

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

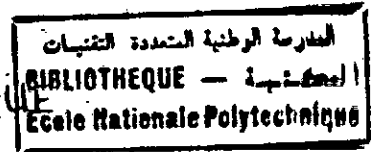
6/94

وزارة التربية الوطنية

MINISTRE DE L'EDUCATION NATIONALE

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

DEPARTEMENT GENIE CHIMIQUE



PROJET DE FIN D'ETUDES

SUJET

EXTRACTION DE L'ESSENCE DE NIGELLE
PAR SOLVANTS VOLATILS ET PAR
HYDRODISTILLATION

Proposé par :

Mr. E.H. BENYOUSSEF

Etudié par :

Mr. Mohamed BENEKKEN

Dirigé par :

Mr. E.H. BENYOUSSEF

PROMOTION

JUILLET : 1994

République Algérienne démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur

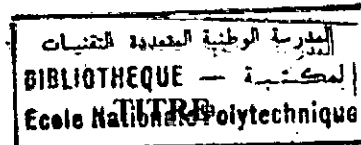
Ecole Nationale Polytechnique

Département de Génie Chimique

PROJET DE FIN D'ETUDES

présentée pour l'obtention du diplôme

d'Ingénieur d'état en Génie Chimique



**EXTRACTION DE L'ESSENCE DE NIGELLE PAR SOLVANTS
VOLATILS ET PAR HYDRODISTILLATION**

Proposée et dirigée par: E.H. BENYOUSSEF

Présentée par: BENDEKKEN MOHAMED

PROMOTION: 93/94.

DEDICACES

A mes parents

A mes grands parents

A la mémoire de mon très cher ami Mustapha LAHLALI

A mes freres et sœurs

A toute la famille

A tous mes amis

REMERCIEMENTS

Je tiens à rendre un hommage respectueux à Monsieur E. H BENYOUSSEF pour le suivi et les encouragements qu'il m'a apporté pour la réalisation de ce travail.

J'exprime également mes remerciements au président du jury : Monsieur R. BELABBES professeur à L'ENP.
ainsi qu'aux membres du jury.

- Madame CHARCHARI Docteur d'état à L'ENP

- Madame DERRICHE Charge de cours à L'ENP

- M^{lle} DAHOUNE maître assistante à L'ENP

d'avoir accepté d'examiner et d'évaluer ce travail.

Comme je tiens à remercier tous ceux qui m'ont aidé à la réalisation de ce travail, je cite en particulier Monsieur K. DRIHEM chargé de cours à L'ENS et M^{lle} F. ANAD et Mr S BOUROUSSE du CRAAG pour la présentation de ce travail.

يتناول بحثنا هذا الإستخلاص الزيتون الطيارة للحبة السوداء بطريقتين :
أولاً: الإستخلاص بالمذيبات الطيارة ودراسة أثري تغيير المذيب والطحن على
المردود

ثانياً: الإستخلاص بالتقطير المائي ودراسة أثري الطحن وتيار البخار على المرود
محتوي البحث أيضاً على دراسة سرعة الإستخلاص بالتقطير المائي بإستعمال
مخطط تجارب لمعرفة التأثير الفردي لكل من تيار البخار والطحن وتأثيرهما المزدوج على
المردود وعلى السرعة اللحظية .

Abstract:

This work contains the study of extraction of the essential oil of
Nigella seeds .

1. by volatile solvents to see the effects of solvents and grinding on
the efficiency .
2. by water distillation to see the effects of the grinding and distillat
flow on the efficiency .

It also contains a kinetic study of water distillation by experience
factoriel plan to see the evolution of the individuel effects of grinding
and the distillat flow and their combined effect on the efficiency and
the instantaneous velocity .

Resumé :

Le present travail comporte une etude de l'extraction de l'essence des graines
de Nigelle 1. par solvants volatils pour voir l'effet du solvant et du broyage sur
le rendement en essence

2. par hydrodistillation pour voir l'effet du debit de vapeur et du
broyage sur le rendement . Aussi nous avons fait une étude cinétique de l'hydro-
-distillation par planification factorielle des experiences pour voir l'évolution des effets indivi-
-duels et conjugués du broyage et du debit de vapeur sur le rendement et sur la vitesse

