

14/95

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
BIBLIOTHEQUE — المكتبة  
Ecole Nationale Polytechnique

MINISTERE DE L'EDUCATION NATIONALE

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

DEPARTEMENT *de Génie chimique*

PROJET DE FIN D'ETUDES

SUJET

EXTRACTION DES HUILES ESSENTIELLES DE  
CORIANDRUM SATIVUM. L A L'ECHELLE  
SEMI-PILOTE

Proposé par :  
E.H. BENYOUSSEF

Etudié par :  
B. ROUISSI

Dirigé par :  
E.H. BENYOUSSEF

PROMOTION  
94 / 95

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
BIBLIOTHEQUE — المكتبة  
Ecole Nationale Polytechnique

MINISTERE DE L'EDUCATION NATIONALE

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

DEPARTEMENT de Génie chimique

PROJET DE FIN D'ETUDES

SUJET

EXTRACTION DES HUILES ESSENTIELLES DE  
CORIANDRUM SATIVUM. L A L'ECHELLE  
SEMI-PILOTE

Proposé par :  
E.H. BENYOUSSEF

Etudié par :  
B. ROUISSI

Dirigé par :  
E.H. BENYOUSSEF

PROMOTION  
94 / 95

Dédicaces

*À la mémoire de Oum-El Saad , Ahmed et*

*Bouafia*

*À ma mère et mon père*

*À tous ceux qui me sont chers*

*En signe de reconnaissance et de profonde*

*affection.*



Le texte de ce mémoire fait l'objet d'un travail réalisé au département de génie chimique de l'école nationale polytechnique.

J'exprime mes plus profonds remerciements à Monsieur E.H. BENYOUSSEF pour la confiance qu'il m'a témoigné en me proposant le sujet d'étude et en acceptant de diriger ces travaux.

Je suis vivement reconnaissant envers Madame S.CHARCHARI Docteur d'état à l'ENP de m'avoir fait l'honneur de présider le jury.

Aussi , j'exprime mes vifs remerciements à :

Madame R. DERRICHE chargé de cours à l'ENP  
Madame YAGOUB chargé de cours à l'ENP  
qui ont bien voulu juger ce travail.

Tous comme je tiens à remercier Madame N.BENYOUSSEF d'avoir accepter l'invitation.

Toute ma reconnaissance et mes vifs remerciements vont à Mademoiselle M.HAMDI pour son aide précieuse et ses conseils.

Que mes professeurs du département de Génie chimique trouvent ici l'expression de ma reconnaissance , et plus particulièrement à monsieur le professeur S.E. CHITOUR pour ses conseils et ses encouragements.

Ma sympathie s'adresse également à toutes les personnes qui ont de près ou de loin contribué à la réalisation de ce travail.

Je dois également remercier mes parents.



بسم الله الرحمن الرحيم

ملخص :

يهدف هذا العمل إلى دراسة تأثير الثوابت العملية على المردود من الزيوت الأساسية لبذور القسبر أثناء الاستخلاص بالتقطير ببخار الماء على مستوى شبه مصنع .

Resumé :

Le présent travail consiste en l'étude de l'influence des paramètres opératoires sur le rendement en huile essentielle des graines de coriandre lors de l'extraction à l'entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle semi-pilote.

Abstract :

The present work consist to study influence of operative parameters on essential oil yiel of coriandr seed , from extraction by steam distillation at semi-pilot scale.

## SOMMAIRE

### Introduction

### Chapitre I : Matière végétale

- I.1-Origine
- I.2-Description
- I.3-Utilisation

### Chapitre II : Huile essentielle

- II.1-Définition
- II.2-Formation et mode de récupération
- II.3-Méthodes d'extraction

### Chapitre III : Travaux antérieurs

- III.1-Travaux antérieurs
- III.2-Propriétés et spécifications

### Chapitre IV : Plan d'expériences

- IV.1-But et objet des plans d'expériences
- IV.2-Terminologie
- IV.3-Méthode

### Chapitre V : Partie expérimentale

- V.1-Description de l'installation et de la charge  
Etude de l'influence des paramètres opératoires sur le rendement en huile essentielle
- V.2-Optimisation classique
- V.3-Planification factorielle des expériences
- V.4-Effet de la macération dans l'eau froide des graines sur le rendement en huile essentielle.
- V.5-Etude de l'effet du broyage sur le rendement en huile essentielle
- V.6-Quelques remarques relatives aux extractions menées lors de ce travail

## Chapitre VI : Etude analytique

VI.1-Evaluation de quelques propriétés organoleptiques et  
physiques

VI.2-Analyse chromatographique en phase gazeuse de l'essence  
extraite

Conclusion

Bibliographie

## NOMENCLATURE

- BP5 : diphenylmethylsiloxane
- $t^*$  : trace
- Coll : collaborateur
- E.V.E. : entraînement à la vapeur d'eau
- $R_{HE}$  : rendement en huile essentielle
- $t$  : durée d'extraction
- M : masse de matière végétale
- $m_{HE}$  : masse de l'huile essentielle
- $V_{HE}$  : vitesse instantanée de distillation
- D : débit de distillat
- $a_0$  : moyenne des réponses ( $R_{HE}$ )
- $a_1$  : effet individuel de la masse sur le rendement .
- $a_2$  : effet individuel du débit de distillat sur le rendement
- $a_{12}$  : effet conjugué masse -débit
- $b_0$  : moyenne des réponses ( $V_{HE}$ )
- $b_1$  : effet individuel de la masse sur la vitesse instantanée
- $b_2$  : effet individuel du débit sur la vitesse instantanée
- $b_{12}$  : effet conjugué masse-débit sur la vitesse conjugué



# INTRODUCTION

## **Introduction :**

Depuis l'aube de l'humanité , l'homme s'est intéressé aux ressources végétales que le créateur lui a fourni afin de tirer profit des divers avantages que possèdent les plantes.

Ainsi les plantes peuvent présenter une richesse inestimable pour un pays . En effet elles peuvent servir de matière première pour l'industrie chimique de manière générale , et l'industrie pharmaceutique des arômes et de parfumerie en particulier.

Par la diversité de son climat et de ses sols , l'Algérie possède une flore particulièrement riche en plante utiles , ce qui lui confère une place privilégiée pour la culture et l'exploitation des plantes aromatiques et médicinales , d'autant plus qu'un nombre d'entre elles poussent à l'état spontané.

Aussi , dans le cadre de la valorisation des essences d'espèces végétales algériennes , nous nous sommes intéressés à l'extraction de l'huile essentielle de coriandrum Sativum L. de la région de Setif , par entraînement à la vapeur d'eau à l'échelle semi-pilote.

Dans un premier lieu , nous avons présenté la matière végétale, donné quelques définitions et cités les principaux travaux antérieurs.

L'étude de l'influence des paramètres opératoires sur le rendement en huile essentielle , lors de l'extraction à la vapeur d'eau fait l'objet du chapitre V.

Enfin , dans le chapitre VI , nous avons évalué la qualité de cette huile , d'une part en mesurant quelques propriétés organoleptiques et physiques et d'autre part en procédant à une analyse de ses constituants majoritaires par chromatographie en phase gazeuse.



# **CHAPITRE I**

## **Matière végétale**



### I.1 Origine :

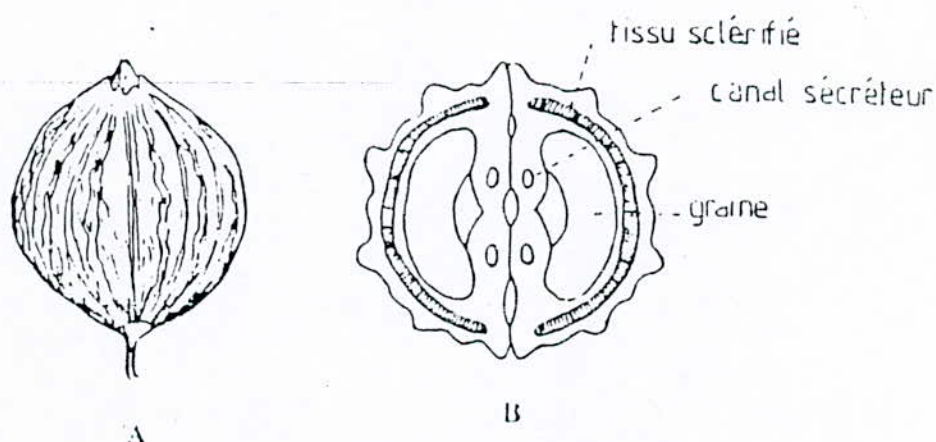
La coriandre, *Coriandrum sativum* L. , plante cultivée sous presque tous les climats , était déjà employée dans l'art culinaire avant notre ère. Elle fut mentionnée à plusieurs reprises comme condiment, dans les écrits sanscrits , dans la bible et plus tard dans la littérature romaine. On a retrouvé également dans les tombeaux égyptiens datant du 10<sup>ième</sup> siècle avant notre ère , des fruits de coriandre parmi les offrandes des sacrifices.[1,2]

### I.2 Description :

La coriandre, est une plante herbacée verte clair luisant, de la famille des ombellifères. Haute de 25 à 60 cm, la plante possède une tige très ramifiée. Les feuilles de la base du pied ont la forme de lanières. Les fleurs rosâtres en ombelles donnent de juin à juillet des fruits sphériques et striés , très caractéristiques appelés schizocarpes et formés de deux péricarpes, de couleurs jaunâtre à brun clair à l'état sec .Ils ont un diamètre de 3 à 5 mm environ.[3,4,5]

La plante fraîche dégage une odeur pénétrante de punaise d'où l'origine de son nom du grec « Koris ».[6]

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



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



### **I.3 Utilisation :**

Les graines de coriandre sont utilisées en charcuterie, broyées avec d'autres épices : poivre , cumin , muscade,..., elles relèvent le goût des viandes.

La coriandre intervient dans les conserves au vinaigre , dans les bouillons ; mais aussi dans les plats sucrés , pâtisserie ou confiserie. Les liqueurs digestives s'en accommodent très bien. [8]

Les essences de coriandre entrent encore dans les formules d'eau de toilettes, ainsi que dans l'industrie pharmaceutique et dans l'industrie du tabac.[9,10] Elles servent en outre de matière première pour la production de linalol et de citral.[11]

Les graines épuisées sont utilisées dans l'alimentation du bétail , car elles contiennent de 11 à 17 % de protéine et 11 à 21 % en matières grasses. [12]

### **Propriétés médicinales :**

Comme toutes les ombelliféracées , la coriandre possède des propriétés antispasmodiques et stimule la sécrétion du suc gastrique.C'est aussi un antiseptique : mais l'essence qu'elle contient peut provoquer des troubles nerveux à la suite d'un abus de consommation.[13]



## **CHAPITRE II**

# **HUILE ESSENTIELLE**

## **II.1 Définition :**

Les parfums qu'exhalent certaines plantes et principalement leurs fleurs , sont dus à la présence dans les cellules de molécules volatiles que l'on désigne par le terme « d'essence » , sécrétion naturelle élaborée par l'organisme végétal.

L'huile essentielle est l'extrait naturel obtenu par distillation à la vapeur d'eau de ce même organisme végétal .Elle est donc en fait l'essence distillée.Quand la distillation est parfaite , la constitution de l'huile essentielle se rapproche sensiblement de celle de l'essence.

Les composés volatils ont la propriété de se solubiliser dans les huiles et les graisses et par la même ont reçu empiriquement le nom d'huile essentielle , le terme « huile » soulignant le caractère visqueux et hydrophobe de ces

substances , le terme « essentiel » se comprenant comme la caractéristique principale de la plante à travers ses exhalations. Au sein d'une huile essentielle , on trouve les molécules les plus diverses , de sorte qu'il est bien difficile d'établir une classification basée sur une fonction chimique d'autant plus que les essences en renferment un grand nombre , en proportion variables suivant leur origine. Ces molécules sont généralement des hydrocarbures , des alcools , des éthers-oxydes , des phenols,etc.[14]

## **II.2 Formation et mode de récupération :**

La biosynthèse des constituants de l'huile essentielle se fait dans des sortes de canaux , dont , selon LUKYANOV et MUKHANOVA (1964) , il existerait deux types dans le fruit ; les uns périphériques disparaissent lorsque le fruit est mûr , alors que les autres internes , apparaissent au cours de la maturation. Selon HOTIN (1957) , si les fruits mûrissent dans une atmosphère humide, les canaux périphériques persistent et la quantité d'huile essentielle augmente aux dépens de la qualité, TANASHENKO (1960) pense que des essences différentes sont synthétisées dans ces deux sortes de canaux : certains composés oxygénés seraient formés dans les canaux périphériques tandis que les alcools et les terpènes seraient élaborés dans les canaux internes.

D'après LUKYANOV et Coll , l'accumulation du linalol est achevée quand les fruits sont mûrs.[11]



Le mode de récupération des huiles essentielles à partir des cellules de la plante durant l'entraînement à la vapeur dépend du degré de division de la matière végétale.

En effet , lorsque les cellules de la plante restent intactes , le phénomène d'osmose sera observé , par contre lorsque les parois cellulaires sont détruites , c'est la diffusion libre qui intervient.[15]

### **II.3 Les méthodes d'extraction :**

Plusieurs techniques d'extraction des principes aromatiques de la coriandre sont utilisées.

#### **II.3.1 Entraînements à la vapeur et hydrodistillation :**

Depuis toujours , l'extraction des huiles essentielles contenant la majeure partie des arômes d'une plante est pratiquée selon une technologie inchangée à ce jour dans son principe. Ce procédé d'entraînement à la vapeur d'eau est basée sur le fait que la plus part des composés odorants volatils contenus dans les végétaux sont susceptibles d'être entraînés par des aérosols de vapeur d'eau , du fait de leur point d'ébullition relativement bas et de leur caractère hydrophobe. Ils ne sont donc ni retenues par et dans les biopolymères de la plante , ni solubilisés dans l'eau.Pour ce faire , la plante ou l'organe de la plante est placé dans un alambic , traversé par un courant de vapeur d'eau . Les principes volatils, peu solubles dans l'eau , sont entraînés et après condensation , séparés du distillat par décantation. [16,17]

L'hydrodistillation , variante de cette méthode consiste à placer le matériel végétal directement dans l'eau , portée ensuite à ébullition.[18]

#### **II.3.2 Extraction par solvants organiques volatils :**

Les huiles essentielles ont la propriété d'être solubles dans la plupart des solvants organiques , particulièrement les carbures aliphatiques ( pentane , hexane ) ou aromatique ( benzène). On opère le plus souvent à température ambiante, ce qui ne provoque aucune modification ou altération dans les structures moléculaires composant la part aromatique extraite.Le produit obtenu, après évaporation du solvant , est appelé « concrète ». Ce terme résulte de la tendance du produit à se solidifier en raison de la présence de matières grasses entraînées par le solvant organique.



Le traitement à froid de la concrète par l'alcool absolu permet ensuite de séparer les graisses et d'obtenir après évaporation de l'éthanol , la phase dite « absolue » qui contient la majeure partie des composés odorants. [19]

### **II.3.3 L'extraction par dioxyde de carbone liquide ou supercritique :**

Il s'agit d'un procédé qui utilise le dioxyde de carbone sous deux états liquide ou supercritique. Cette technique , décrite récemment dans les applications potentielles pour les industries d'arômes et des parfums , est basée sur le fait que certains gaz , notamment le dioxyde de carbone , dans des conditions de pressions dites critiques ou supercritiques présentent un pouvoir de dissolution accru vis à vis de divers composés tels que les huiles essentielles , les arômes , les colorants naturels , les graisses ..etc. Il s'agit d'un procédé certainement promis à un bel avenir , mais qui a cependant l'inconvénient d'exiger des pressions élevées , donc une technologie sophistiquée.

Elle donne en outre des compositions de nature différente des productions traditionnelles qui perturbent dans les habitudes des industries consommatrices , en conséquence , les produits ne sont pas toujours bien acceptés.[18]

Toutefois , il existe d'autre méthode d'extraction telle que , l'extraction au furan 113 , l'enfleurage et l'expression à froid .



# **CHAPITRE III**

## **Travaux antérieurs**



### III.1 Travaux antérieurs :

Bien qu'elle fut employée de temps à autre comme condiment, la coriandre ne se trouve mentionnée que dans les livres de médecine et de distillation du 16<sup>ème</sup> siècle. C'est à cette époque que l'huile volatile semble avoir été préparée par Porta.[2]

L'étude des constituants volatils de l'huile essentielle des fruits de coriandre a commencé très tôt ; en effet dès 1853 KAWALIER [11] isole le principal constituant un alcool d'après GROSSER (1881) [20] définitivement identifié au linalol par WALBAUN et MULLER (1909) [21], ces mêmes chercheurs caractérisent également par leurs dérivés chimiques plusieurs constituants :  $\alpha$ -pinène,  $\beta$ -pinène, limonène, p-ymène  $\alpha$  et  $\gamma$ -terpinène, terpinolène, phellandrene, décanal, géraniol, bornéol, acide acétique et traces d'acide décylique. Ils constatent que la forte teneur en linalol (60 à 70%) et un élément caractéristique de cette essence.

