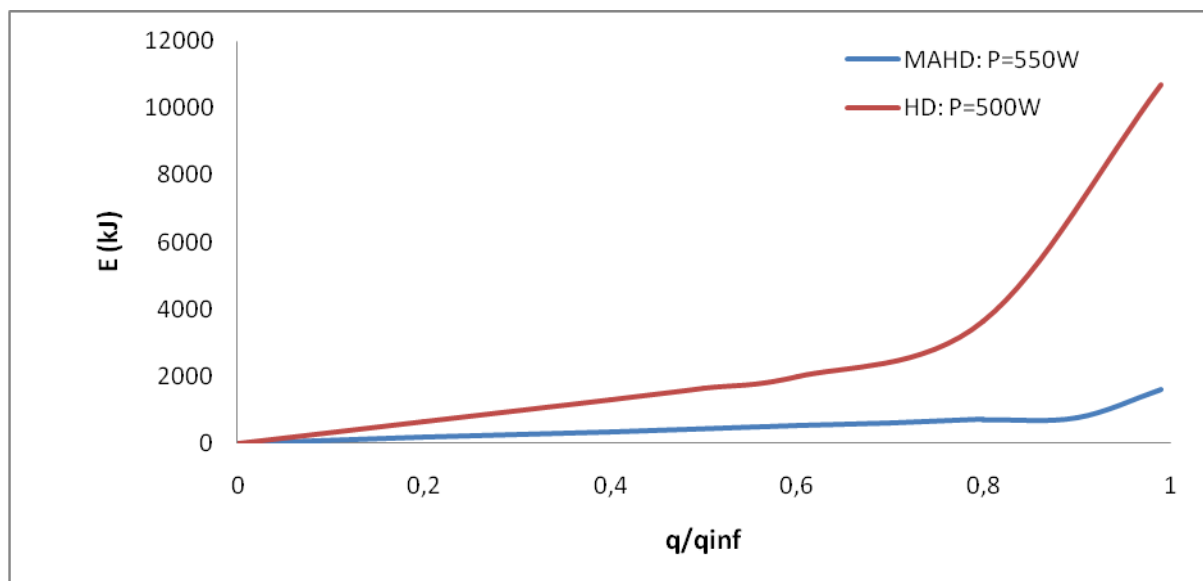


Figure 3. 25 : Consommation énergétique du procédé classique HD et du procédé analogue MAHD pour l'extraction de *Mangnolia Sieblodii* (Chen et al, 2015)