LISTE DES TABLEAUX

- TABLEAU 1 : rendement en concrète des graines de Nigelle par différent solvants
- TABLEAU 2 : rendement en concrète des graines de Nigelle entières et broyées par différents solvants.
- TABLEAU 3 : Influence de la fermentation sur le rendement.
- TABLEAU 4 : Influence du broyage sur le rendement.
- TABLEAU 5 : Niveaux inférieurs et supérieurs des paramètres étudiés
- TABLEAU 6 : conditions opératoires de la planification des expériences
- TABLEAU 7 : Evolution des rendements en fonction du temps du plan d'expérience 2^2
- TABLEAU 8 : Variation des effets individuels et conjugués sur le rendement
- TABLEAU 9 : Variation des effets individuels et conjugués sur le rendement.
- TABLEAU 10 : Valeurs des pentes du modèle $R(t) = \ln(1 - R(t)/R_{\infty})$

LISTE DES FIGURES

- FIGURE 1 : Aspect general de la plante de Nigelle .
FIGURE 2 : Structure microscopique de la graine de Nigelle .
FIGURE 3 : montage de l'extracteur soxhlet .
FIGURE 4 : montage de la distillation atmosferique .

FIGURE 5 : montage de l'hydrodistillation .
FIGURE 6 : Evolution du rendement R_E en fonction du temps .
FIGURE 7 : Evolution des effets sur le rendement en fonction du temps .

FIGURE 8 : Variation de la vitesse instantanee V_E en fonction du temps .
FIGURE 9 : Evolution des effets sur la vitesse V_E en fonction du temps .
FIGURE 10 : Application du modèle du premier ordre à la cinétique
d'hydrodistillation .
FIGURE 11 : Appareil de Dean & Stark .

SOMMAIRE

	Page
INTRODUCTION	1
Chapitre I : MATIERE VEGETALE	2
I-1- Origine et repartition géographique	2
I-2- Caractères botanique	2
I-3- Description de la graine	2
I-4- Structure microscopique	4
I-5- Composition chimique de l'essence de Nigelle	4
I-6- Utilisation	5
Chapitre II : GENERALITES SUR LES HUILES ESSENTIELLES	6
II-1- Introduction et caractéristiques	6
II-2- Matériel végétal	6
II-3- Formation des huiles essentielles	7
II-4- Composition chimique	7
II-6- Variabilité des huiles essentielles	8
Chapitre III : PROCÉDES D'EXTRACTION	9
III-1- Introduction	9
III-2- Théorie et éléments de la distillation	9
III-3- Modes de distillation	12
III-3-1- Hydrodistillation	12
III-3-2- Distillation mixte	12
III-3-3- Entraînement à la vapeur d'eau	12
III-4- Autres procédés d'extraction	13
III-4-1- Expression à froid	13
III-4-2- Enfleurage	13
III-4-3- Macération et digestion	13
III-4-4- Extraction par solvants volatils	13
III-4-5- Extraction par CO ₂ liquide ou supercritique	14

Chapitre IV : PLANIFICATION FACTORIELLE DES EXPERIENCES	15
IV-1- Introduction	15
IV-1-1- Méthode classique	15
IV-1-2- Planification des expériences	15
IV-2- Notions sur la planification des expériences	16
IV-2-1- Plan d'expérience	16
IV-2-2- Plan factoriel	17
IV-2-3- Effets principaux et interaction de deux paramètres	18

PARTIE EXPERIMENTALE

Chapitre V : EXTRACTION PAR SOLVANT	20
V-1 Influence de la nature du solvant	20
V-1. A. Appareillage	20
V-1. B. Mode opératoire	22
V-1. C. Conditions Opératoires	22
V-1. D. Résultats et discussion	24
V.2 Influence du broyage	24
Chapitre VI : HYDRODISTILLATION	25
VI.1 Influence de la fermentation	25
VI-1.a. Mode opératoire	25
VI-1.b. Résultats et discussion	27
VI-2. Influence du broyage	27
VI-2.a. Mode opératoire	27
VI-2.b. Résultats et discussion	27
Chapitre VII : ETUDE CINETIQUE DE L'HYDRODISTILLATION PAR PLANIFICATION FACTORIELLE DES EXPERIENCES	28
VII-1. Mode opératoire	29
VII-2. Résultats	30
VII-3. Interpretation	30
VII-4. Application du modèle $R(t) = \ln(1 - R(t)/R_{\infty})$	35
Conclusion	37
ANNEXE	38
BIBLIOGRAPHIE	40

INTRODUCTION

Depuis la haute antiquité, les parfums et les arômes furent parmi les premiers signes de reconnaissance qui marquèrent la vie des hommes. Ils furent étroitement associés à la vie spirituelle de l'homme (Egypte, Inde), ainsi qu'à l'histoire de la médecine (Grèce, Empire Romain, Empire Musulman). Au début du XVI^{ème} siècle Paracelse, médecin suisse considéré comme le père de la pharmacochimie étudia l'extraction de "l'âme" des végétaux sous formes de "quintessence" (où cinquième essence) à laquelle on donnera le nom "d'esprit", puis "d'essence" et finalement "d'huile essentielle" (1).