Après ce remarquable travail, il faut attendre près de 50 ans pour que la liste des composés identifiés s'allonge. C'est ainsi qu'en 1958 trois composés carbonylés, citral, cinnamaldehyde et carvone obtenus sous formes d'hydrazones sont identifiés à l'aide de méthodes spectrométriques par STENLAKE J.B. et WILLIAMS W.D.[22]

Puis en 1962, PERTSEV et PIVNENKO [23] isolent par chromatographie sur couche mince six constituants caractérisés par spectrométrie ultraviolette et réaction chimique :  $\alpha$  terpinéol, phellandrène, acétate de linalyle, de géranyle, de terpenyle et de bornyle.

Une étude de la composition en acide gras réalisée par DUBLYANSKAYA N.F. en 1964 [24] montre la présence d'acide oléique en très grande quantité, à côté en teneur plus faibles des acides palmitique et linoléique.

Deux années plus tard, SCHATZ et QADRY S.M. [25] séparent par chromatographie sur couche mince et identifient sur la base des temps de rétention en chromatographie en phase gazeuse les constituants suivants : thymol, sabinène, ocimène,  $\alpha$  et  $\beta$ -phellandrène, camphène, nerolidol et trans tridécène-2 al. Ils réalisent la synthèse de ce dernier constituant dont l'odeur semble caractéristique de la coriandre.



**Tableau -III.3 : Variabilité inhérente à la maturité du fruit de coriandre dans la composition chimique des principaux constituants, selon LAWRENCE.[30]**

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



**Tableau -III.4 : Composition chimique de l'huile essentielle produite par E.V.E. et hydrodistillation des graines de coriandre de Setif (Algerie).[28]**

composés	Teneur relative % (hydrodistillation)	(%) E.V.E.
$\alpha$ -pinène	0.09	0.31
camphène	-	-
$\beta$ -pinène	-	-
sabinène	-	-
myrcène	0.17	0.16
p-cymène	0.18	0.13
limonène	-	-
$\gamma$ -terpinène	0.60	0.20
cineol-1,8	0.07	0.08
terpinolène	-	-
linalol	70.20	80.33
camphre	1.82	1.36
terpinène 4 -ol	0.48	0.14
$\alpha$ -terpinéol	0.28	0.42
octanal	2.17	3.06
dodecane	0.50	0.53
geraniol	-	-
acétate de geranyle	1.62	1.75
dodecanal	0.45	0.24
caryophyllène	0.21	0.33
$\alpha$ -humulène	0.73	0.79
nérolidol	0.48	0.14
acide myristique	5.90	2.44

L'essence obtenue à partir des parties herbacées est complètement différente de celle des fruits secs et mûrs, CALBOM et Coll (1936) [11] montrent qu'elle contient essentiellement un mélange d'aldéhydes.

Récemment, POTTER et FAGERSON [33] ont analysé précisément l'huile obtenue par l'hydrodistillation des feuilles, ils ont confirmés les résultats déjà cités, en identifiant les constituants de cette huile.

**Tableau-III.5 : Composition chimique et teneur relative des constituants de l'huile essentielle des feuilles de coriandre , selon POTTER et FAGERSON.[33]**

composé	teneur(%)	composé	teneur(%)
nonane	0.2	methyl-8 nonenal-2	1.3
octanal	0.5	C <sub>12</sub> -enal	0.1
nonnal	0.2	methyl-9-décénal-2	0.1
E-nonénal-2	0.3	dodécénal-11	0.2
C <sub>10</sub> -enal	0.3	dodécanal	1.6
Z décénal-4	0.3	E dodécénal-2	10.3
décénal-9	0.8	dodécène-2 ol-1	1.4
décanal	4.4	tridécanal	0.1
undécanol-1	0.2	E -tridécénal -2	0.7
E décénal -2	46.1	tétradécénal -1	0.1
décène-2 ol -1	9.2	tétradécanal	0.7
décanol-1	4.3	E tétradécenal -2	5.8
undécanal -10	0.1	Tétradécène-2 ol -1	0.6
undécanal	0.5	pentadécanal	0.1
dodécénal-4	0.1	pentadécénal -2	0.7
E undécénal-2	5.6	hexadécénal -2	0.4
undécène	0.9	heptadécanal	0.3

### III.2 Propriétés physico-chimiques et spécification :

La norme NF. T 75-205 Août 1991, décrit les spécifications physiques , organoleptiques , chimiques et chromatographiques de l'huile essentielle de fruit de coriandre obtenue par distillation à la vapeur d'eau , destinée au contrôle de sa qualité.[34]

- 1- Aspect : liquide mobile , limpide
- 2- Couleur : incolore à jaune pâle
- 3- Odeur : caractéristique , épicée et rappelant celle du linalol
- 4- densité  $d_{20}^{20}$  :
  - minimum : .....0.862
  - maximum : .....0.878
- 5- Indice de réfraction à 20°C :
  - minimum : .....1.46200
  - maximum : .....1.4700
- 6- Pouvoir rotatoire à 20°C :
  - compris entre +7° et +18°
- 7-Indice d'acide
  - maximum 30
- 8- Teneur en linalol par chromatographie en phase gazeuse :
  - minimum .....68%





**CHAPITRE IV**

---

**Plans d'expérience**

#### IV.1 Objet et but des plans d'expériences :

L'expérimentateur, quel que soit son domaine d'étude est toujours confronté au problème difficile de l'organisation optimale de ses essais. Comment obtenir les bonnes informations dans les meilleurs délais et pour le moindre coût ?

Les scientifiques n'ont abordé ce sujet que depuis peu d'années. Les premiers qui se sont penchés sur ce problème sont des agronomes et des staticiens. Les techniques et les notions qu'ils ont développées sont si générales qu'elles peuvent être utilisées dans tous les domaines. En particulier, le génie chimique leur offre un vaste champ d'applications. [35,36]

#### IV.2 Terminologie :

##### a)- Réponses, facteurs, niveaux :

Avant d'aborder l'étude des plans d'expériences, il convient de préciser le vocabulaire que nous allons utiliser.

Un phénomène peut toujours être mis sous la forme mathématique suivante :

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad (1)$$

où  $y$  : est la grandeur à laquelle s'intéresse l'expérimentateur.

Elle sera appelée la réponse ou la grandeur d'intérêt.

$x_i$  : représente les variables sur lesquelles l'expérimentateur peut agir.

$f$  : est la fonction mathématique qui expliquera le mieux la variation de la réponse selon les différentes valeurs des  $x_i$ .

##### b)- Coordonnées centrées réduites :

Lorsque l'on étudie un facteur  $x_i$ , on définit toujours en fonction des besoins de l'étude, une valeur inférieure et une valeur supérieure. Lorsqu'on attribue la valeur -1 au niveau bas et la valeur +1 au niveau haut, on effectue deux modifications importantes.

-On change l'unité de mesure.

-On déplace l'origine des mesures.

Ces deux modifications entraînent l'introduction de nouvelles variables que l'on appelle variables centrées réduites (v.c.r) centrées pour indiquer le changement d'origine et réduites pour signaler la nouvelle unité.

Le passage des variables d'origine A aux variables centrées réduites Xi et inversement, est donnée par la formule suivante (A0 étant la valeur centrée réduite en unité courante)

$$x = \frac{A - A_0}{\text{pas}}$$

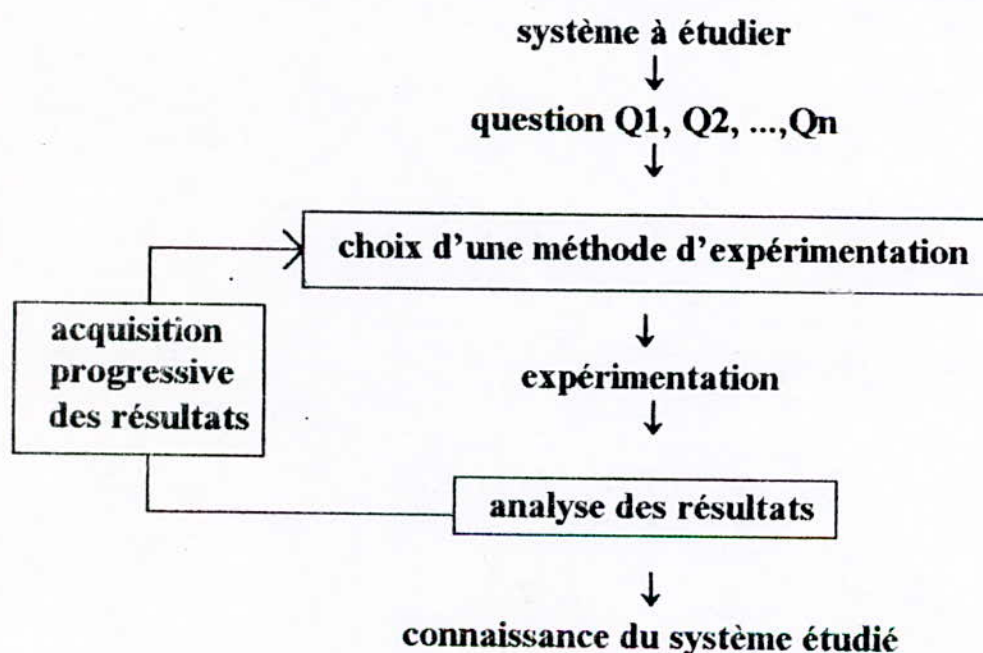
L'intérêt des variables centrées réduites est de pouvoir présenter les plans d'expérience de la même manière quels que soient les domaines retenus et quels que soient les facteurs, ce qui donne une grande homogénéité de présentation de la théorie des plans d'expérience.

### IV-3. Méthode :

#### a-Généralité :

Le bon usage des plans d'expérience doit s'inscrire dans une méthode logique et rigoureuse, pour cela il faudra considérer le schéma suivant :

#### Processus d'acquisition des connaissances





### **b-Plans factoriels complets à deux niveaux $2^k$ :**

Les plans factoriels complets à deux niveaux sont les plus simples, ils sont aussi les plus utiles car ils forment la base de tous les débuts d'étude. Il s'agit de plan pour lesquels on étudie  $k$  facteurs prenant chacun deux niveaux. Le modèle mathématique adopté à priori est un polynôme prenant en compte la moyenne les effets de chaque facteur et toutes les interactions entre les facteurs pris à deux, trois à trois, ...  $k$  à  $k$ .

$$y = a_0 + \sum a_{ij}x_i x_j + \sum a_{ijk}x_i x_j x_k + \dots + a_{ij\dots k}x_i x_j \dots x_k \quad (2)$$

Un plan  $2^k$  comporte  $2^k$  points expérimentaux qui se situent aux  $2^k$  sommets d'un hypercube à  $k$  dimensions. Le modèle mathématique contient  $2^k$  coefficients qui sont les inconnues. L'ensemble des résultats d'un plan  $2^k$  conduit donc à un système de  $2^k$  équations à  $2^k$  inconnues. Ce système peut se mettre sous formes matricielles :

$$Y = X.A \quad (3)$$

ou le vecteur  $Y$ , ayant pour composantes les réponses de chaque essai, est représenté par une matrice-colonne  $(2^k, 1)$ .

Le vecteur  $A$ , ayant pour composante la moyenne, les effets des facteurs et toutes les interactions, est représenté par une matrice-colonne  $(2^k, 1)$ ; ces composantes sont les inconnues que l'on cherche à déterminer.

La matrice  $X$  est une matrice carrée  $(2^k, 2^k)$  composée de  $-1$  et  $+1$  suivant des niveaux  $x_i$ .

La matrice  $X$  comporte une colonne de  $+1$ , le reste selon le niveau  $\pm 1$ . Pour ce type de matrice, on a :

$$X'X = nI \quad (4)$$

$I$  : matrice unité.

Le calcul de l'inconnue  $A$  s'effectue à partir de la relation (3) en tenant compte de la relation (4) :

$$X'Y = X'.X.A$$

$$X'.Y = nIA \Rightarrow A = \frac{1}{n}.X'.Y \quad (5)$$

Cette relation est valable pour tous les plans factoriels complets .  
Chaque élément de A est donc de la forme :

$$a_i = \frac{1}{n} [\pm Y_1 \pm Y_2 \pm \dots \pm Y_n] \quad (6)$$



# **CHAPITRE V**

## **Partie expérimentale**



## **V.1 : Description de l'installation et de la charge**

### **V.1.1 : Description de l'installation :**

Toute installation et équipement d'extraction nécessite , au préalable , de définir la taille et le type de l'opération.Or , parmi les procédés d'extraction précités le plus largement utilisé reste l'entraînement à la vapeur d'eau.

Pour les raisons précités , et du faite de l'existence d'une installation semi pilote d'extraction à l'entraînement à la vapeur au niveau de l'école nationale polytechnique , nous nous sommes intéressé à ce procédé.

Dans la suite , nous allons examiner les trois parties essentielles composants cette installation en l'occurrence , la génératrice de vapeur ou chaudière , le distillateur ou alambic et le condenseur.

#### **a-Chaudière :**

La chaudière se présente sous la forme d'un bac cylindrique de hauteur égale à 1 mètre et d'un diamètre de 350 mm , surmontée à sa partie supérieure d'une sortie de vapeur.Le contrôle du niveau d'eau , de la chaudière est assuré par un tube en verre . Le chauffage est réalisé par un brûleur.

Le débit de vapeur peut être réglé par la vanne à la sortie de la chaudière , les vannes d'alimentation des alambics ou l'intensité de chauffage.

#### **b-Le distillateur ou alambic :**

Il sert avant tout , de récipient recevant la charge de matière végétale et dans laquelle se déroule l'opération d'entraînement à la vapeur de l'huile essentielle de cette matière végétale , schématiquement ce récipient appelé également alambic se présente sous la forme d'un bac cylindrique de diamètre légèrement inférieur à sa hauteur (240 mm et 280 mm).

L'alambic cylindrique se termine , à sa partie supérieure , par un chapiteau tronconique muni d'un col de cygne, et sa partie inférieure , par une calotte hémisphérique munie en son centre, d'un robinet de purge permettant l'évacuation des eaux condensées dans la charge.Quant à la liaison entre

alambic est chapiteau, celle-ci est assurée par un système vis-écrou au nombre de six.

A la sortie du col de cygne , les vapeurs arrivent au niveau du condenseur.

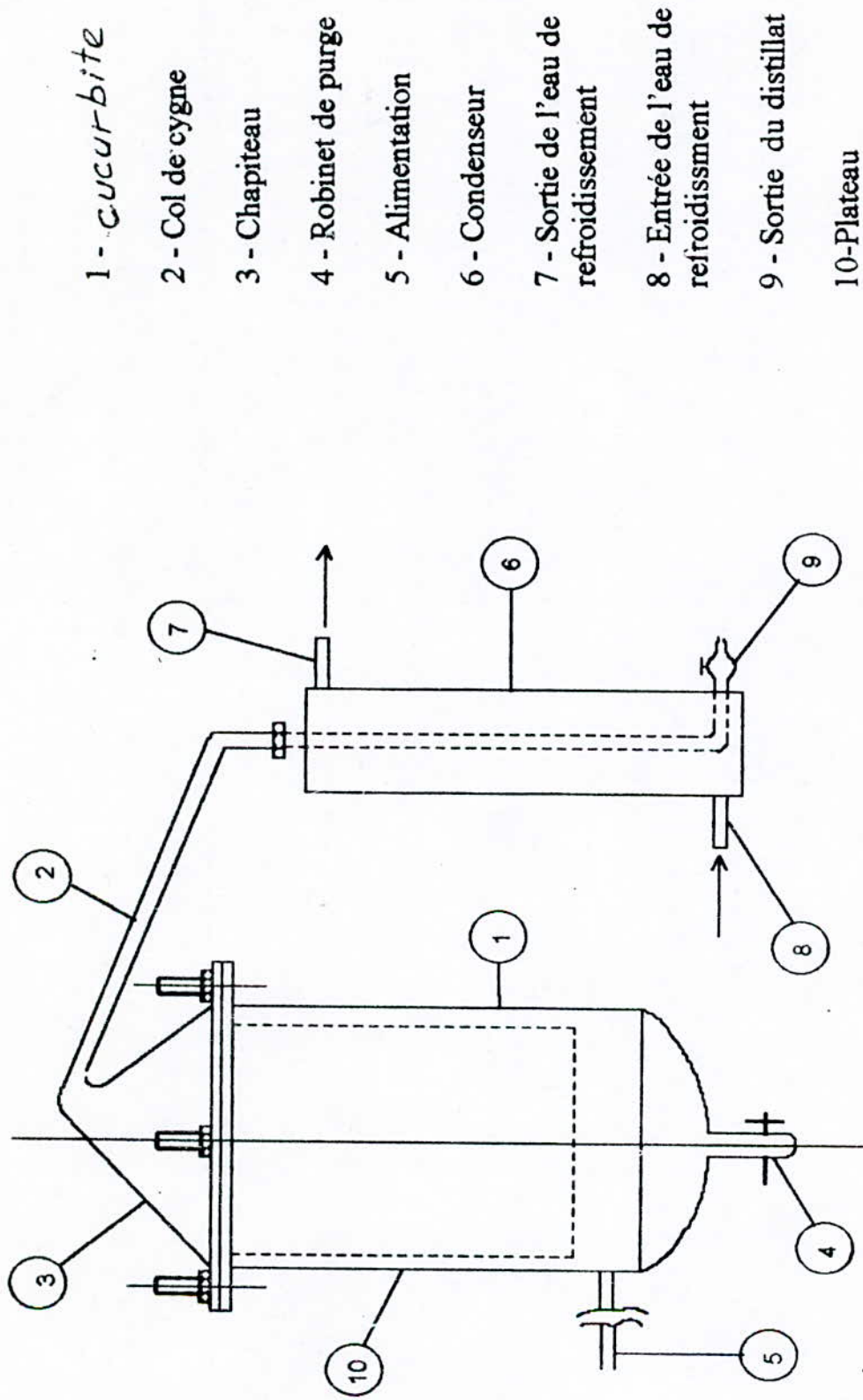
#### **c-Le condenseur :**

Le condenseur n'est autre qu'un échangeur de chaleur servant à convertir toute vapeur en liquide.