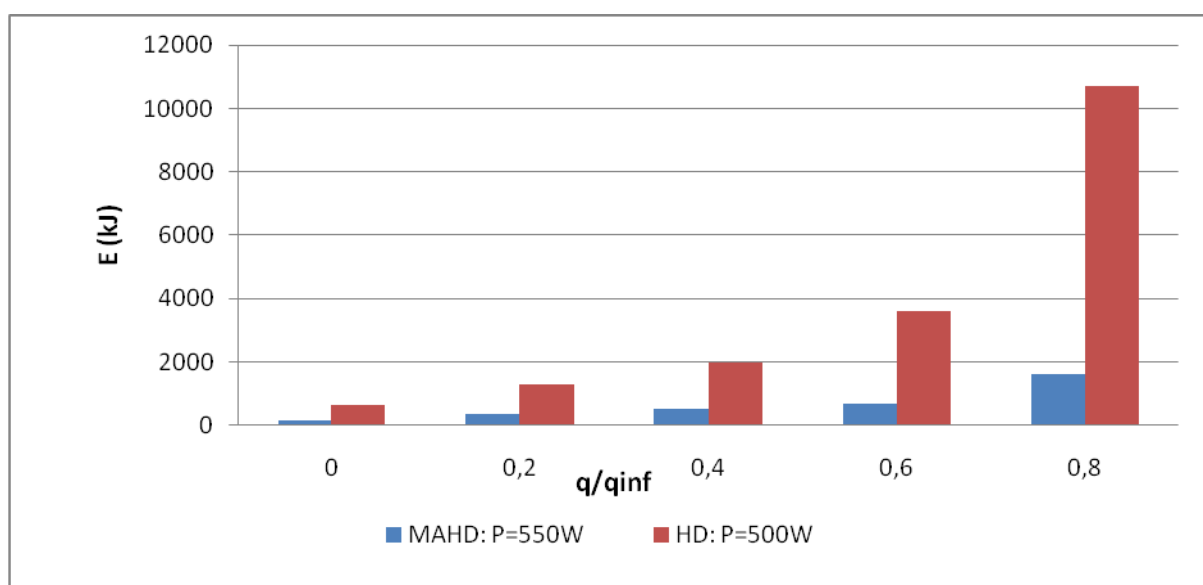


Figure 3. 26 : Histogramme représentant la consommation énergétique du procédé classique HD et du procédé analogue MAHD pour l'extraction de *Mangnolia Sieblodii* (Chen et al, 2015)

Les figures 3.25 et 3.26 montrent la surconsommation énergétique de l'hydrodistillation classique en comparaison avec le procédé analogue assisté par microondes. Elle est en moyenne 3 fois plus élevée pour le procédé classique.

La consommation d'énergie de MAHD était beaucoup plus faible que la méthode HD, et le rendement en huile essentielle pour MAHD était beaucoup plus élevé que pour HD.

Nous expliquons cela par l'effet de l'irradiation. De toute évidence, au début, un temps d'irradiation plus long a conduit à un effet positif sur le rendement en huile essentielle, car l'huile essentielle existant dans la matrice de la plante a été distillée en continu. Cependant, l'augmentation du rendement en huile essentielle n'était pas évidente avec une augmentation supplémentaire du temps d'irradiation des micro-ondes, la raison était que le temps d'irradiation était suffisant pour extraire toute l'huile essentielle dans la matière végétale.

3.4 Conclusion

La modélisation de la consommation énergétique en fonction du taux de récupération nous donne l'allure du coût de production pour différentes puissances de chauffage. Nous avons pu constater aussi que la consommation d'énergie augmente au cours de l'extraction, ainsi prolonger la durée d'extraction des huiles jusqu'à l'épuisement du végétal ne fait que multiplier le coût énergétique.

La comparaison entre l'hydrodistillation classique et assistée par micro-ondes lors de l'extraction de l'huile essentielle de *Mangnolia Sieboldii*, prouve encore une fois l'importance de l'utilisation des micro-ondes et les avantages de leur utilisation.

CONCLUSION GENERALE

L'étude de la consommation énergétique de l'hydrodistillation, traditionnelle et innovante, a été effectuée suivant une approche de modélisation basée sur l'application des modèles développés dans le travail réalisé par l'équipe de Benyoussef (Mehenaoui et Sebbagh, 2017).

Dans un premier temps, Nous avons appliqué ces modèles aux cinétiques d'extractions par hydrodistillation, et nous avons constaté que les modèles simulent bien les résultats expérimentaux.

Dans un second temps, nous avons utilisé les équations établies lors de la simulation des cinétiques d'extraction avec les modèles utilisés, pour exprimer l'évolution de l'énergie consommée en fonction de la quantité d'huile essentielle produite.

Cette étude a mis en évidence que dans le cas d'une hydrodistillation en utilisant l'énergie électrique, la consommation énergétique est énergivore. Cette consommation se répercute directement sur l'impact environnemental du procédé.

Nous avons constaté aussi que la consommation d'énergie entre un taux de récupération de 0.8 et 0.99 peut représenter jusqu'à 50 % de l'énergie totale. Par conséquent, il est préférable d'arrêter l'extraction pour un taux de récupération de 80%, d'autant plus que la qualité de l'huile récupérée en fin d'extraction serait de moins bonne qualité.

L'utilisation des micro-ondes peut apporter une contribution majeure à l'amélioration de l'efficacité énergétique des procédés d'extraction. En effet, ils disposent de plusieurs avantages comme la réduction de la charge d'émission de CO₂, une consommation d'électricité plus faible, un rendement plus élevé en huile essentielle, une consommation de temps plus courte et un changement évident de la composition de l'huile essentielle.