De nos jours, une activité économique considérable se développe tant pour les arômes artificiels que naturels, et la recherche d'une production élevée et variée pose le problème de valorisation de nouvelles espèces végétales et de mise en oeuvre de procédés d'extractions plus efficaces (2)30 .

C'est dans ce but que nous avons entrepris l'étude de l'extraction par différents procédés de la *Nigella Sativa* "Sanoudj".

L'intérêt porté à cette plante est du à sa culture relativement abondante et à son large utilisation dans notre pays pour aromatiser certain plats et en médecine traditionnelle.

Lors de cette étude, nous allons essayer de voir le solvant donnant le meilleur rendement soit sur les graines entières ou broyées.

Nous allons aussi voir l'influence de la fermentation et du broyage sur le rendement en huile essentielle lors de l'hydrodistillation.

Enfin nous avons envisagé une planification factorielle des expériences pour voir l'évolution des effets individuels et conjugué du débit et du broyage sur le rendement R_E et la vitesse instantanée V_E au cours de l'hydrodistillation.

CHAPITRE : 1

Chapitre. I

Matière végétale

I.1 Origine et répartition géographique

La Nigelle (*Nigella Sativa*) de la famille des Renonculacées aussi appelée quatre-épices, Nigelle cultivée, cumin noir doit à ses graines son nom générique dérivé du mot latin Niger désignant cette couleur. [7]

Il en existe d'autres espèces de Nigelle; la *Nigella Damascena* qui est cultivée comme plante ornementale et la *Nigella Arvensis*. [2,10]

Le bassin oriental de la Méditerranée est l'endroit originaire de la Nigelle et sa culture se répartit au sud de l'Europe, l'ouest de l'Asie, l'Inde et l'Afrique du Nord et son commerce est abondant en ex-Union Soviétique et dans les Balkans. [2,5]

Les anciens égyptiens l'ont connu et l'ont mentionné dans leur papyrus pour la guérison des maladies de poitrine et de la toux. [5]

I.2 Caractère botanique

C'est une plante, herbacée, annuelle de 30 à 60 cm de haut possédant une tige dressée, ramifiée, terminée par des fleurs assez petites et solidaires aux pétales d'un blanc-bleuté. Les feuilles pennées, découpées sont alternées sur la tige. Le fruit est une capsule verte d'abord puis brune à la maturité, renfermant des graines noires parfumées et à saveur piquante, la floraison a lieu en juin juillet. La récolte des graines se fait de juillet à septembre. [2,9,10]

I.3 Description de la graine

Les graines de Nigelle ne mesurent guère plus de 1.5 à 3 mm de longueur. Elles sont triquètres, à bords saillants, à faces sensiblement planes recouvertes par un spermoderme noir, mât, marqué de rides transversales et finement chagriné à la base. Quand on les écrase, ces graines ont une odeur aromatique très forte. [3,4,6,8]