Le condenseur que nous avons utilisés est simple , à savoir un tube cylindrique d'un diamètre de 30 mm, plongeant dans un bac cylindrique de diamètre égale à 110 mm et d'une hauteur de 520 mm.

#### **d-La charge :**

Le lot de graine provient des hautes plaines de Sétif , une région de grande culture (céréale) , situé dans l'est algérien.



1 - cucurbite

2 - Col de cygne

3 - Chapiteau

4 - Robinet de purge

5 - Alimentation

6 - Condenseur

7 - Sortie de l'eau de refroidissement

8 - Entrée de l'eau de refroidissement

9 - Sortie du distillat

10-Plateau

Figure 2 : Schéma de l'installation



## Etude de l'influence des paramètres opératoires sur le rendement en huile essentielle :

Afin de déterminer les conditions opératoires optimales permettant d'atteindre le meilleur rendement en huile essentielle à l'échelle semi-pilote, une série d'expériences a été menée et nous a permis de préciser l'influence de divers paramètres, tels que la masse de la charge, le débit de distillat, le degré de division et enfin la macération à l'eau froide.

Le rendement  $R_{HE}$  en huile essentielle récupérée, exprimé en pourcent (%), a été calculé par la relation suivante :

$$R_{HE} = \frac{m_{HE}}{M} \times 100$$

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

Le taux d'humidité a été déterminé à l'aide de l'appareil de DEAN et STARK,  $H = 7.2 \%$

La température du distillat  $T_d$  a été fixée à  $20^\circ\text{C}$ .

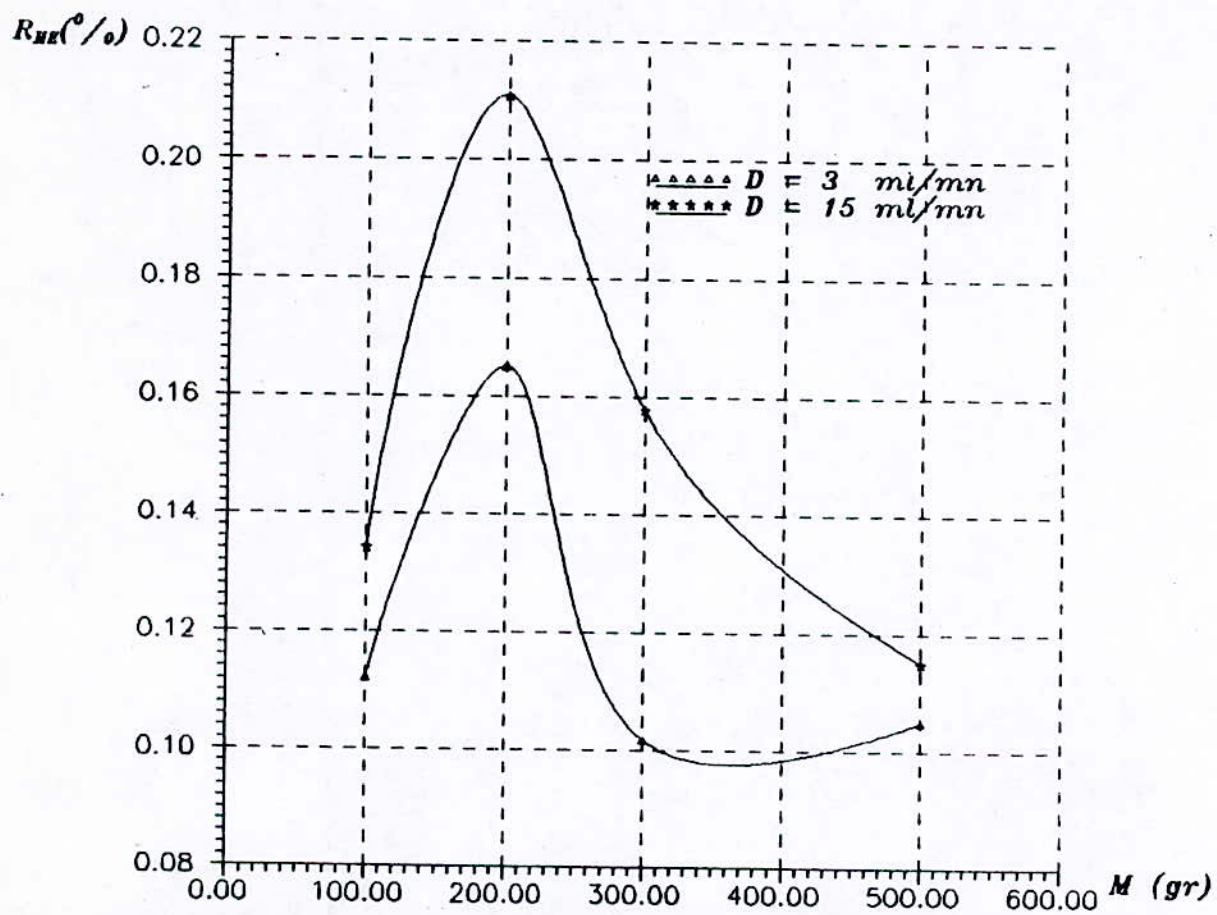
### V.2 Optimisation classique :

#### V-2-1 Influence de la masse de la charge :

L'étude de l'influence de la masse sur le rendement en huile essentielle a été menée sur des charges de masses de 100, 200, 300 et 500 grammes, repartis de façon homogène sur la surface du plateau. Dans le tableaux V.1, nous avons regroupé les résultats ainsi obtenus :

**Tableau V.1 : Influence de la masse de matière végétale  $M$  sur le rendement en huile essentielle  $R_{HE}$ .**

masse (g)	100	200	300	500
débit (ml/mn)				
3	0.1122	0.1650	0.1018	0.1050
15	0.1342	0.2108	0.1578	0.1150



**Fig 3 : Influence de la masse de matière végétale  $M$  sur le rendement en huile essentielle  $R_{HK}$**



Les deux courbes de la figure 3 présentent une allure identique. En effet, nous constatons que pour les deux débits utilisés, une valeur de rendement maximale correspondant à une charge optimale de 200 g. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'utilisation d'une hauteur de lit de matière végétale plus importante ne favorise pas l'entraînement de l'huile essentielle à cause de la mauvaise circulation de vapeur d'eau qui entraîne une diminution du rendement en huile essentielle.

### V.2.2 Influence du débit de distillat:

L'étude de l'influence du débit de vapeur d'eau sur le rendement en huile a été réalisée avec des débits de 3, 15 et 25 ml/mn en faisant varier la puissance de chauffe, ou la position des vannes d'alimentation en vapeur d'eau des alambics. Toutefois, le débit de vapeur ne doit pas excéder le seuil toléré par la construction du condenseur.

Le tableau V.2 regroupe les résultats obtenus pour chaque débit avec deux masses différentes :

**Tableau V.2 : Influence du débit de distillat sur le rendement en huile essentielle  $R_{HE}$ .**

débit(ml/mn)			
masse (gr)	3	15	25
200	0.1650	0.210	0.1937
300	0.1018	0.1578	0.1137

La figure 4 montre qu'il existe comme pour la masse de la charge une valeur optimale du débit de vapeur. En effet, les faibles débits peuvent ne pas vaincre et surmonter les forces de frottement dues à la viscosité du mélange de vapeur d'eau et d'huile essentielle, qui adhérera ainsi aux parois du col de cygne ainsi qu'entre les particules. Par ailleurs, les grands débits peuvent créer des chemins préférentiels du fait de l'altération des premières couches de graines par effet thermique de façon à résister au passage des vapeurs par certains parcours, et réduit donc le contact de la vapeur avec la matière végétale.

En comparant les valeurs de rendement en huile essentielle obtenues à ceux donnés par les travaux antérieurs, nous remarquons que ceux-ci sont du même ordre de grandeur. Notons aussi que la quantité et la qualité de l'huile dépend considérablement de l'origine de la matière végétale.



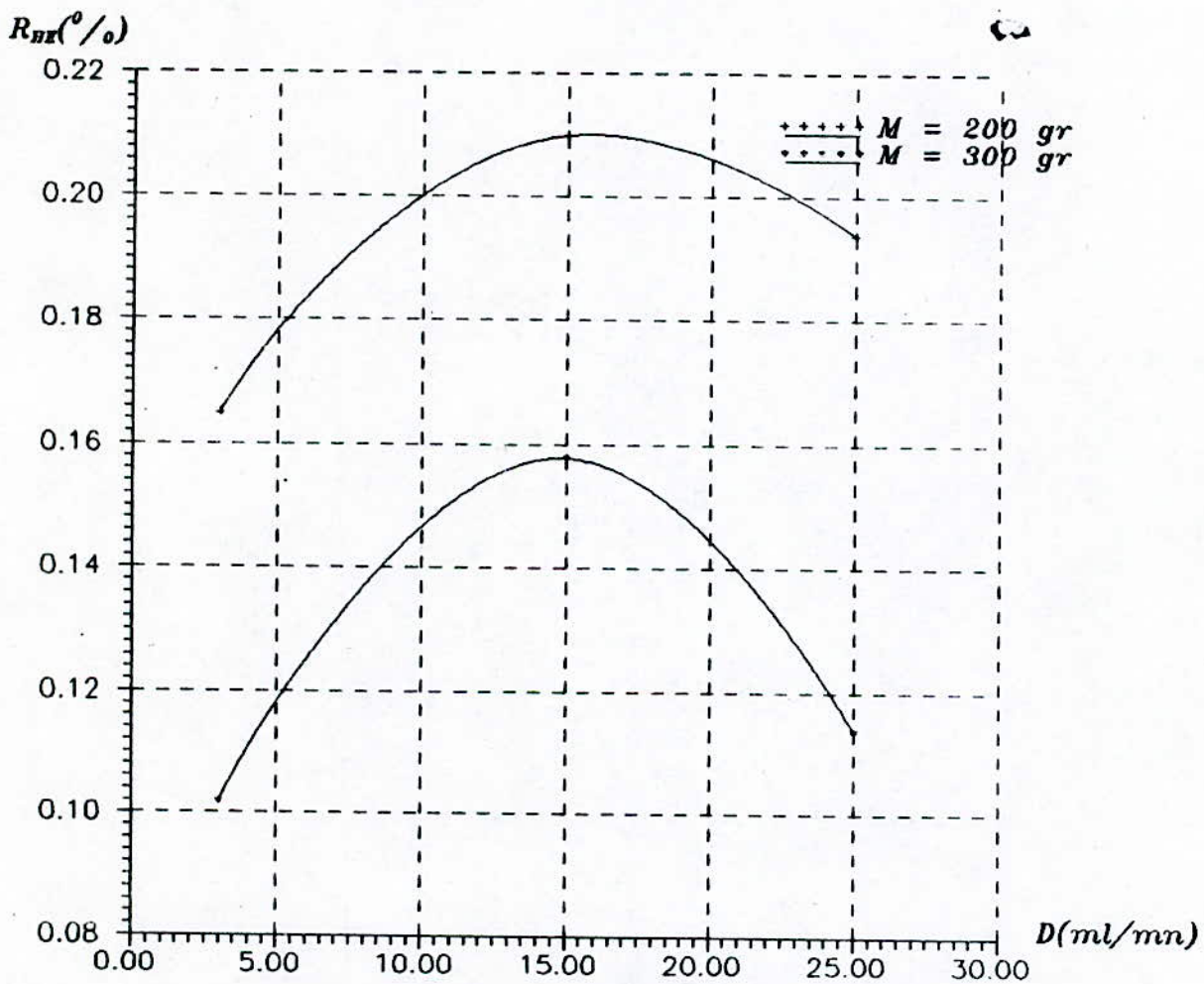


Fig 4 : Influence du débit de distillat sur le rendement en huile essentielle  $R_{HH}$

### C-Cinétique d'extraction :

Afin d'observer l'évolution du rendement en huile essentielle en fonction de la durée d'extraction, nous avons porté sur les tableaux V.3 et V.4 les résultats obtenus pour des masses de 100,200,300 et 500 grammes et des débits de 3 et 15 ml/mn.

**Tableau V.3 : Evolution du rendement en huile essentielle en fonction de la durée d'extraction pour des masses différentes et un débit de 3 ml/mn.**

	15	30	60	90	120	180	240	300
500	0.0073	0.0225	0.0422	0.0615	0.06512	0.0741	0.0901	0.1050
300	0.0225	0.0513	0.0616	0.0673	0.0723	0.0807	0.0982	0.1018
200	0.0274	0.0539	0.0789	0.0923	0.1107	0.1345	0.1542	0.1650
100	0.0229	0.0490	0.0582	0.0611	0.0679	0.0882	0.1009	0.1122

**Tableau V.4 : Evolution du rendement en fonction de la durée d'extraction t pour des masses différentes et un débit de 15 ml/mn.**

	15	30	60	90	120	180	240	300
500	0.0630	0.0315	0.0470	0.0646	0.0848	0.0959	0.1060	0.1150
300	0.0151	0.0422	0.0715	0.0929	0.1132	0.1376	0.1462	0.1578
200	0.0249	0.0468	0.0771	0.1074	0.1320	0.1666	0.1975	0.2108
100	0.0162	0.0331	0.0552	0.0676	0.0838	0.1005	0.1162	0.1342

Les deux figures 5 et 6 représentent l'évolution du rendement en huile essentielle en fonction de la durée d'extraction ; pour des masses de 100,200,300 et 500 grammes, elles correspondent respectivement à un débit de 3 et 15 ml/mn.

L'examen de l'allure de ces courbes révèle l'existence d'un palier intermédiaire dans le cas où l'on opère à faible débit ou si l'on utilise des masses de matières végétales importantes. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'extraction par l'entraînement à la vapeur d'eau des principes aromatiques de la coriandre est régie par deux lois physiques, soit l'entraînement à la vapeur intéresse deux familles de composés différentes, soit les huiles sont localisées dans des sites différents, non accessible à la vapeur d'eau de la même manière, soit à une phase intermédiaire entre les différents modes de récupération des huiles, à savoir, les phénomènes d'osmose et de diffusion libre. Notons que dans certains cas (faible masse ou fort débit). le phénomène de pseudopalier n'est plus constaté, ceci pourrait être dû à la coexistence des deux étapes de la



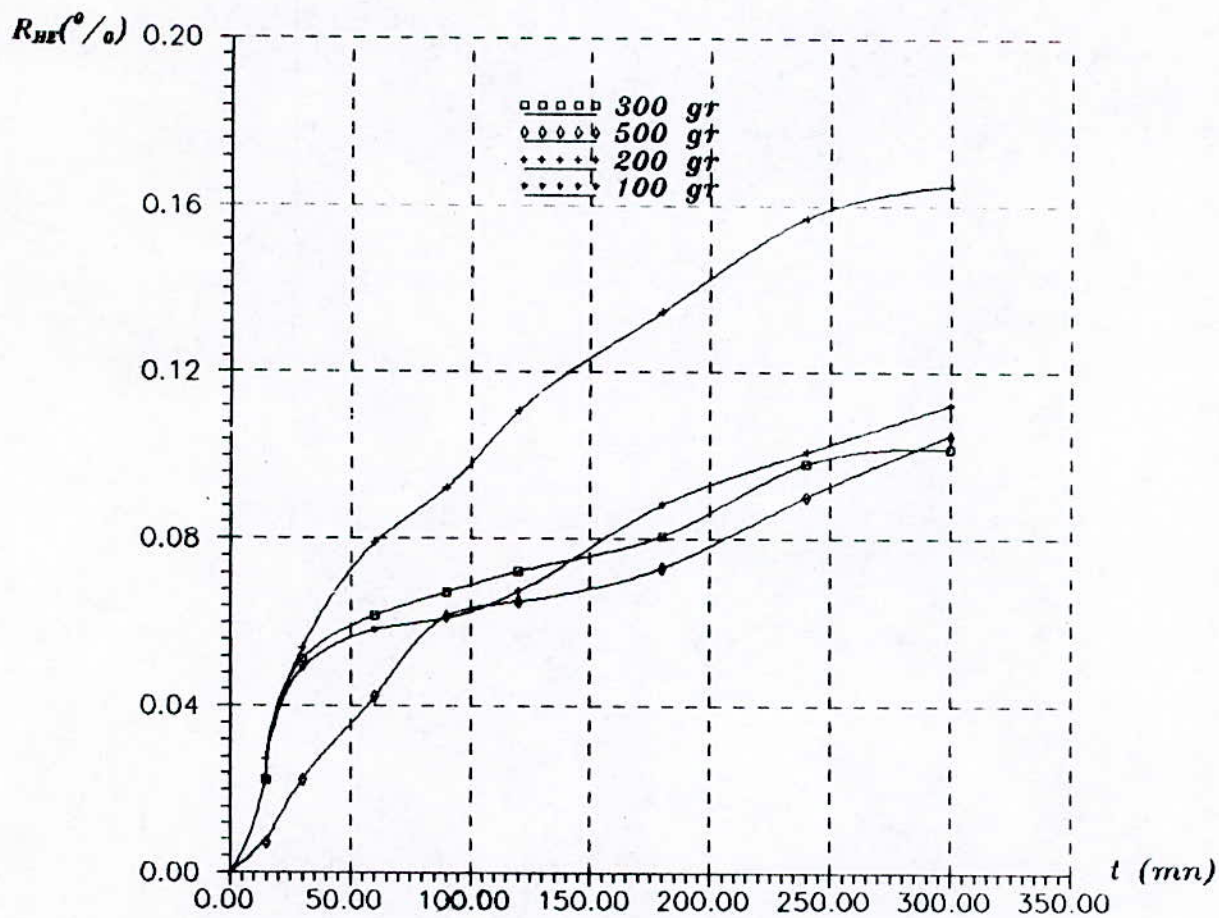


Fig 5 : Evolution du rendement en fonction de la durée d'extraction pour un débit de 3 ml/mn.