BIBLIOGRAPHIE

AFNOR, 2000 .Huiles essentielles. Ed. PARA Graphic. Tome1 – Echantillonnage et méthode d'analyse 471 P. Tome 2 – Volume 1 Monographie relative aux huiles essentielles 323 P. Tome 2 – Volume 2 Monographie relative aux huiles essentielles 663 P.

Auger R, Laporte J, Flore du domaine atlantique du Sud-ouest de la France et des régions des plaines, CNDP, 1982, p 516.

Babu G. D. et Singh B, 2009. Simulation of Eucalyptus cinerea oil distillation: A study on optimization of 1,8-cineole production. *Biochemical Engineering Journal*, 226–231.

Bakkali, F., Averbeck, S.,Averbeck, D. et Idamomar, M. (2008). Biological effects oils. *A review Science Directe. Food and Chemical Toxicology. Vol 46: 446-475.*

Balandrin M.F., Klocke J.A., Wurtele E.S. and W.H. Bollinger W.H., 1985 .Natural Plant Chemicals: Sources of Industrial and Medicinal Materials, Science, Vol. 228, N°4704, pp. 1154 – 1159.

Bali N, 2015. Modélisation de transfert de matière dans les procédé d'extraction traditionnelle , Master, Département génie chimique, École Nationale Polytechnique

Bali N et Belblidia N-B, 2015. Intensification des procédés et modélisation de la consommation énergétique. Projet de fin d'étude. École Nationale Polytechnique d'Alger.

Belbessai S ,2016 . Approche de modélisation de l'extraction des huiles essentielles basée sur les phénomènes de surface. Application des cinétiques du 1er ordre et du 2nd ordre. Master, Département génie chimique, École Nationale Polytechnique.

Bessah R, 2013. Evaluation du potentiel d'économie d'énergie dans les procédés d'extraction et intégration des énergies renouvelables. Magister en Ecologie et Environnement. USTHB

Benyoussef, E.H et Saibi, S, 2013.Influence of essential oil composition on water distillation kinetics. *Flavour and Fragrance Journal* 28, 300-308.

Blondeau J-M, PHARMACIE TISSOT-MAIRE, 2009-2011.

Bocchio E, 1985. Parfums Cosmét. Arômes, 63, 61.

Brickell C (Editor-in-chief): *RHS A-Z Encyclopedia of Garden Plants*. Third edition. Dorling Kindersley, London 2003, ISBN 0-7513-3738-2. (angl.)

Bruneton J, 1993. Pharmacognosie Phytochimie Plantes médicinales, Tec&Doc, Lavoisier, Paris, p915, pp 570-583

Bruneton J, 1995. Pharmacosie, phytochimie, plantes médicinales. Tech &doc-lavoisier, Paris ,526 P.

Chen F, Zu Y, Yang L, 2015. A novel approach for isolation of essential oil from fresh leaves of *Magnolia sieboldii* using microwave-assisted simultaneous distillation and extraction, *Separation and Purification Technology* 154, 271–280

Chemat F, Smadja, J, Lucchesie, M.E, 2004. Solvent Free Micro-wave extraction of volatile natural compound. *Brevet Européen*, EP 1 439218 B.

Chemat F, Périno-Issartier S, Ginies C, Cravotto G, 2013. A comparison of essential oils obtained from lavender via different extraction processes: Ultrasound, microwave, turbohydrodistillation, steam and hydrodistillation, *Journal of Chromatography A*, 1305 41–47

Coatham, *Magnolia sieboldii*, 2015: <https://stories.rbge.org.uk/>

Dubey N. , Srivastava B. and Kumar A., 2008. Current Status of Plant Products as Botanical Pesticides in Storage Pest Management, *Journal of Biopesticide*, Vol. 1, N°2; pp. 182 – 186.

Fernandez X, et Casale A, 2015. Eaux florales et hydrolats - Obtention, compositions, conservations et applications. *Techniques de l'ingénieur*, p2645.

Funk et Wagnalls, 2004. Encyclopédie britannique Funk &Wagnalls. URL: <http://www.Funkandwagnalls.com>.