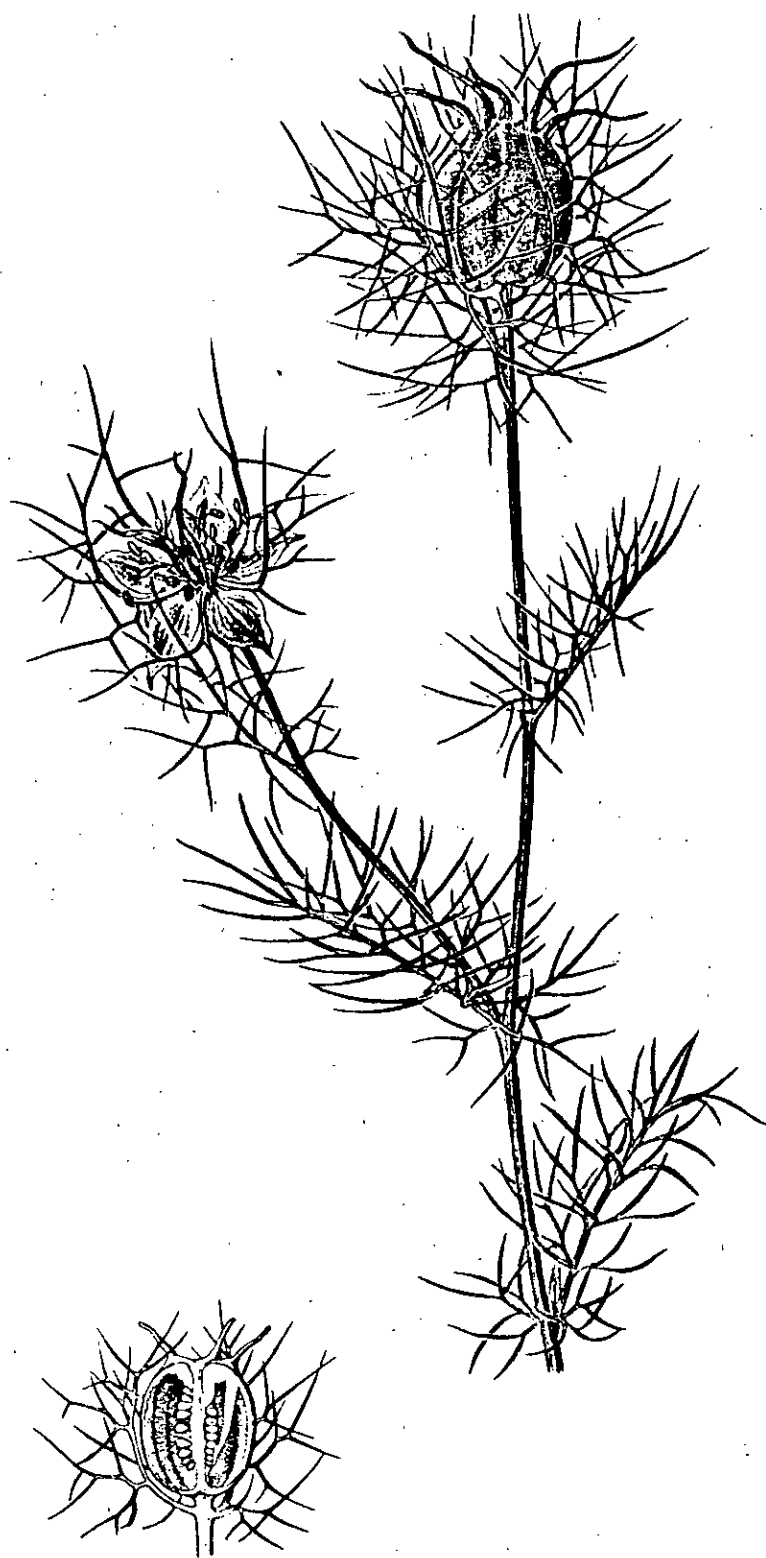


Figure 1: Aspect general de la plante de Nigelle

I.4 Structure microscopique

Le spermodermes est formé de trois tuniques, l'une externe (te) formée d'une couche de cellules coniques, papilliformes irrégulières dans leurs dimensions, très allongées en certains points. Ces cellules ont des parois brunes très épaisses, une tunique moyenne (tm) composée de quelques rangées de cellules aplaties et allongées tangentiellement et une enveloppe interne (ti) formée d'une rangée de petites cellules cubiques. L'albumen (em) est un tissu de cellules polygonales renfermant de l'aleurone et des globules d'huile fixe (4).

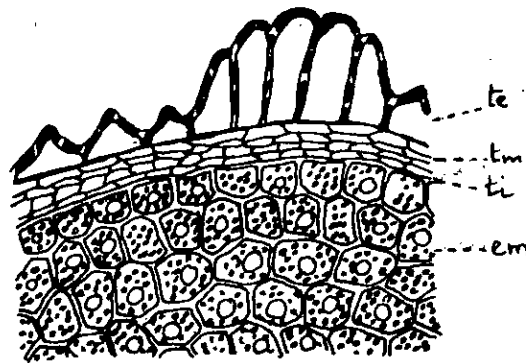


figure 2: Structure microscopique de la graine de Nigelle

I.5 Composition chimique de l'essence de Nigelle

Les graines contiennent de 30 à 35% d'une huile fluide rougeâtre à saveur amère et à odeur aromatique particulière qui se solidifie en dessous de 0°C.