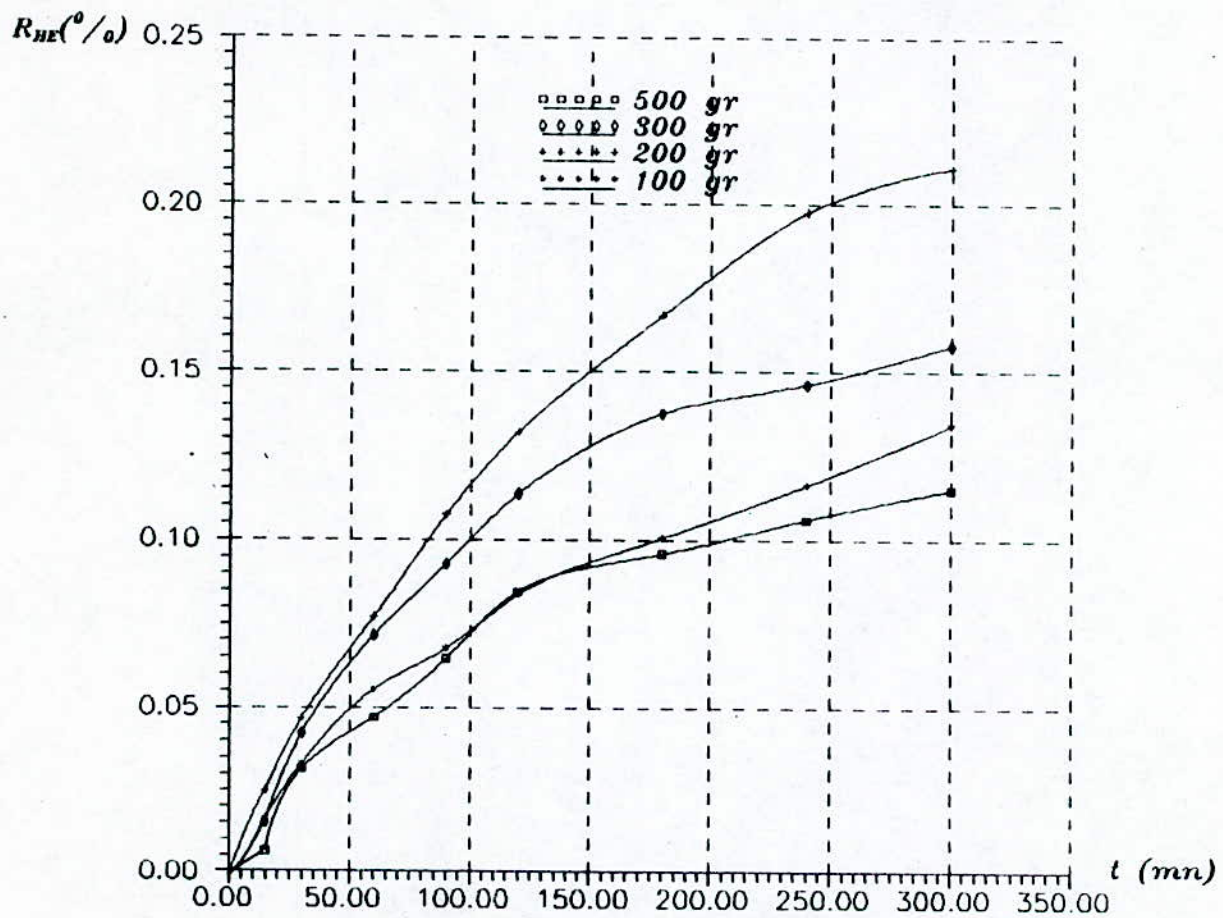


Figure 6 : Evolution du rendement en fonction de la durée d'extraction pour un débit de 15 ml/mn.

cinétique que nous avons proposé, ce qui ne nous permet pas de visualiser le changement d'allure dans ce dernier cas.

### V.3 Planification factorielle des expériences :

en vertu des résultats obtenus lors de l'étude d'optimisation classique, le plan factoriel complet à deux niveaux  $2^k$  peut nous permettre une meilleure exploitation de ces résultats.

#### V.3.1 Effets individuels et conjugués des paramètres sur le rendement en huile essentielle:

Dans le but de déterminer d'éventuelles interactions entre le débit et la masse, ainsi que l'évolution des effets individuels de ces deux paramètres en fonction de la durée d'extraction, nous avons choisi le plan factoriel complet à deux niveaux  $2^2$ , dont nous avons énoncé le principe précédemment au chapitre IV.

Plusieurs domaines expérimentaux ont été étudiés, selon une combinaison entre quatre masses à savoir : 100, 200, 300 et 500 grammes et deux débits : 3 et 15 ml/mn, à l'exception du domaine compris entre 300 et 500 grammes que nous avons jugé non intéressant vu les résultats obtenus lors de l'optimisation classique.

Cette manière d'opérer nous a permis d'étudier l'évolution des effets individuels et conjugués pour les domaines donnés dans le tableau V.6

**Tableau V.6 : Domaines expérimentaux lors de la planification factorielle.**

Domaine	masse (gr)		débit (ml/mn)	
	niveau bas	niveau haut	niveau bas	niveau haut
1	100	500	3	15
2	100	300	3	15
3	200	500	3	15
4	200	300	3	15
5	100	500	3	15

La matrice des effets  $A$  est calculée à partir de la relation :

$$A = \frac{1}{n} \cdot X^{-1} \cdot y$$

elle est sous la forme :

$$A = \begin{pmatrix} a_0 \\ a_1 \\ a_2 \\ a_{12} \end{pmatrix}$$

La valeur n correspond au nombre d'expérience à réaliser, nécessaire à la construction d'un plan factoriel complet à deux niveaux. Dans notre cas n est égale à  $2^2 = 4$ .

La matrice des niveaux X est sous la forme :

$$X = \begin{pmatrix} +1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 \\ +1 & +1 & +1 & +1 \end{pmatrix}$$

La matrice Y représente les réponses obtenus lors des expériences :

$$Y = \begin{pmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ Y_3 \\ Y_4 \end{pmatrix}$$

Le traitement des résultats obtenus lors de l'optimisation classique nous a permis de calculer ces effets pour chaque domaine expérimentale en procédant de la même manière que celle décrite précédemment. Ces effets sont présentés dans les tableaux suivants :

**Tableau V.7: Evolution des effets conjugués et individuels en fonction de la durée d'extraction dans le domaine expérimental (1).**

	15	30	60	90	120	180	240	300
$a_0$	0.0131	0.0340	0.0506	0.0637	0.0737	0.0896	0.1035	0.1166
$a_1 \cdot 10^{+3}$	-6.4	-7.03	-6.05	-0.66	-0.45	-4.675	-4.002	-6.6
$a_2 \cdot 10^{+3}$	1.93	-1.73	0.45	2.4	8.9	8.53	7.55	8
$a_{12} \cdot 10^{+3}$	1.43	6.23	1.95	-0.85	0.95	2.38	-1	-3



**Tableau V.8 : Evolution des effets conjugués et individuels des paramètres débit et masse en fonction de la durée d'extraction dans le domaine expérimental (2).**

	15	30	60	90	120	180	240	300
$a_0$	0.01917	0.0488	0.0616	0.0722	0.0843	0.1018	0.11535	0.1265
$a_1 \cdot 10^3$	-0.37	2.85	4.93	7.875	8.5	7.4	6.82	3.3
$a_2 \cdot 10^3$	-3.52	-6.25	1	8.02	14.30	17.3	16.82	0.1635
$a_{12} \cdot 10^3$	-0.175	1.7	3.225	4.79	6.35	11.15	8.17	8.5

**Tableau V.9 : Evolution de la moyenne des effets individuels et conjugués des paramètres débit et masse en fonction de la durée d'extraction pour le domaine(3)**

	15	30	60	90	120	180	240	300
$a_0$	0.0169	0.0386	0.0613	0.0815	0.0941	0.117	0.1388	0.1489
$a_1 \cdot 10^{+3}$	5.08	-0.028	-6.05	-18.45	-23.2	-45.28	-38.9	-38.95
$a_2 \cdot 10^{+3}$	-1.93	-3.43	0.45	4.6	10.25	13.47	14.8	13.95
$a_{12} \cdot 10^{+3}$	0.388	4.03	1.65	-3	-0.32	-2.57	-6.85	-8.95

**Tableau V.10 : Evolution de la moyenne des effets individuels et conjugués des paramètres débit et masse en fonction de la durée d'extraction pour le domaine(4)**

	15	30	60	90	120	180	240	300
$a_0$	0.0225	0.04857	0.07231	0.08999	0.1077	0.1298	0.1497	0.1587
$a_1$	-0.00367	-0.0048	-0.00574	-0.0098	-0.0149	-0.0207	-0.0275	-0.029
$a_2$	-0.0028	-0.0041	+0.0020	0.0101	0.0156	0.0222	0.02207	0.0226
$a_{12}$	-0.0012	-0.0005	0.0029	0.00263	0.00499	0.00368	0.0019	0.00131

**Tableau V.11 : Evolution de la moyenne des effets individuels et conjugués des paramètres débit et masse en fonction de la durée d'extraction pour le domaine(5)**

	15	30	60	90	120	180	240	300
$a_0$	0.0228	0.0457	0.0543	0.0821	0.0986	0.1224	0.1422	0.1555
$a_1 \cdot 10^{+3}$	3.2	4.66	10.66	17.75	35.48	28.10	33.65	32.35
$a_2 \cdot 10^{+3}$	-2.32	-5.75	-1.2	5.4	9.3	11.11	14.65	16.95
$a_{12} \cdot 10^{+3}$	1.05	2.2	0.30	2.15	1.35	4.95	7	5.95

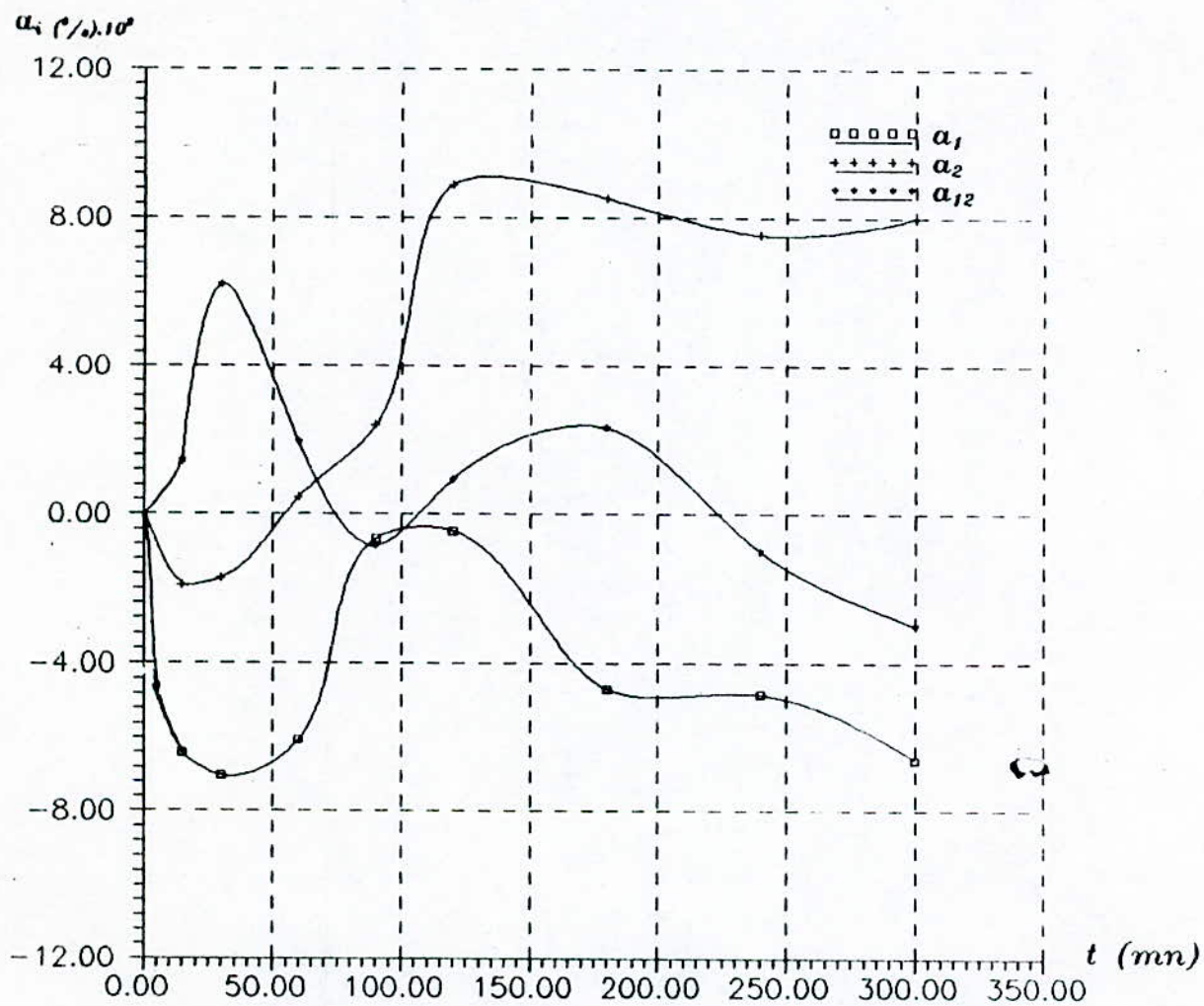


Fig 7 Evolution des effets individuels et conjugués en fonction de la durée d'extraction dans le domaine expérimental (1)

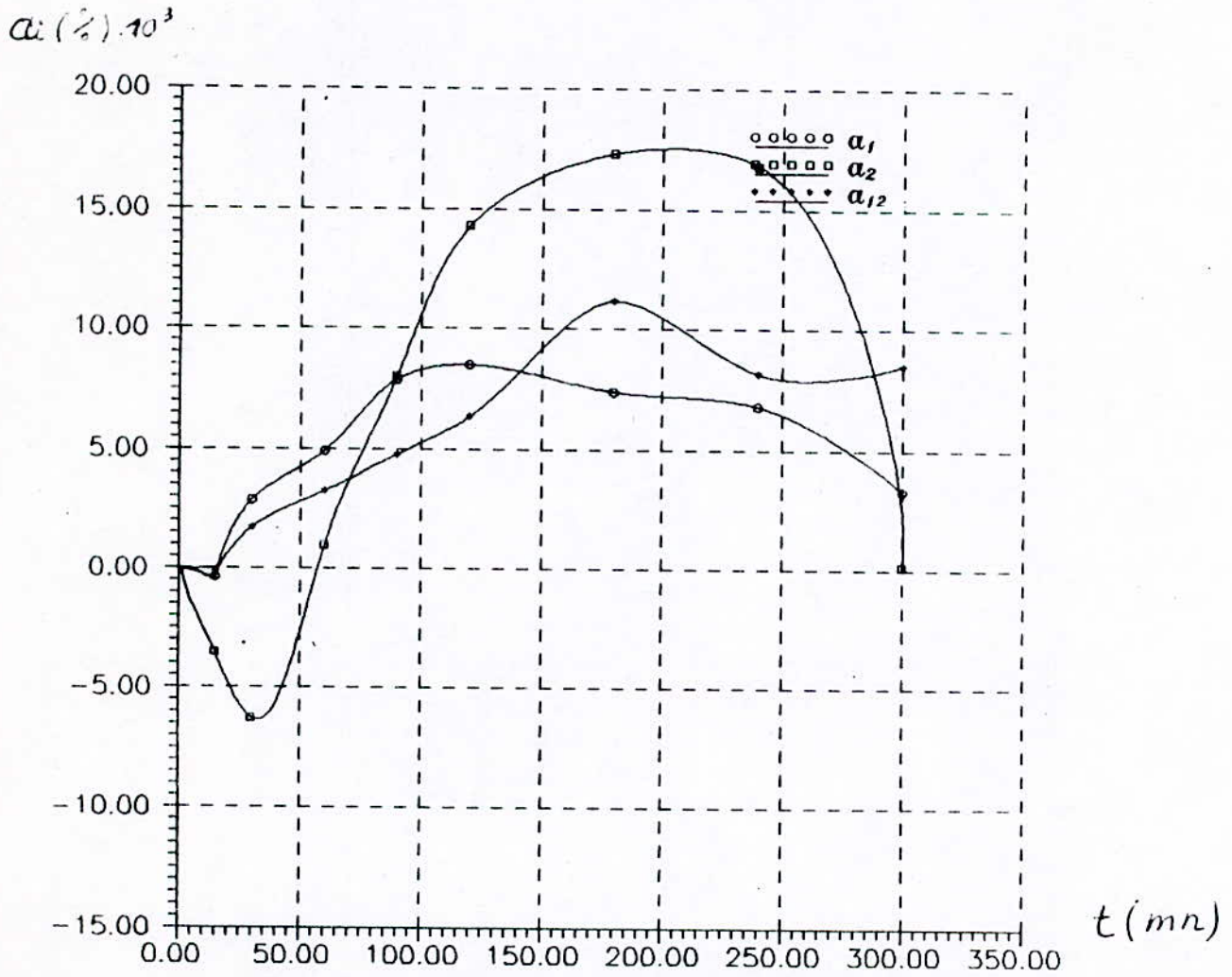


Fig 8 Evolution des effets individuels et conjugués de la masse et du débit de distillat en fonction de la durée d'extraction dans le domaine expérimental (2)