Franchomme P et Penoel D, 1990. Matière médicale aromatique fondamentale (317-406), livre quatrième, l'aromathérapie exactement, encyclopédie de l'utilisation thérapeutique des huiles essentielles. R.Jollois Edit., Limoge, 446p.

Gattefossé R.M, 1937. *Aromathérapie – les huiles essentielles hormones végétales*, éd. Librairie des sciences Girardot.

Gilly G, 2005. Les plantes aromatiques et les huiles essentielles à Grasse: botanique, culture, chimie, production et marché. Editions Le Harmattan.

Guenther, 1948. *The Essential Oils*, D. Van Nostrand Company, New York.

Heath H.B , 1981. 'Source Book of Flavors', Springer, XXVI, 864 p.

J. Soc. Ouest-Afr. Chim. (2005) ; 020 ; (77-99)

Khiar G et Mellak A, 2013. Modélisation de la consommation énergétique lors de l'extraction des huiles essentielles par hydrodistillation. Projet de fin d'étude. École Nationale Polytechnique d'Alger.

Koul, 2004. Steam distillation of lemon grass (*Cymbopogon*) *Indian Journal of Chemical Technology* Vol. 11, 135-139.

Kusuma H.S, Mahfud M, 2015. Microwave-assisted Hydrodistillation for Extraction of Essential Oil from Patchouli (*Pogostemon cablin*) Leaves. *Periodica Polytechnica Chemical Engineering*. 8676.

Lamarti, Badoc , Deffieux et Carde , 1994. Biogénèse des Monoterpènes-II-La chaîne isoprénique. Bull. Soc.Pharm. Bordeaux 133, 79-99

Leybros, Frémeaux, 1990. Extraction solide-liquide - Aspects théoriques. Techniques de l'Ingénieur J2780 V3.

Lucchesi, 2005. Extraction sans solvant assistée par micro-ondes. Conception et application à l'extraction des huiles essentielles. Thèse de la faculté des Sciences et technologies. Université de la Réunion, France.

Malki I, 2014. Modélisation de la consommation énergétique dans les procédés d'extraction. Projet de fin d'étude. École Nationale Polytechnique d'Alger.

Martel, 1977. Brevet français nO 2388881

Mehenaoui M et Sebbagh N, 2017. Modèles de transfert de matière solide fluide basés sur la concentration en phase fluide. Application à l'extraction des huiles essentielles. Projet de fin d'étude. École Nationale Polytechnique d'Alger.

Milojevic Z, Stojanovic D.T, Palic R, Miodrag Lazic, Vlada Veljkovic B, 2008 . Kinetics of distillation of essential oil from comminuted ripe juniper (*Juniperus communis* L.) berries, Chem. Eng. J. 39 547-553.

Minker C, 200 plantes qui vous veulent du bien, Larousse, 2013

Moulin J.P., D.Pareau, M.Stambouli ,1998. Cinétique de Transfert de Matière entre deux phases. Techniques de l'ingénieur J1075, pp1-20.

Naik S.N, Lentz H, Maheshwari, R.C, 1989.Extraction of perfumes and flavours from plant materials with liquid carbon dioxide under liquid-vapor equilibrium conditions. Fluid Phase Equilibria, 49, 115-126.

Pavicevic PV, Markovic MS, Milojevic SZ, Ristic MS, Povrenovica DS et Veljkovic VB, 2015. Microwave-assisted hydrodistillation of juniper berry essential oil: kinetic modeling and chemical composition, J Chem Technol Biotechnol.

Sovova, Aleksovski, 2006. Modèle mathématique pour l'hydrodistillation des huiles essentielles Flavour.Frag.j. (21) 881-889.

Stashenko, Jaramillo, Martinez, 2004. Analysis of volatile secondary metabolites from Colombian *Xylopiaromatica* (Lamarck) by different extraction and headspace methods and gas chromatography.Journal of Chromatography A. 1025, 105-113.

Teisseire, 1991. Chimie des substances odorantes. Tec et Doc., Lavoisier, Paris, France.480p

Tournalre, 1980. Parfums Cosmét. Arômes, 35,43.

Wichtk, Anton, 1999. Plantes thérapeutiques, Technique et Documentation, Paris.