Les caractéristiques de cette huile sont les suivantes :

- poids spécifique à 15°C : 0.925
- Indice de réfraction à 40°C : 1.4649
- Indice de saponification : 195 à 202
- Indice d'iode : 107 à 117
- Indice d'acétyle : 23 à 25

Les acides gras totaux ont un titre de 16-19% une analyse de l'huile en a donnée les proportions suivantes

- Acide stéarique 2.4%
- Acide palmitique 6.3%
- Acide myristique 0.3%
- Acide oléique 44.5%
- Acide linoléique 36%

La proportion insaponifiable est de l'ordre de 0.5%. Elles contiennent aussi un saponoside, la melanthine, un principe amer: la Nigelline, une huile essentielle (entre 0.8 et 1.4%) qui contient la Nigellone (entre 2 et 5%) ,du Thymolydroquinone (0.5%) et du tanin. [1,2,5]

1.6 Utilisation

La graine est utilisée comme condiment depuis l'antiquité [2]. L'herboristerie la connaît comme carminatif, diurétique, emménagogue, vermifuge et anthelminthiques. La Nigellone est active contre le bronchospasme provoqué par l'histamine.

Elle est aussi utilisée en cas de bronchite [1,2] et d'asthme. En héméopathie, on prépare une teinture avec les graines mûres [1] et c'est surtout sur le plan alimentaire que son emploi est le plus large où elle est utilisée en guise d'arôme.

Des travaux récents ont révélé l'activité hypotensive et antispasmodique de certains constituants de la graine de Nigelle. [12,13]

CHAPITRE : 2

CHAPITRE II

GENERALITES SUR LES HUILES ESSENTIELLES

II.1- INTRODUCTION

Les huiles essentielles sont ordinairement liquides à la température ordinaires. Celles fraîchement extraites, ont généralement une odeur ^{plus} moins forte que celles qui ont subi, pendant quelques temps, l'action de l'oxygène de l'air. Donc il serait permis de conclure que l'oxydation de l'essence ou d'un de ses constituants influe sur la formation ou du moins sur l'intensité d'émanation du parfum. Cependant, lorsque l'oxydation atteint un certain degré, le parfum s'altère et perd sa finesse.

Les huiles essentielles sont généralement volatiles, incolores ou jaunâtres. Elles sont solubles dans la plupart des solvants organiques, tel que l'éther éthylique, le chloroforme, le sulfure de carbone, l'éther de pétrole, l'hexane, etc....

La solubilité dans l'alcool fournit pour certaines essences un critère de pureté. La plupart des essences sont plus légères que l'eau, avec une densité qui se situe entre 0.85 et 0.98.

Les huiles essentielles ne sont pas miscibles à l'eau et ne s'y dissolvent, qu'en très faible proportion. Cependant malgré cette faible solubilité, elles communiquent à l'eau et après un contact plus ou moins prolongé, une odeur plus ou moins intense.

On différencie généralement entre les huiles essentielles, autant par leurs compositions, que par leurs propriétés physico-chimiques (19).

II.2- MATERIEL VEGETAL

Les recherches scientifiques témoignent des modifications de la teneur en divers constituants chimiques d'une essence suivant les étapes successives du développement de la plante. Ainsi au premier stade de végétation, la plante est riche en composés alcooliques. Ceux-ci s'estérifient au dépend des acides formés pendant la floraison à mesure que celle ci progresse.

Ces modifications dans la constitution de l'huile essentielle est apportée par différents facteurs, qu'ils soient écologiques, géographiques, concernent l'âge du végétal, la période de récolte ou autres.

II.3- FORMATION DES HUILES ESSENTIELLES DANS LES PLANTES

La plupart des plantes et des épices odorants doivent leur parfum à un mélange de combinaison différentes, rarement à un corps unique. Dans certains d'entre eux, l'huile essentielle contient parfois un élément prédominant qui ôte toute importance aux autres (15)

Presque toutes les familles des plantes participent à la production des huiles essentielles et bien que toutes les parties de la plante puissent produire des essences, celles-ci s'accumulent de préférence dans un organe déterminé (fleurs, fruits, feuilles....)

II.4- COMPOSITION CHIMIQUE

Les huiles essentielles sont des liquides aromatiques produits et emmagasinés dans les différents organes de certaines plantes qui sont des mélanges ordinairement complexes de composés organiques. leurs constituants majoritaires sont généralement les terpènes, diterpènes, sesquiterpènes et les dérivés oxygénés (alcools, aldéhydes, acides, cétones, ...) de ces composés (16).