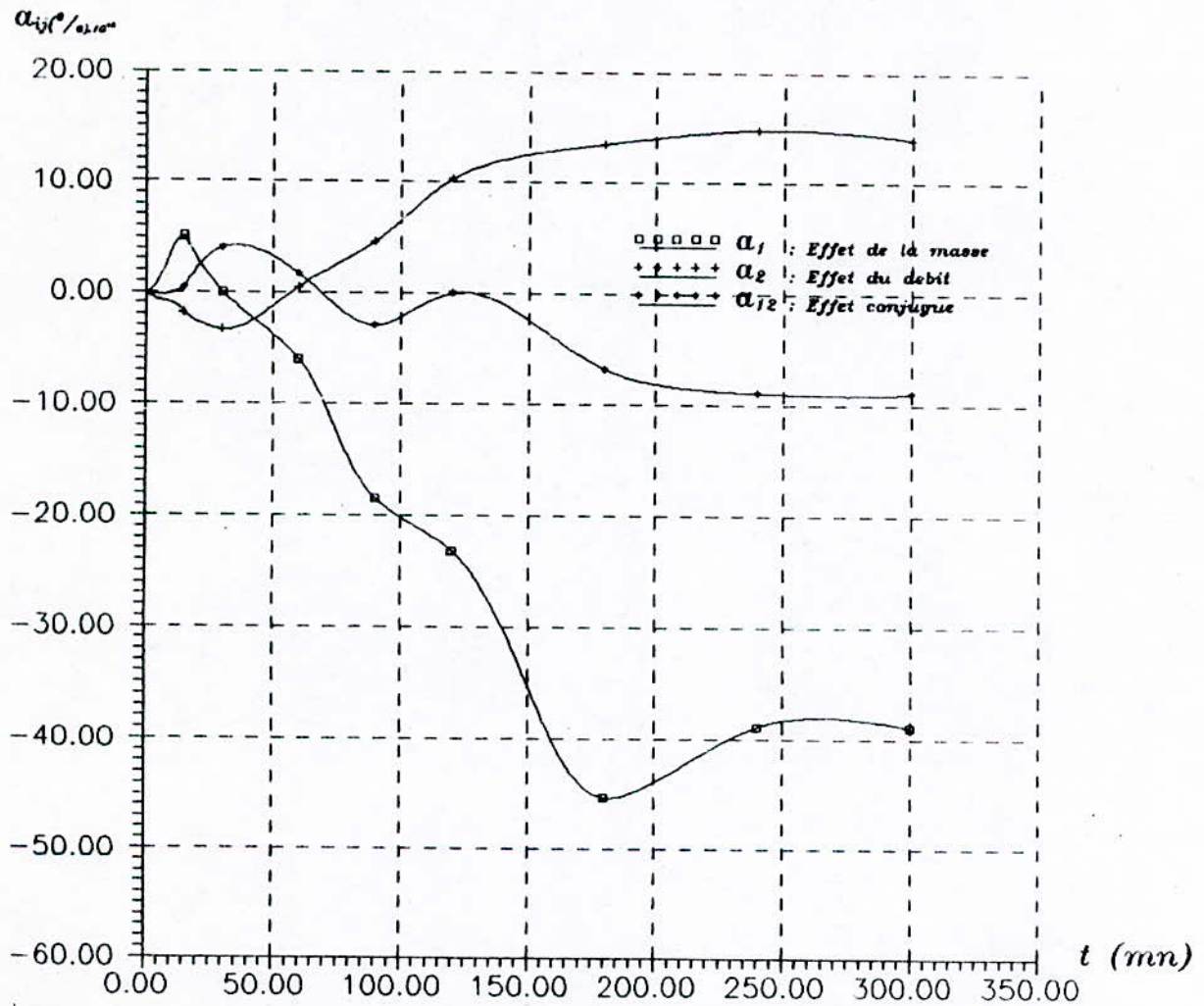


Fig 9 Evolution des effets individuels et conjugués de la masse et du débit de distillat en fonction de la durée d'extraction pour le domaine (3)

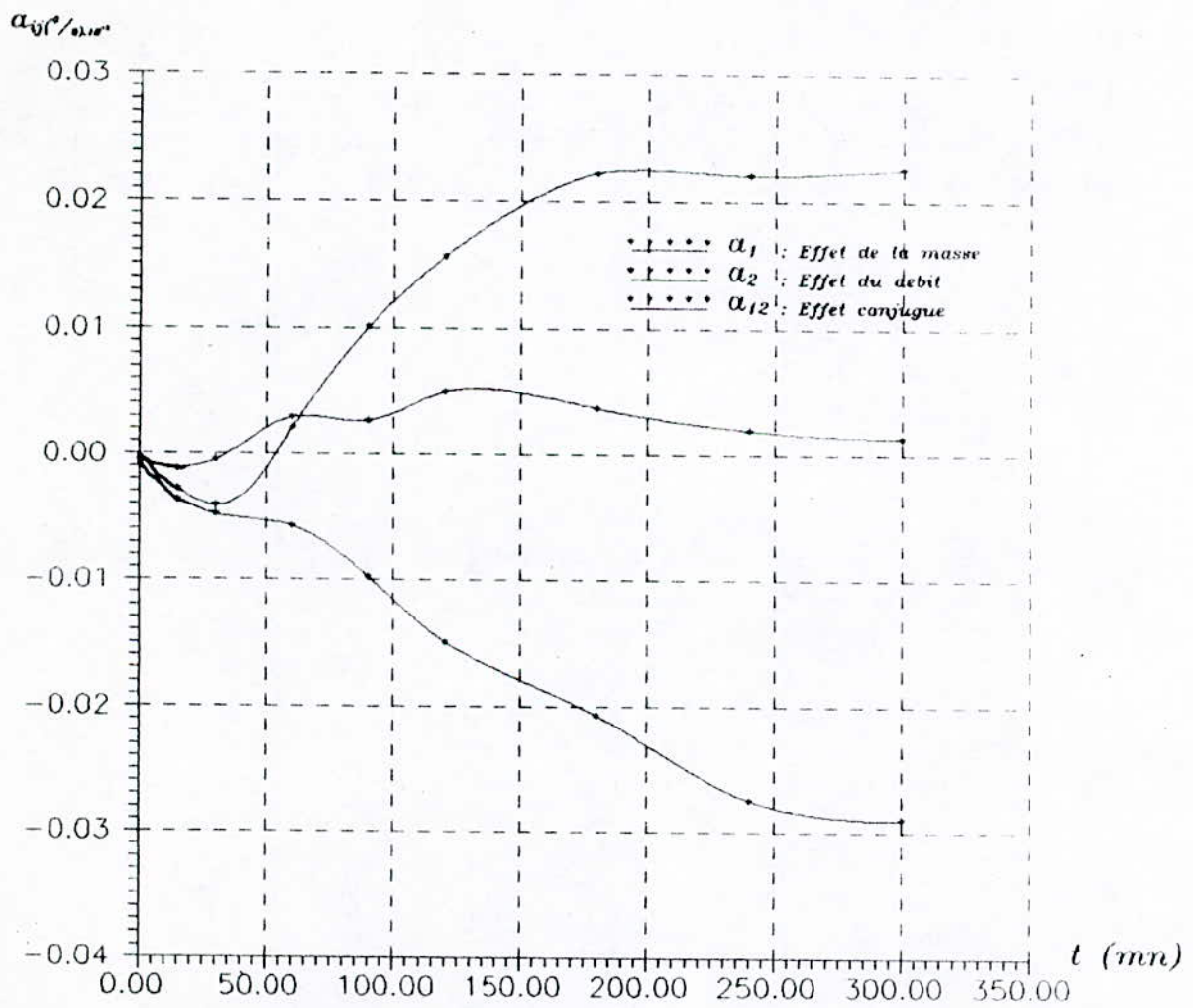


Fig 10 Evolution des effets individuels et conjugués de la masse et du débit de distillat en fonction de la durée d'extraction pour le domaine (4)

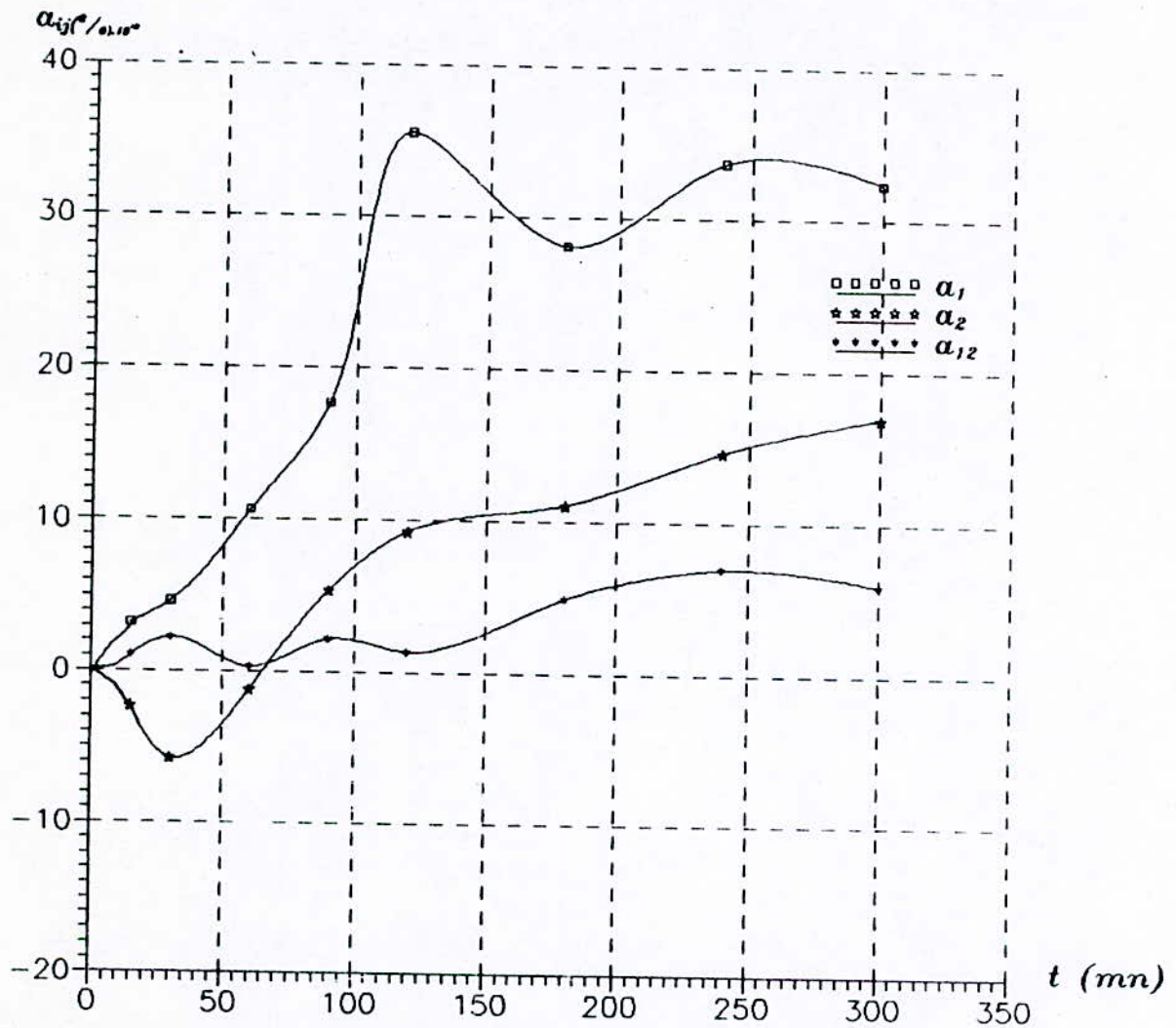


Fig 11 Evolution des effets individuels et conjugués de la masse et du débit du distillat en fonction de la durée d'extraction pour le domaine (5).



L'examen des figures 7,8,9.....,11 montre que les effets individuels de la masse sont généralement négatifs , à l'exception des domaines 2 et 5.L'effet positif de ce paramètre dans ces deux cas peut être du à la perte de charge qui n'est pas assez importante , dans le cas d'une charge de masse faible, pour entraîner l'huile essentielle.

En revanche pour des masses supérieures, ce paramètre agit comme une contrainte au transfert de matière du fait de l'entassement de la matière végétale, rendant la pénétration de la vapeur d'eau difficile et d'autre part , de la création des chemins préférentiels réduisant le contact vapeur-matière.

Par ailleurs , l'évolution de l'effet du débit de distillat présente une allure identique pour tous les domaines expérimentaux, à savoir , un effet négatif au début de l'opération puis tend vers des valeurs positifs à partir de la deuxième heure de traitement ,résultats en accord avec ceux obtenus déjà à l'échelle laboratoire[27,28]

L'effet conjugué des deux paramètres n'est pas l'influence prépondérante sur le rendement.

A la lumière des résultats obtenus, nous pouvons conclure que pour augmenter le rendement en huile, il faut travailler entre 200 et 300 grammes, car pour des masses inférieures l'extracteur est sous exploité, alors que pour des masses supérieures les rendements sont de loin comparables à ceux obtenus dans le domaine d'intérêt.

Une programmation croissante du débit de vapeur d'eau pourrait bien être avantageuse , car elle permet d'économiser de la vapeur d'eau et de garder l'effet du débit positif tout au long de l'opération.

La modélisation pratique s'obtient en remplaçant les valeurs littérales de la formule (2) par les effets calculés, nous l'avons estimé pour chaque domaine en considérant la dernière fraction.

- 1-  $Y = 0.1166 - 6.6 \cdot 10^{-3} X_1 + 8 \cdot 10^{-3} X_2 - 3 \cdot 10^{-3} X_1 X_2$
- 2-  $Y = 0.1265 + 8.5 \cdot 10^{-3} X_1 + 19.5 \cdot 10^{-3} X_2 + 3.3 \cdot 10^{-3} X_1 X_2$
- 3-  $Y = 0.1469 - 38.95 \cdot 10^{-3} X_1 + 13.95 \cdot 10^{-3} X_2 - 8.95 X_1 X_2 \cdot 10^{-3}$
- 4-  $Y = 0.1587 - 0.029 X_1 + 0.0226 X_2 + 0.0031 X_1 X_2$
- 5-  $Y = 0.1555 + 32.35 \cdot 10^{-3} X_1 + 16.95 X_2 + 5.95 X_1 X_2 \cdot 10^{-3}$



Ces résultats nous ont amenés à considérer pour l'étude des vitesses instantanées d'extraction  $V_{HE}$ , le domaine (4) compris entre 200 et 300 grammes, que nous pensons être le domaine expérimental optimal correspondant à l'installation utilisée.

### V.3.2 Effet individuel et conjugué des paramètres opératoires sur la vitesse instantanée d'entraînement :

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

Pour se faire nous avons estimé les vitesses instantanées d'extraction par le calcul des pentes des tangentes aux courbes des Figures 5 et 6, en fonction de la durée d'extraction  $t$  à la vapeur d'eau, dans le tableau V.12 :

**Tableau V.12: Evolution de la vitesse instantanée en fonction de la durée d'extraction à l'entraînement à la vapeur.**

	10	20	45	75	105	150	210	270
$V_1 \cdot 10^4$	21.33	16.66	9.4	4.46	3.06	5.56	3.4	1.1
$V_2 \cdot 10^4$	15.33	15.93	4.10	1.9	2	1.33	3.1	0.77
$V_3 \cdot 10^4$	16.33	13.66	10.5	10.1	7.71	5.66	5.08	2.33
$V_4 \cdot 10^4$	10.1	15.46	9.96	7.53	6.83	3.86	1.65	1.6

La figure V.12 traduisant la variation des vitesses instantanées  $V_{HE}$  en fonction de la durée d'extraction, révèle dans les quatre cas une diminution fortement prononcée de la vitesse durant la première heure d'extraction. Cette diminution est d'autant plus importante que le débit de distillat est faible.