Au cours du dernier siècle, des centaines de composés organiques ont été identifiés parmi les constituants naturels des huiles essentielles. Quelques uns de ces composés sont extrêmement rares se trouvant seulement dans une huile, d'autres sont communs et ont été observés dans un nombre important d'huiles.

Bien que la quantité totale des huiles essentielles produites par les industries chimiques standards est faible, elles constituent les matières les plus importantes pour les industries du parfum.

Au sein d'une huile essentielle, on trouve un grand nombre de molécules en proportion variable. Ces molécules sont généralement: (17) .

II.4.1 Les monoterpènes: (composés en C_{10})

Ce sont des hydrocarbures cycliques et volatils de formule brute $C_{10}H_{16}$, se trouvant dans les essences naturelles. Ils sont en grande partie responsables de l'odeur des plantes ainsi que des fleurs et fruits et quelques uns sont employés en parfumerie.

A ces terpènes se rattachent leurs produits d'hydrogénation $C_{10}H_{18}$ et $C_{10}H_{20}$ ainsi qu'un certain nombre de produits naturelles à fonction chimique spéciale, notamment les alcools, les aldéhydes et les cétones. On rattache encore à cette série isoprénique, des composants acycliques.

II.4.2- Les sesquiterpènes (composés en C₁₅)

Ce sont des composés de formule brute C₁₅H₂₂, C₁₅H₂₄ ou C₁₅H₂₆ constitués de trois éléments isopréniques, disposés de façon à donner des structures aliphatiques et mono ou polycycliques. Ils se trouvent dans divers essences naturelles.

II.4.3- Les diterpènes (composés en C₂₀):

Ils sont généralement composés de quatre éléments isopréniques cycliques et acycliques.

II.4.4- Les triterpènes (composés en C₃₀)

Ils comprennent six éléments isopréniques aliphatiques ou polycycliques.

II.4.5- Les tetraterpènes (composés en C₄₀)

Les tetraprènes les plus connus sont les hydrocarbures colorés et importants du point de vue biochimique (carotène). Ils sont très répandus dans les légumes et les graisses animales.

Ces composés se caractérisent par une longue chaîne à double liaisons conjuguées responsables de leur couleur (13).

II.5- VARIABILITE DES HUILES ESSENTIELLES

Une huile essentielle est très fluctuante dans sa composition, sur laquelle intervient un grand nombre de paramètres qu'ils soient d'ordre naturel, d'origine intrinsèque (génétique, localisation, maturité), d'origine extrinsèque (sol, climat...), ou d'ordre technologique; c'est à dire liés aux modes d'exploitation du matériel végétal. (15)

CHAPITRE : 3

Chapitre III.

PROCEDES D'EXTRACTION

III.1- La distillation. théorie et éléments

III.1.1- Introduction

La distillation peut être définie comme un procédé de séparation des composés d'un mélange de deux ou plusieurs constituants liquides basé sur la différence virtuelle de leurs pressions de vapeur. (23)

Dans le cas de la distillation des huiles essentielles, celle-ci est habituellement menée de deux manières: "récupération et fractionnement". La première opération a trait à la séparation de l'huile dans sa globalité à partir de la matière végétale dans laquelle elle se trouve; tandis que la deuxième trouve son application dans le cas de séparation d'un composé à partir du mélange constituant l'huile (24).

pour élaborer une théorie de distillation conformément à la pratique on doit tenir compte des facteurs incluant le temps ainsi que des taux de diffusion dans la matière. Aussi dans une première partie nous présenterons une théorie simplifiée utilisant l'équilibre Liquide-Vapeur, et dans la seconde nous introduirons les modifications qui prennent en compte les considérations pratiques et techniques et quelques aspects de génie chimique.

III.1.2- Théorie de la distillation

Bien que les huiles essentielles sont des mélanges fort complexes de plusieurs constituants, il n'est souvent pas nécessaire de les traiter comme des systèmes multicomposés.

En effet, la distillation des huiles essentielles s'effectue habituellement à petite échelle garantit l'application des méthodes continues, et de ce fait, la théorie des mélanges binaires semble convenir pour en expliquer le phénomène.

Selon le critère de miscibilité, deux types de distillation peuvent être envisagés. (25)

1- Distillation de mélange de liquides miscibles, formant ainsi deux phases. Cette distillation s'applique à une rectification ou fractionnement des huiles essentielles, et mieux encore pour extraire les huiles volatiles de plantes aromatiques par entraînement à la vapeur.

2- Distillation de mélanges de liquides miscibles, en toute proportion en formant alors une seule phase liquide.

La différence entre ces deux types de distillation peut s'expliquer en considérant le phénomène lors de l'ébullition.

Rappelons que le point d'ébullition peut être défini comme, la température à laquelle, sous pression atmosphérique ou toute autre pression de vapeur spécifique, un liquide est transformé en vapeur, soit encore la température à laquelle la pression de vapeur du liquide devient égale à celle de l'extérieur. (26)

Ainsi, le nombre total de molécules présent dans l'espace - vapeur au dessus du mélange liquide, à deux phases, à une température donnée, sera égale à la somme du nombre de molécules de ~~chaque~~ des constituants pris séparément. Il résulte que la composition de la vapeur à une température donnée, ne dépendra pas de la composition du liquide mais uniquement des pressions de vapeur de chacun des constituants de ce mélange.

Dans le cas des mélanges de liquides complètement miscibles formant une seule phase liquide et homogène, les constituants obéissent à la loi de Raoult.

$$P_i = P_i^\circ X_i \quad (1)$$

où:

P_i : Pression partielle du constituant i

P_i° : Pression du constituant i pur

X_i : fraction molaire du constituant i en phase liquide

En d'autres termes, la pression partielle de chaque constituant de la solution est proportionnelle à sa fraction molaire en phase liquide.

D'après la loi de Dalton, la pression de vapeur de la solution est la somme des pressions partielles de tous les constituants.

$$P = \sum_{i=1}^n P_i \quad (2)$$

Ainsi, le nombre de molécules de tout constituant d'un mélange homogène présent dans la phase vapeur sera nécessairement plus petit que celui présent dans le même espace vapeur si le liquide pur est vaporisé.

Dans le cas des mélanges hétérogènes tels que les huiles essentielles en l'assimilant à un mélange binaire de liquides non miscibles, l'application de la règle de phase conduit à un système univariant. Il s'ensuit que si l'on fixe la pression, le système devenant invariant bouillira à une température constante et donnera une vapeur de composition fixe, pour autant que le système soit bien agité et que les deux phases liquides soient présentes.

En effet, si chaque constituant peut se vaporiser sans contrainte, la pression de vapeur du système sera égale à la somme des pressions de vapeurs des constituants purs, ainsi la température d'ébullition du mélange sera inférieure à celle de chaque liquide seul.

$$P = \sum_{i=1}^n P_i^{\circ} \quad (3)$$

En distillant un composé liquide insoluble dans l'eau et de point d'ébullition inférieur à celui de l'eau, le volume d'eau recueilli en distillat est inférieur à celui de composé insoluble. Par contre en hydrodistillant un composé liquide insoluble et de point d'ébullition élevé, la phase majoritaire en distillat est l'eau. Ainsi lors de la distillation d'un composé insoluble dans l'eau, la présence de celui-ci en distillat varie inversement avec son point d'ébullition, cependant cette variation n'est pas uniforme d'une substance à une autre.

En effet, plusieurs substances de points d'ébullition très voisins apparaîtront dans le distillat avec des proportions différentes, que d'autres substances présentant des différences marquées de points d'ébullition peuvent s'observer dans le distillat avec des proportions quasi identiques. Ces anomalies sont principalement dues à la diversité des structures chimiques et de la réactivité des constituants de l'huile essentielle.

La règle d'hydrodistillation des substances volatiles insolubles telles que les huiles essentielles, peut être exprimée par la relation suivante.

$$m_W / m_H = (P^{\circ}_W / P^{\circ}_H) \cdot (M_W / M_H) \quad (4)$$

où :

m_W : masse d'eau.

m_H : masse d'huile.

P°_W : pression de vapeur de l'eau pure.

P°_H : pression de vapeur de l'huile pure.

M_W : masse molaire de l'eau.

M_H : masse molaire de l'huile.

La masse (m) de chaque constituant dans le distillat dépend de sa masse molaire (M) et de sa tension de vapeur (P°). Si on considère que l'eau et l'huile ne sont pas miscibles, le nombre de moles (n), selon la loi des gaz parfaits, de chaque constituant en phase vapeur est proportionnel à sa tension de vapeur.