Par ailleurs, les résultats de cette étude peuvent nous informer sur les étapes du processus d'entraînement à la vapeur d'eau, en effet les courbes présentent généralement une allure identique, à savoir une augmentation de la vitesse de distillation à partir d'une certaine durée d'extraction, qui laisse penser que le processus de récupération des huiles essentielles dans le cas de l'entraînement à la vapeur d'eau est régie par deux lois physiques, ces résultats sont en accord avec ceux obtenus lors de travaux antérieurs. [28]

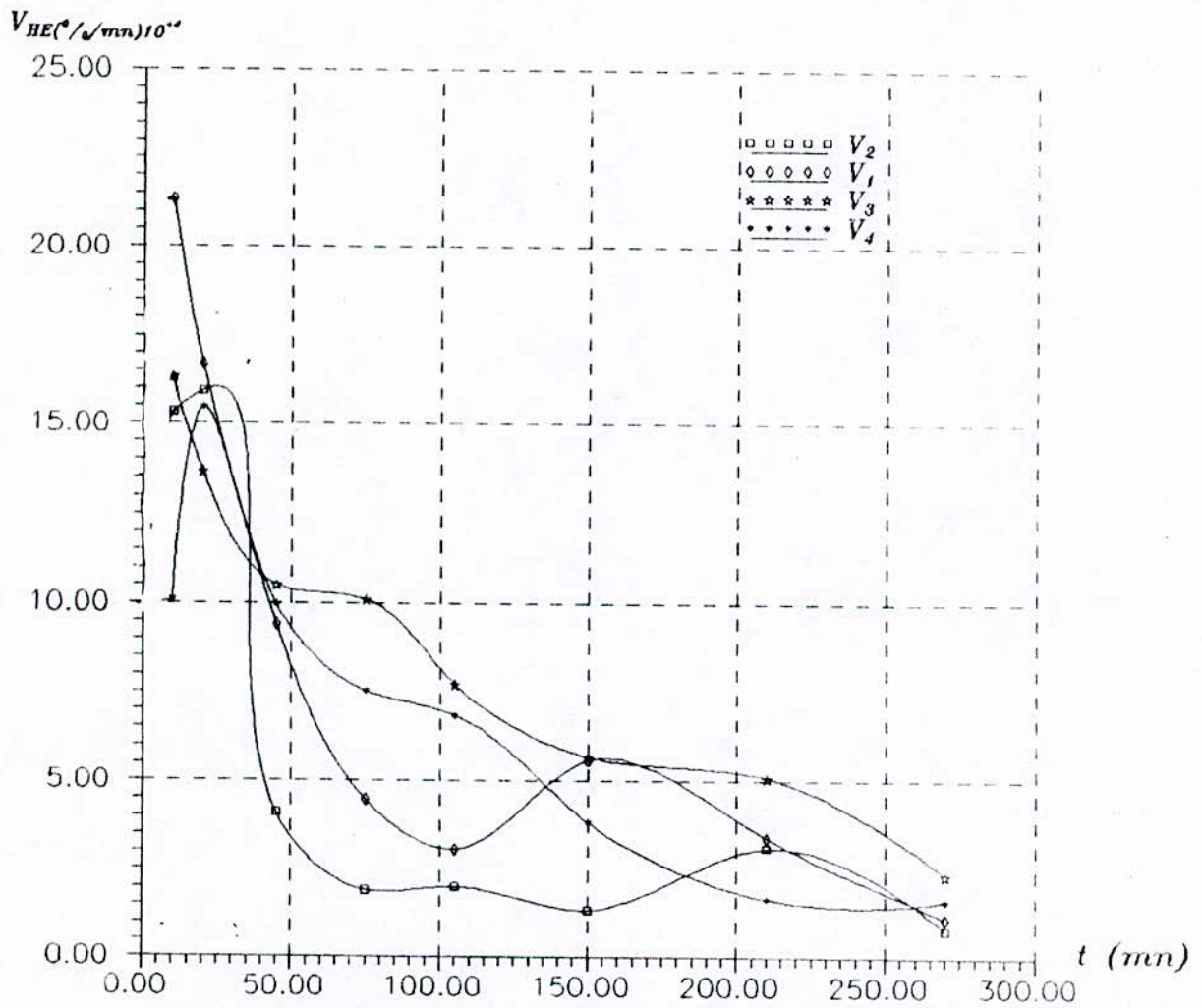


Fig 12: Evolution de la vitesse instantane  $V_{HE}$  ( $^\circ/\text{mn}$ ) en fonction de la dure d'extraction  $t$  (mn)



Le tableau V.13 présente l'évolution des effets individuels et conjugués en fonction de la durée d'extraction(t).

**Tableau V.13 : Evolution des effets individuels et des effets conjugués en fonction de la durée d'extraction à l'entraînement à la vapeur.**

temps (mn)	10	20	45	75	105	150	210	270
masse(gr)								
$b_0 \cdot 10^4$	15.17	15.42	8.48	5.94	4.9	4.10	3.31	1.45
$b_1 \cdot 10^4$	-3.05	1.078	-1.33	-1.28	-0.48	-1.50	-0.94	-0.26
$b_2 \cdot 10^4$	-2.55	-0.37	1.74	2.31	2.37	0.65	0.051	0.051
$b_{12} \cdot 10^4$	-0.057	0.63	4.76	-0.001	0.045	0.53	-0.18	-0.1

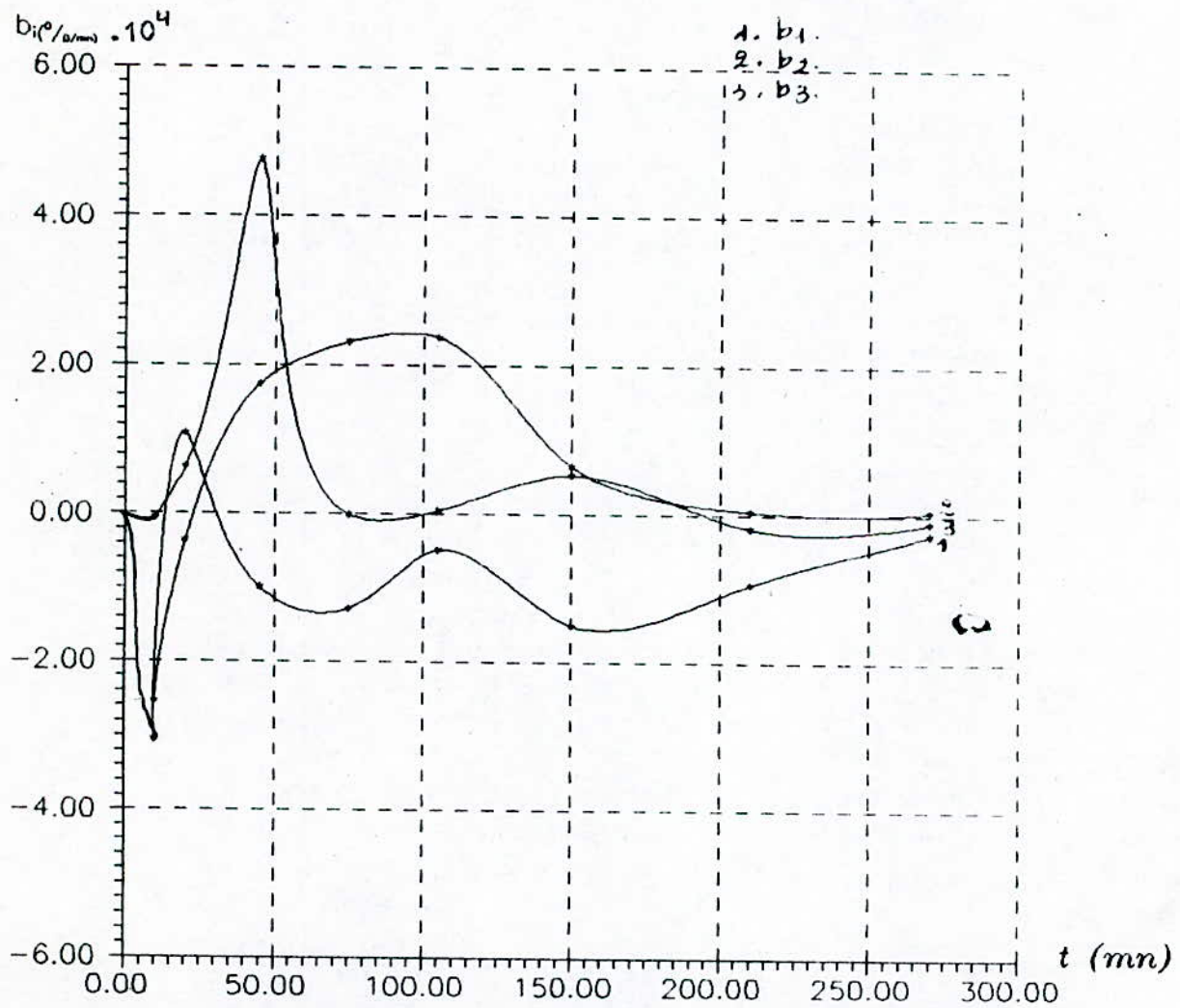
La figure 13 montre que l'effet de la masse sur la vitesse instantanée est négatif tout le long de l'opération d'extraction, d'autre part nous remarquons que l'augmentation du débit de distillat a un effet négatif pendant la première heure, puis devient positif à partir de la deuxième heure, ce qui est en accord avec les résultats obtenus lors de l'étude des effets sur le rendement.

### V.3.3 Extraction avec programmation du débit :

Sachant , d'après les résultats de la planification des expériences , que l'augmentation du débit de vapeur n'a une influence positive qu'à partir d'environ deux heures de traitement de la matière végétale, le fait d'opérer en progression de ce paramètre pourrait favoriser l'entraînement des huiles essentielles.

Nous nous sommes placés dans la condition optimale de la masse , à savoir 200 grammes en imposant pendant la première heure un débit de 3 ml/mn , puis un débit de 15 ml/mn jusqu'à la fin de l'extraction.

Le tableau V.14 donne l'évolution du rendement  $R_{HE}$  en fonction de la durée d'extraction pour un débit constant de 15 ml/mn (1) et une programmation de débit (2).



**Fig 13** Evolution des effets individuels et conjugués de la masse et du débit sur la vitesse instantanée en fonction de la durée d'extraction.

**Tableau V.14 : Evolution du rendement RHE en huile en fonction de la durée d'extraction t pour un débit constant (1) et une programmation de débit (2)**

	15	30	60	90	120	180	240	300
1	0.0249	0.0468	0.0771	0.1074	0.1320	0.1666	0.1975	0.2108
2	0.0232	0.0501	0.0752	0.1107	0.1387	0.1752	0.2005	0.2320

La figure 14 , nous permet de constater une légère augmentation du rendement dans le cas d'une programmation du débit .

Néanmoins nous avons fait une économie de vapeur d'eau, donc une économie d'énergie , un critère très important dans le choix d'un procédé industriel , Nous constatons d'autre part que les graines sont moins altéré: que dans ceux issues d'une extraction simple, ce qui peut permettre une valorisation des graines épuisées après séchage dans l'alimentation des animaux.



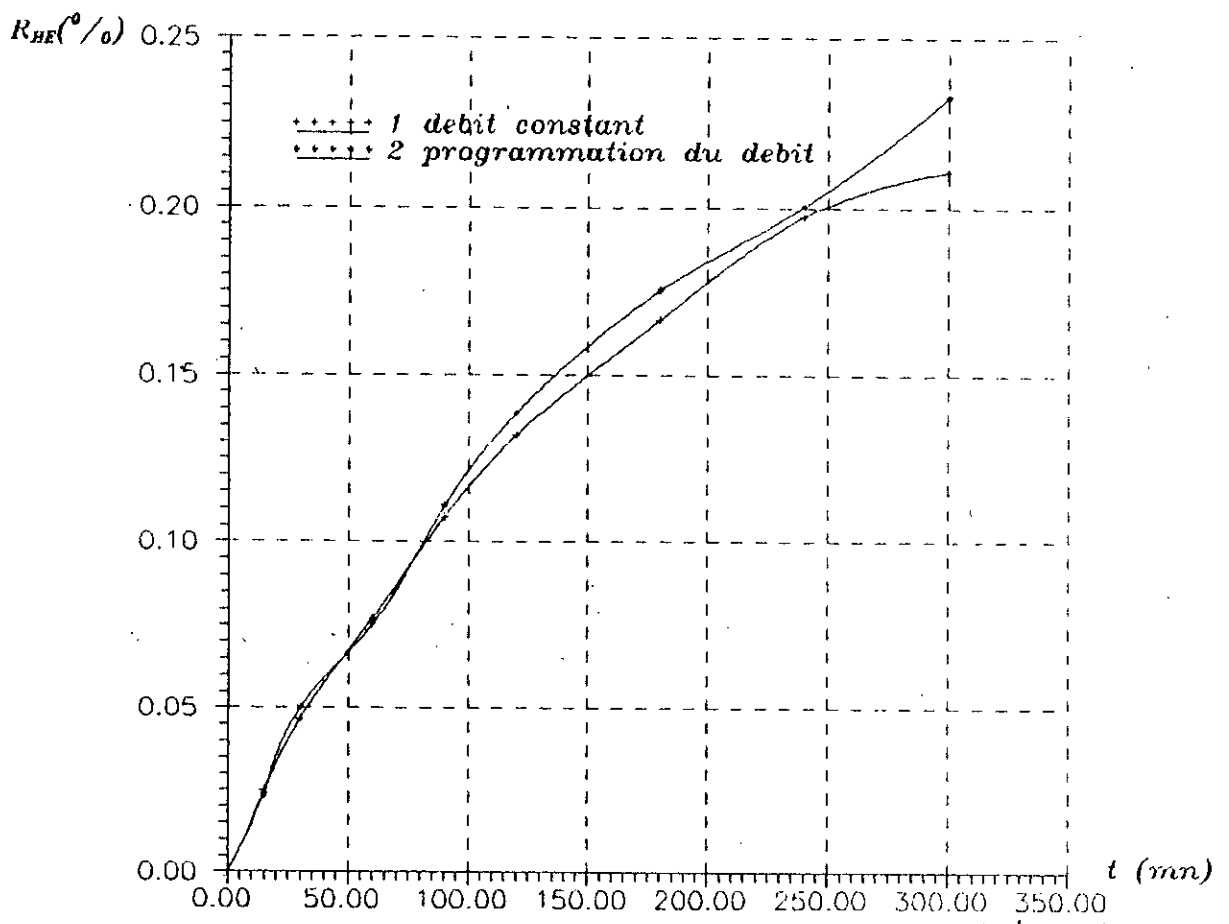


Fig 14 Effet d'une programmation du debit sur le rendement en huile essentielle

#### V.4 Effet de la macération dans l'eau froide des graines sur le rendement en huile essentielle :

Vu les résultats obtenus lors des travaux antérieurs avec des graines macérées dans l'eau froide au préalable [27,28], nous avons estimé nécessaire de vérifier si à l'échelle semi-pilote ce phénomène se répète, et d'étudier l'influence de différentes durées de macération pour déterminer une valeur optimum à partir de laquelle le rendement n'augmente plus, donc de déterminer un éventuel palier s'il y'a lieu.

Placés dans les conditions optimales d'extraction déduites de l'étude précédente à savoir :

-masse de la matière végétale : 200 grammes

-débit de distillat : 15 ml/mn

La durée d'extraction a été fixée à 180 minutes et le volume d'eau utilisé est de 5 litres.

Nous avons étudié l'influence de la macération en huile essentielle que nous présentons les résultats dans le tableau V.15 :

**Tableau V.15 : Influence de la durée de macération sur le rendement en huile essentielle  $R_{HE}$**

	15	30	60	90	120	180
24	0.0406	0.0712	0.1225	0.1692	0.1895	0.2027
12	0.0450	0.0732	0.1245	0.1832	0.2001	0.1982
2	0.0385	0.1073	0.1266	0.15514	0.1704	0.2100
1	0.0364	0.0745	0.1204	0.1664	0.1801	0.2075
3/4	0.0445	0.1101	0.1515	0.1724	0.1902	0.2232
1/2	0.0414	0.1022	0.1563	0.1981	0.2310	0.2620
1/4	0.0462	0.0887	0.13005	0.1663	0.1955	0.2340

La figure 15 montre une nette augmentation du rendement dans le cas de graines macérées au préalable dans l'eau froide par rapport aux graines sèches et ceci même pour des durées faibles de macération.

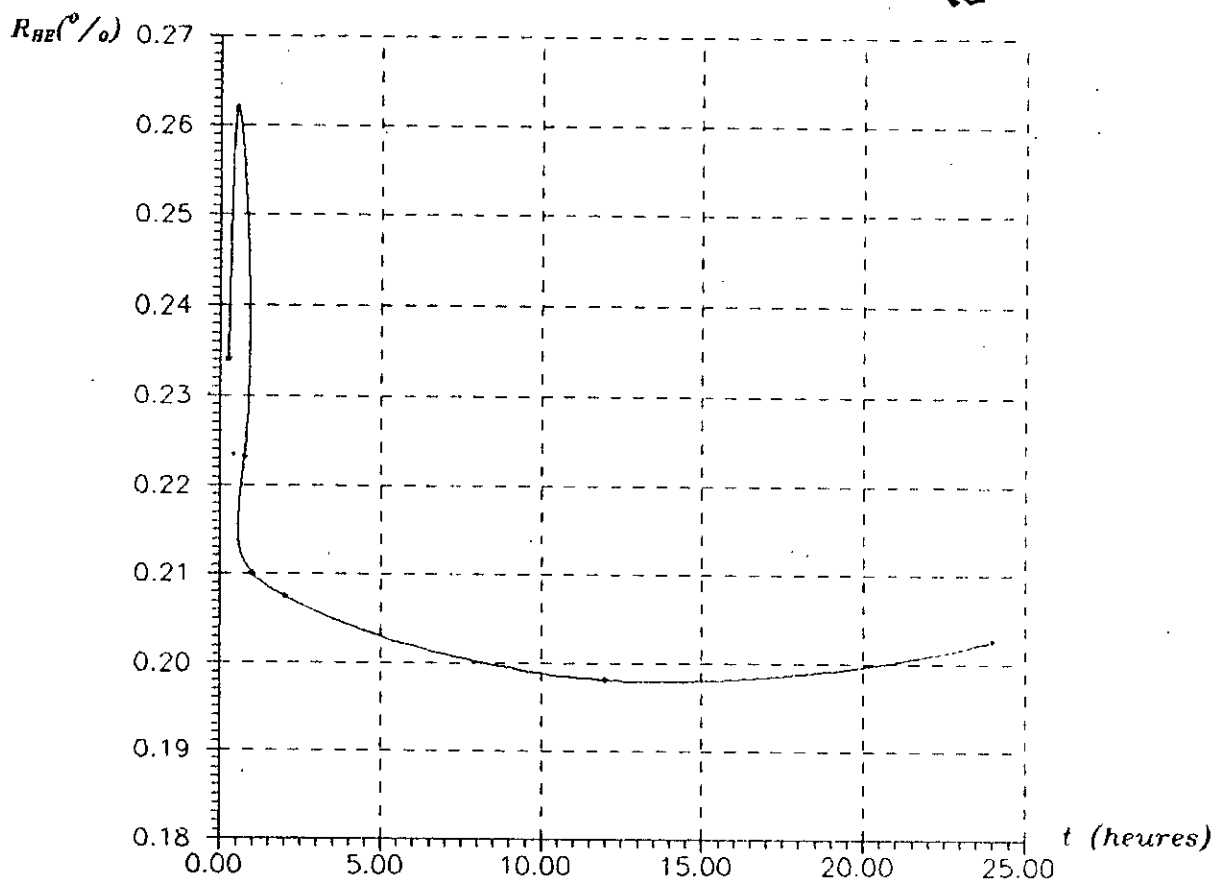


Fig 15 Evolution du rendement en fonction de la durée de macération a l'eau froide.



Cela est certainement dû à l'hydrolyse des hétérosides, qui favorise l'extraction des principes aromatiques, parmi eux probablement les saponides, car la solution aqueuse issue de cette opération, présente un caractère moussant fortement par agitation. Ce traitement permet aussi de protéger les graines de l'altération par effet thermique, constaté sur des graines sèches, du fait de l'humidification. Elle présente une valeur optimale correspondant à 30 minutes.

Au delà de cette durée de macération dans l'eau froide, le rendement diminue pour atteindre des valeurs proches à partir d'une heure de traitement.

Le tableau V.16 représente le taux d'humidification subit par la matière végétale.

**Tableau V.16 : Evolution du taux d'humidification en fonction de la durée de macération**

	1/4	1/2	3/4	1	2	12	24
$R_{HE}$	0.2340	0.2620	0.2232	0.2075	0.2100	0.1982	0.2027
$m'$ (gr)	390	410	430	450	465	510	530
$\Delta m=(m'-m)$ (gr)	190	210	230	250	265	310	330

Le tab. V.16 montre qu'à partir de 30 minutes, le gonflement des graines a un effet négatif sur le rendement. Néanmoins il reste nettement supérieur à celui obtenu avec des graines sèches. La valeur de 30 minutes pourrait aussi correspondre à une saturation de la solution aqueuse en hétérosides.

En conclusion, nous proposons de macérer les graines au préalable avant de leurs faire subir une extraction à la vapeur d'eau, dans le but d'améliorer le rendement.

## V.5 Etude de l'effet du broyage sur le rendement en huile essentielle :

L'intérêt de cette étude réside dans la comparaison d'une part entre les rendements obtenus à partir des graines sèches entières et sèches broyées , et d'autre part entre ceux obtenus à partir des graines macérées entières et des graines macérées broyées.

### V.5.1 Etude de l'effet du broyage sur des graines sèches :

Nous avons effectué extraction avec des graines concassés ( $\varnothing = 2$  mm) et sèches en nous plaçons dans les conditions opératoires optimales :

- Masse de la matière végétale M :200 gr
- Débit de distillat D : 15 ml/mn

La durée d'extraction a été fixée à 180 minutes.

Le tableau V.17 représente l'évolution du rendement en huile essentielle  $R_{HE}$  en fonction de la durée d'extraction pour des graines sèches entières (1) et des graines sèches broyées (2).

**Tableau V.17 : Influence du broyage des graines sèches sur le rendement en huile essentielle  $R_{HE}$ .**

t	rendement (%)	
	(1)	(2)
15	0.0213	0.049
30	0.0468	0.0857
60	0.0811	0.1227
90	0.1074	0.1492
120	0.1320	0.1701
180	0.1666	0.2001

L'examen de la figure V.17 montre que le rendement obtenus à partir des graines sèches et broyées est nettement supérieurs à ceux obtenus à partir des graines entières. En effet dans le cas où le dépôt des huiles dans la matière végétale est endogène, le broyage conduisant à la destruction des parois cytoplasmiques , favorise la diffusion libre de l'huile essentielle et son entraînement à la vapeur d'eau . Néanmoins les résultats obtenus reste de loin comparable à ceux obtenus lors des travaux antérieurs [2]. Ceci est due

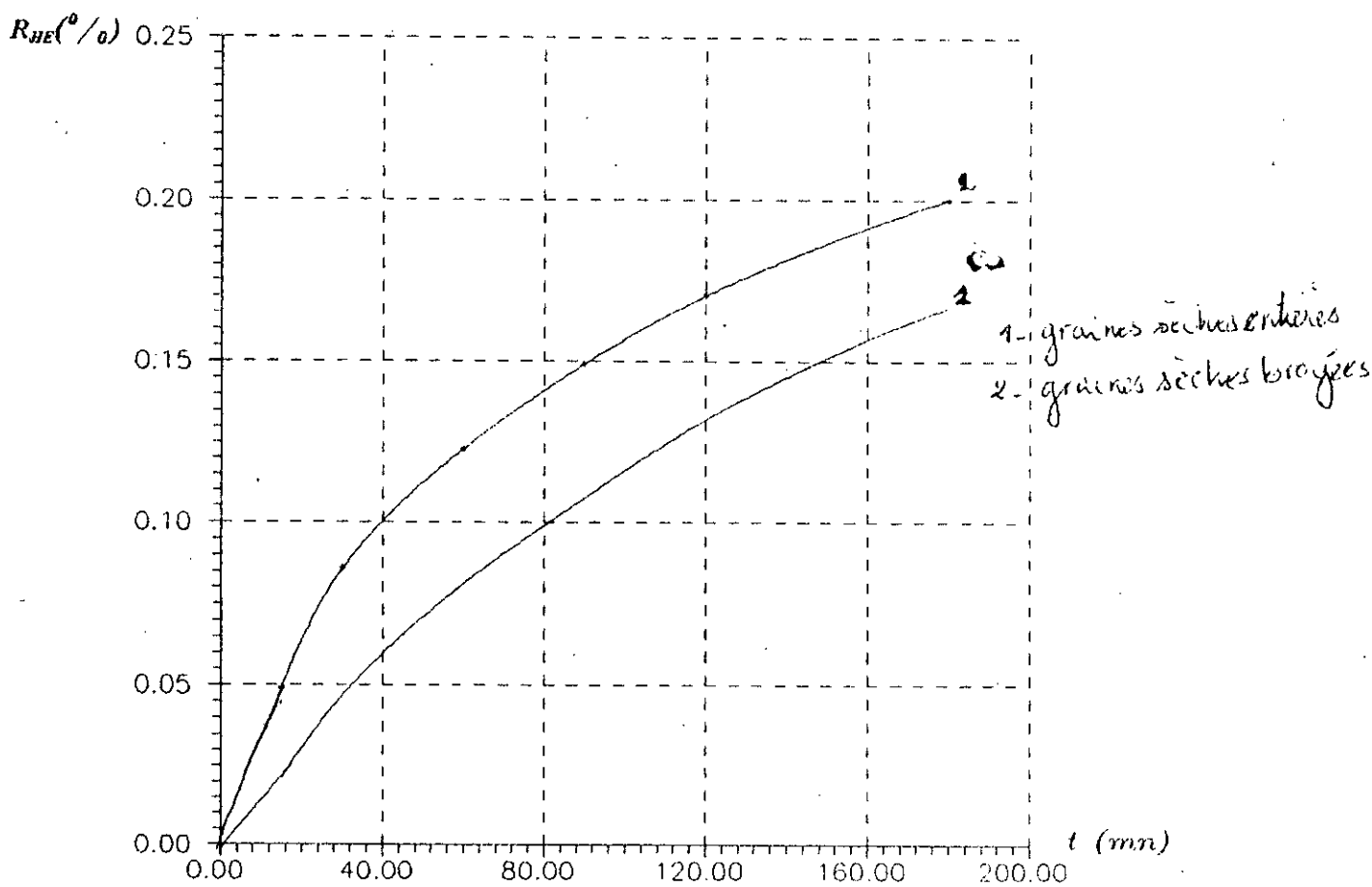


Fig 16 : Influence du broyage des graines sèches sur le rendement en huile essentielle



certainement à l'entassement de la charge dans l'alambic , car à la fin de l'opération nous constatons que la charge forme une masse compact très humide du fait des eaux de condensations ,ce qui nous amène à conclure que pour des graines broyées il faut utiliser des hauteurs de lit plus faibles , donc des masses moins importantes.

### V.5.2 Etude de l'effet du broyage des graines macérées dans l'eau froide sur le rendement en huile essentielle :

Les résultats obtenues avec des graines macérées dans l'eau froide et des graines broyées , comme charge , nous ont amené à combiner ces deux traitements pour déterminer l'influence sur le rendement en huile essentielle.

Nous nous sommes placés dans les conditions opératoires optimales déjà citées :

-masse de la matière végétale  $M=200$  g

-Débit de distillat  $D = 15$  ml/mn

- $\varnothing$  des particules = 2 mm.

La durée d'extraction a été fixée à 180 minutes.

Le tableau V.18 présente l'évolution du rendement en huile essentielle en fonction de la durée d'extraction pour des graines macérées entières (1) et macérées broyées (2).

**Tableau V.18 : Influence du broyage de graines macérées sur le rendement en huile essentielle**

t	rendement (%)	
	(1)	(2)
15	0.0414	0.0515
30	0.1022	0.1020
60	0.1563	0.1827
90	0.1981	0.2482
120	0.2310	0.2812
180	0.2620	0.3111

L'allure des courbes de la figure V.18, montre une augmentation significative du rendement en huile essentielle avec l'échantillon macérées et broyées par rapport à celui obtenus avec des graines macérées entières. En effet la combinaison des deux traitements subit par la matière végétale influe positivement sur le

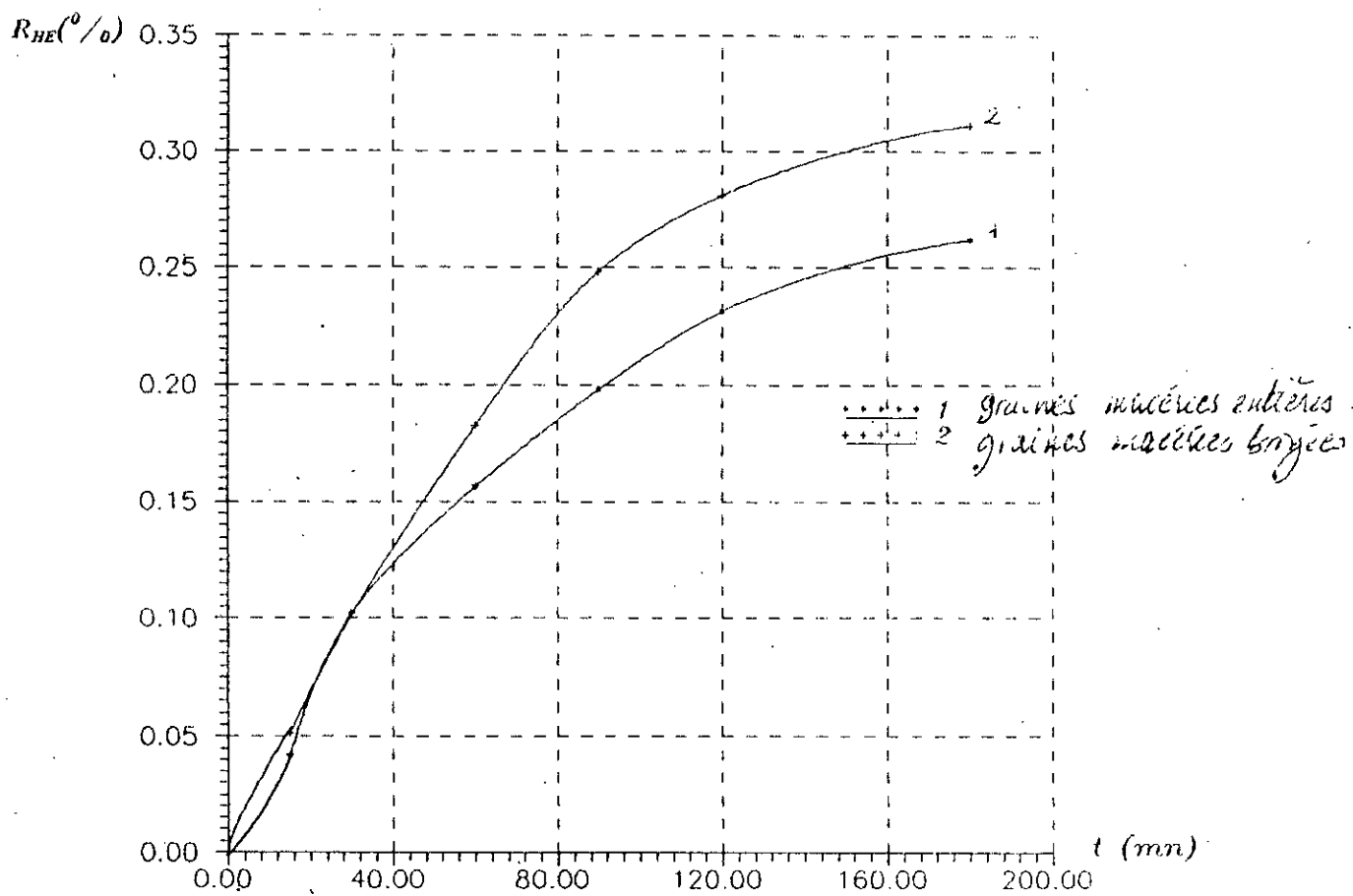


Fig 17 : Influence du broyage des graines macérées sur le rendement en huile essentielle

rendement du fait de la contribution individuelle de chaque phénomène , à savoir l'hydrolyse des hétérosides et la destruction des parois cellulaires. D'autre part le phénomène de colmatage dans ce cas de figure est moins prononcée que celui constaté sur des graines sèches et broyées.

La diminution de la quantité de vapeur condensées au niveau de la charge s'explique par un meilleur passage des aérosols de vapeur d'eau à travers le lit de particules. Donc une meilleure efficacité de l'alambic.

Enfin, nous pouvons affirmer que le broyage des graines macérées est un traitement efficace pour augmenter le rendement en huile essentielle et réduire la durée d'extraction.



## V.6 Quelques remarques relatives aux extractions menées lors de ce travail

**1 Débit :** L'installation avec laquelle nous avons menée l'entraînement à la vapeur des principes volatils de la coriandre ne permettait pas d'avoir des débits constants tous le long de la durée d'extraction, car le système de chauffage en continu sans régulation automatique ne permettait pas de travailler en isotherme, il était nécessaire de procéder à une régulation manuelle du débit, à l'aide des différentes vannes, vanne à la sortie de la chaudière, les vannes d'alimentation des alambics et le robinet d'alimentation du brûleur en gaz.

Le tableau V.19 et V.20 présentent les débits moyens et les écarts types calculés à partir des débits opératoires lors de l'optimisation classique, dans la mesure où on voulait garder des débits de 3 et 15 ml / mn.

Les résultats ainsi obtenus sont assez bon, si l'on prend en considération les conditions opératoires.

Donc un contrôle continu du débit, en mesurant le volume de distillat pour des intervalles de temps précis, s'avère nécessaire surtout au début de la manipulation.

Enfin, nous proposons de réinstaller le système de chauffage électrique avec régulation automatique, dans le but d'une meilleure précision, une économie de temps et d'énergie.

**Tableau V.19: Moyennes et écarts types des débits opératoires (3ml/mn)**

	1	2	3	4
15	5	2.33	3.2	3.33
30	3.33	2.66	3	2.66
60	4.06	3.2	2.66	2.83
90	3.33	3.33	3.16	3.16
120	3.16	3.16	3.16	3
180	2.66	3.93	3.33	3.2
240	2.5	4	2.66	3.2
300	2.93	3.25	2.5	3.93

n	8	8	8	8
X	3.37	3.15	2.95	3.10
$\sigma_{n-1}$	0.813	0.494	0.308	0.472

**Tableau V.20: Moyennes et écarts types des débits opératoires (15 ml/mn)**

	1	2	3	4
15	12.00	15.33	14.66	14.66
30	14.66	14.00	15.20	15.33
60	16.66	15.33	16.10	16.66
90	13.33	14.00	15.83	15.66
120	14.16	16.00	15.33	14.00
180	15.83	15.93	15.00	13.33
240	14.60	14.16	14.83	16.2
300	15.33	15.66	16.00	16.00

n	8	8	8	8
$\bar{X}$	14.572	15.05	15.36	15.23
$\sigma_{n-1}$	1.45	0.862	0.548	1.147

### 2-Durée d'extraction :

L'épuisement total des graines non traitées n'est pas atteint au bout de cinq heures d'extraction, alors que pour des graines broyées ou macérées, la durée d'extraction est inférieure à cette valeur, résultats en accord avec ceux obtenus lors de travaux antérieurs [12,27,28].

### 3-Solvant utilisé :

Les condensats, une fois l'extraction terminée, subissent une décantation afin de séparer l'huile essentielle surnageante de la phase aqueuse. A cet effet, l'addition d'un solvant organique favorisant cette opération est préconisée. Le solvant utilisé dans notre étude est l'éther diéthylique, vu son coût et sa toxicité relativement faible.

La phase organique ainsi recueillie est soumise, à son tour, à une évaporation à l'air ambiant, ce qui permet aussi la disparition de la troisième phase formée par une émulsion entre l'huile et l'eau, par ailleurs on pourrait utiliser le NaCl pour éliminer ces émulsions.



# **CHAPITRE VI**

---

**Etude analytique**



Afin d'évaluer la qualité et la composition de l'essence extraite lors de cette étude, quelques analyses ont été menées, tout d'abord en déterminant les propriétés organoleptiques puis en mesurant la densité et l'indice de réfraction, enfin en le soumettant d'une part à l'analyse chromatographique en phase gazeuse.

### VI.1 Evaluation de quelques propriétés organoleptiques et physiques :

Les premiers examens auxquels ont été soumises les huiles extraites, ont consisté tout d'abord à vérifier leur caractères organoleptiques (couleur, odeur) puis déterminer deux grandeurs physiques caractéristiques qui sont la densité et l'indice de réfraction.

1. **Aspect** : liquide mobile, limpide

2. **Couleur** : jaune pâle

3. **Odeur** : odeur épicée caractéristique de la coriandre

4. **Densité** : Nous avons utilisé un pycnomètre ayant un volume de 1 ml. Les pesées ont été effectuées à l'aide d'une balance analytique digitale du type SARTORIUS 1602 MP8-1 avec une précision de  $10^{-7}$  g. Par ailleurs les mesures de densité ont été effectuées à une température de  $20^{\circ}\text{C}$ .

$$d_{20}^{20} = 0.871$$

5. **Indice de réfraction** : Le réfractomètre utilisé est du type ATAGO muni d'un thermomètre digital de la même marque, la température indiquée été  $27.8^{\circ}\text{C}$

$$\eta_D^{27.8} = 1.4610$$

## VI.2 Analyse chromatographique en phase gazeuse de l'essence extraite :

La provenance et la qualité d'une huile essentielle sont souvent établies en utilisant en plus des méthodes basées sur la connaissance des propriétés physico-chimiques, des méthodes chromatographiques et plus particulièrement en phase gazeuse.

A cet effet une analyse a été faite par chromatographie en phase gazeuse. L'appareil est de marque Philips -Unicam PU 4500, équipé d'un détecteur intégrateur PU 4815 de la même marque.

Echantillon d'analyse :

Produit : huile essentielle de coriandre de Setif (Algerie).  
Solvant : hexane  
Volume injectée : 0.3  $\mu$ l  
moyen d'injection : Seringue

Appareillage :

Colonne  
Longueur 25 m  
Diamètre intérieur 0.53 mm

Remplissage

Support silice fondue  
Phase stationnaire BP5  
Taux d'impregnation 5%

Détecteur

Ionisation de flamme

Conditions opératoires

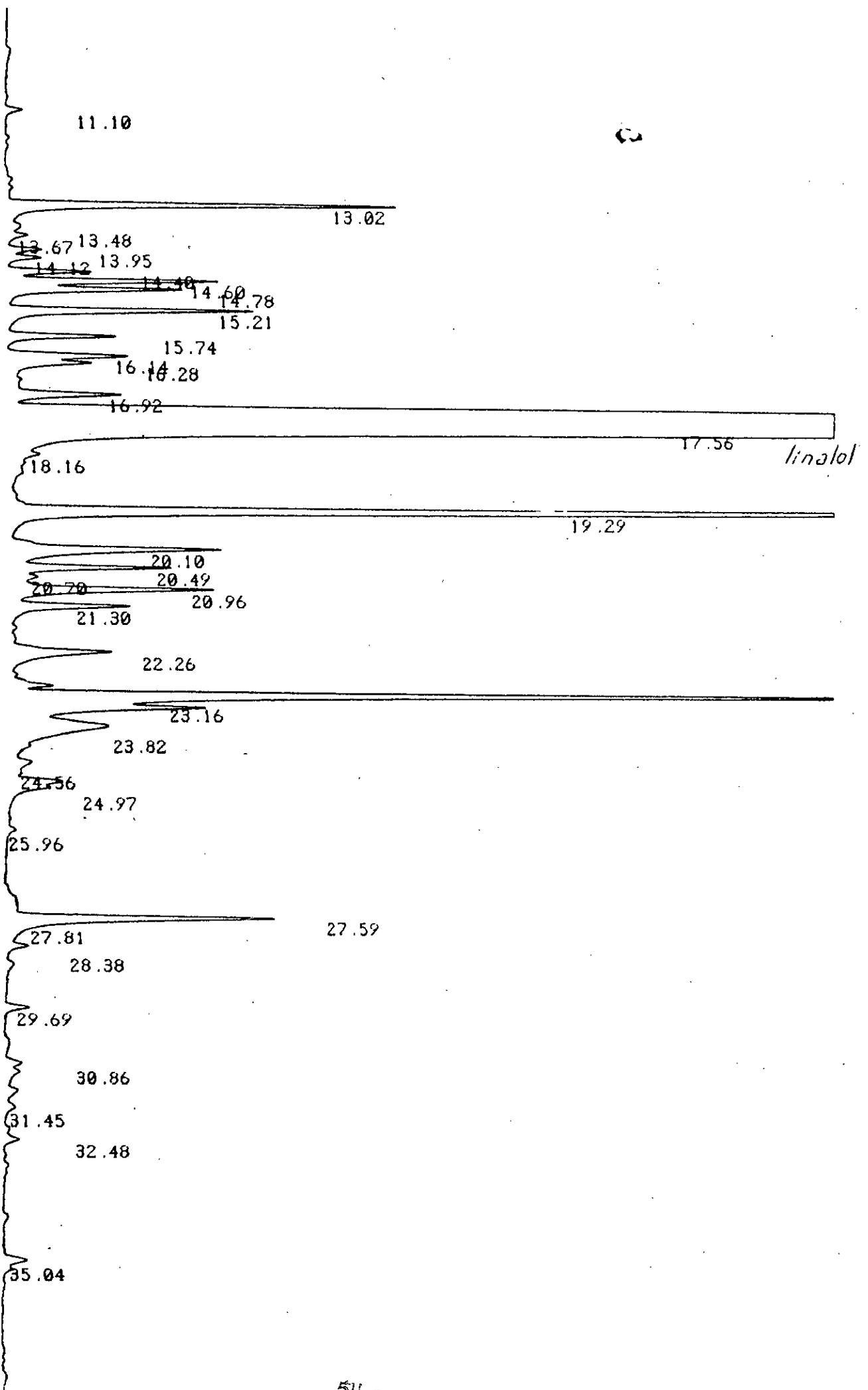
Températures

Injecteur 250°C  
Colonne 50 à 250 °C : programme linéaire 4°C/min  
Détecteur 300°C

Gaz vecteur

Nature Argon  
Débit 0.5 ml/min

Fig. 18 - Chromatogramme de l'huile essentielle  
des grains de coriandre.



Nous avons reporté la figure 18, le chromatogramme obtenu. L'examen de ce chromatogramme montre tout d'abord une bonne séparation des constituants majoritaires de cette huile. Par ailleurs, l'identification de ces constituants a été menée à l'aide de produits étalons et par la méthode des indices de rétentions.

L'analyse chromatographique résumée dans le tableau VI montre des résultats proches de ceux obtenus lors des travaux antérieurs à l'échelle laboratoire avec des graines de même origine[28].

**Tableau VI : Teneur relative des constituants de l'huile essentielle extraite par entraînement à la vapeur d'eau à partir des graines de coriandre**

composés	teneur relative
$\alpha$ -pinène	0.49
myrcène	0.10
p-cymène	0.31
$\gamma$ -terpinène	0.16
cinéol-1,8	0.12
linalol	82.9
camphre	2.09
terpinène 4,ol	0.41
$\alpha$ -terpineol	0.21
octanal	0.32
dodécane	0.20
acétate de géranyle	1.96
dodécanal	0.44
$\beta$ -caryophyllène	0.18
$\alpha$ -humulène	0.63
nerolidol	0.06
acide myristique	0.1





# **CONCLUSION**

---



L'étude entreprise dans ce présent travail est une contribution à la valorisation de nos espèces végétales. En effet , nous avons procédé , à l'extraction des huiles essentielles d'une de ces espèces: *Coriandrum sativum* L par entraînement à la vapeur d'eau.

L'étude des paramètres accessibles expérimentalement tels que masse admissible par l'alambic , degré de division de la charge , débit de vapeur d'eau, a permis l'optimisation des conditions opératoires de l'extracteur utilisé.

Tout d'abord , une optimisation classique nous a permis de déterminer une masse et un débit opératoires optimaux.

Par ailleurs , une planification des expériences nous a permis d'étudier l'évolution des effets individuels et conjugué de la masse et du débit sur le rendement , en utilisant le plan factoriel complet à deux niveaux  $2^k$ . De même manière nous avons étudié les mêmes effets sur la vitesse instantanée d'extraction. Cette étude nous a permis de conclure qu'une éventuelle programmation du débit pouvait être avantageuse , résultat vérifié lors d'une expérience.

En outre , concernant l'étude de l'effet de la macération dans l'eau froide des graines au préalable , nous avons constaté une augmentation significative du rendement et plus particulièrement pour une durée de 30 minutes de macération.

Le broyage des graines macérées s'est avéré le traitement préconisé pour remédier au problème de colmatage constaté sur des graines sèches broyées. Les rendements en huile essentielle obtenus sont assez bon , si l'on se réfère aux travaux antérieurs.

Enfin , nous avons essayé de déterminer quelques propriétés organoleptiques et physiques de cette huile ainsi que la composition en constituants majoritaires par une analyse en chromatographie en phase gazeuse. Cette dernière nous a permis de constater que l'huile essentielle obtenue présente une composition proche de celle déterminée lors de travaux antérieurs.

Les travaux ultérieurs , pourraient être menées sur l'étude du phénomène de diffusion intervenant lors du processus d'extraction et plus particulièrement dans le cas des graines macérées soit par analyse chromatographique ou microscopique .

En revanche , les études menées sur les graines de coriandre de la région de Sétif mériteraient d'être poursuivies et élargies à d'autres graines provenant d'autres régions d'Algerie ( exemple Sahara) afin d'identifier les huiles essentielles extraites et d'évaluer la quantité récupérable.

## Bibliographie:

- [1] P.DELAVEAU , *les épices* , ed Albin Michel, Paris,1987.
- [2]GILDEMEISTER et HOFFMANN, *leshuiles essentielles*, vol.3 , ed Schimmel et Cie, 2 édition, MILTITZ,1923
- [3] H. CHAUMETON *les plantes aromatiques : comment les reconnaitre* ed Solara, Paris,1981.
- [4] J.MAISTRE, *les plantes à épices* ,Ed maisonneuve et Larose,PARIS, 1987
- [5] P. FOURNIER , *plantes medecinales et veneneuses de FRANCE*, Vol 1 , ed Paul Lechevalier, 1947.
- [6]. E. PERROT , *La culture des plantes médicinales* , ed J.B. BAILLÈRE et Fils, 1947.
- [7] R. WAVERLYE.,*Herbes et épices*, Ed . Berger-Levrault,1982.
- [8] C. COLIN ,*Dictionnaire des herbes et des épices* , ed Denoël, 1963.
- [9] Y.R. NAVES et G.MAZUXER , *les parfums naturels , essences concrètes resinoïdes, huiles et pommades* , ed Gautier-villars, 1939.
- [10] R.M. GATTEFOSEE, *Formulaire du chimiste-parfumeur et du savonnier* ed Giradot et Cie, 4 éd , Paris, 1932.
- [11] F. VERNON, H.Richard, *quelques épices et aromates et leurs huile essentielles*, Vol 2 ,ARRIA , juillet 1976.
- [12] E. GUENTHER, *The ESSENTIALS oils*,VOL 4 , ed Krieger, 3 ed , 1982.
- [13] L.BEZGER BEAUQUENE. *Plantes dans la thérapietique moderne* , ed Maloine , 1980.



- [14] E. Charabot , J DUPONT , L.PILLET , les huiles essentielles et leurs principaux constituants , ed BERANGER , Paris, 1899.
- [15] N. N. GOKHALE et Y.MASADA , Int. Congr. Ess. Oils,7,1977.
- [16] E. GUENTHER , *the essentials oils*, vol 1 , ed Kriger, 3 ed ,1982.
- [17] GILDEMEISTER et HOFFMANN , *Les huiles essentielles* , Vol 1 , ed Schimmel et Cie , 2 ed , 1923.
- [18] T. BERNARD , F. PERINEAU, R. BRAVO , A.GASET, *Extraction des huiles essentielles* , Information chimie N°=298 Oct 1988.
- [19] P. CARRE, *Précis de technologie et chimie industrielle*, Vol 3, ed J. B. BAILLIERE et FILS , PARIS,1939.
- [20] Grosser, *j. prakt. chem.* 50 . 1881
- [21] WALBAUM, MULLER , *J. Chem. SOC.* 46 . 1910
- [22] J. STENLAKE, W. WILLIAMS , *The spectrophotometric determination of -unsaturated aldehydes and ketones with Gerard T reagent Part 1.* Ess. Oils. journal of pharmacy and pharmacology,9,1975.
- [23] M.PERTSEV, G. PIVNENKO- *Chromatographie des huiles essentielles utilisées en pharmacie III microanalyse des essences de coriandre* , Farmacetychnyj. Zhurnal, 17, n°=2,1962.
- [24] N. DUBLYANSKAYA ; *Huile grasse des huiles essentielles des plantes cultivées.*Maslobójna-Zhirovja Promyshlennost, 30,n°=5,1964.
- [25] E. SCHARTZ, S. M . J. S. QADRY, *Planta . Med* 14,326,1966
- [26] J. KARLSEN, B. CHINGOVA , R. ZWETKOV, A. BERHEIN, *Studies of the essential oil of the fruit of coriandr sativum L. by means gaz liquid chromatography* , Pharm, Weekblad, 106 , 1971
- [27] H. MAMMOUNI, *Application de différents procédés d'extraction aux graines de coriandre* , Projet de fin d'études , ENP, Alger, juillet 1994.
- [28] N. BEDDEK, *Extraction des huiles essentielles des graines de coriandre (Coriandrum sativum L.)* ,Thèse de magister , ENP , Alger , janvier 1995.

- [29] F.PERINEAU, L. GANOU, J.M.BESSIERE, *Hydrodistillation du fruit de coriandre (Coriandrum sativum L.) Parfums, cosmétiques, arômes*, N°=98, Avril-Mai 1991.
- [30] B.M. LAWRENCE , *Progress in essential oils, Perfumer and Flavorist*, vol 13 jun-juil, 1988.
- [31] K FORMCEK , K. H. KUBECZA, *essential oils analysis by capillary chromatography and carbon 13 NMR spectroscopy* ed J.Willey & Sons, New York , 1982
- [32] LAMPASKY et I. KLIMES, *Heterocyclique trace comosants in the essential oil of coriandr*, *Perfumer and Havorist*, Vol 13, Oct-Nov,1988.
- [33] T.L. POTTER et I.S. FAGERSON, *Composition of Coriandr leat volatiles*, American Chemical Society, *Journal of agricultural food chemistry* ,38,1990.
- [34] Norme AFNOR , *huile essentielle, Coriandrum Sativum I.* , NF.T75-205 Août 1991.
- [35] P. DUGEA et M. GIRAULT, *Analyse de la variance et plan d'expéiece* , ed Willey interscience,1972.
- [36]- J. GOUPY , *Plans d'expériences* , P-230, Ed technique de l'ingénieur ,2-1992.