Par ailleurs, ($P^{\circ}_W + P_H$) est égale à la pression extérieure, ainsi il sera possible lors de la distillation de modifier partiellement le rapport eau/huile dans le condensat en changeant la pression de travail, la température de l'appareil s'ajuste automatiquement à celle d'ébullition du mélange.

III-1.3 Méthodes de distillation

Il est communément admis que la vapeur pénètre les tissus de la matière végétale et vaporise toutes les substances volatiles.

Dans l'industrie des huiles essentielles on distingue trois types de distillation

- Hydrodistillation ^{ou} distillation à l'eau.
- Distillation mixte.
- Distillation à la vapeur d'eau.

III-1.3.1 Hydrodistillation

Le principe de ce mode consiste à mettre la matière végétale en contact direct avec l'eau bouillante, elle peut soit flotter, soit être complètement immergée selon sa densité ou sa quantité. L'avantage principal de cette méthode réside dans le contact direct entre la plante et l'eau bouillante.

III-1.3.2 Distillation mixte.

Dans ce cas de distillation, la matière végétale n'est pas en contact direct avec l'eau de l'appareil distillatoire, mais plutôt avec de la vapeur.

Cette dernière produite par une génératrice de vapeur externe traverse l'eau afin de la chauffer et arrive au niveau de la charge.

Ceci peut présenter un avantage, notamment pour des huiles possédant une certaine fragilité thermique de ses constituants, puisque la vapeur arrivant au contact de la matière est totalement saturée donc humide et surcroît n'est jamais surchauffée.

III-1.3.3 Entraînement à la vapeur d'eau.

Entraînement à la vapeur d'eau est un procédé industriel d'extraction de l'huile essentielle à partir de la matière végétale.

Ce procédé d'entraînement des matières odorantes des plantes est très ancien, il s'est répondu progressivement au cours des siècles dans différents pays. De la vapeur fraîche, saturée ou surchauffée est fréquemment à des pressions plus hautes que l'atmosphère, est introduite en dessous de la charge végétale placée sur un plateau perforé, une partie de l'huile essentielle est présente à la surface de la plante est immédiatement extraite par la vapeur, le reste arrive à la surface une fois que la vapeur diffuse à travers la couche du tissu de la plante (23)

Ce procédé est régi essentiellement par le phénomène de diffusion ainsi que le phénomène d'osmose. Les produits ainsi extraits sont séparés par simple décantation

III-2 Autres procédés d'extraction

III-2.1 L'expression à froid

Cette technique concerne uniquement les huiles essentielles d'agrumes (hespérides) tels que, citron, orange douce et amère, mandarine. En effet, les huiles essentielles facilement peroxydables, ne supportent pas une préparation à chaud et sont altérables par la vapeur d'eau. Elles sont donc extraites du péricarpe frais des agrumes par différents modes d'expressions. Dans l'industrie, on procède par scarifications mécaniques et entraînement de l'huile essentielle par courant d'eau. L'essence est ensuite séparée par décantation. (28)

III-2.2 L'enfleurage

C'est la mise en contact plus ou moins prolongé à froid d'un solide dans un solvant en vue d'extraire les parties solubles.

L'extraction à froid par enfleurage est celle qui conduit aux matières odorantes avec certaines fleurs comme le jasmin, les tubéreuses dont le parfum continue de se produire après la recette (24)

les fleurs sont délicatement déposées une à une sur des plaques de verre recouvertes de matière grasse. En fin de l'opération on obtient une grasse saturée en huile essentielle appelée pommade.

III-2.3 Macération ou digestion

Il s'agit d'un enfleurage à chaud.

Le principe consiste à introduire les fleurs à épuiser dans la matière grasse fondue vers 50 à 70°, en remuant constamment, on laisse en contact 12 à 48 heures et on renouvelle la charge de fleur 10 à 15 fois jusqu'à ce que la pommade ait la richesse désirée. Finalement la pommade est décantée de l'eau de végétation apportée par les fleurs; les fleurs épuisées sont passées à la presse ou traitées par solvant volatils (25).

III-2.4 Extraction par solvant volatils

Les huiles essentielles ont la propriété d'être solubles dans des solvants organiques, particulièrement les hydrocarbures aliphatiques (pentane, hexane) ou aromatique. On opère le plus souvent à température ambiante, ce qui ne provoque aucune modification ou altération dans les structures moléculaires composant les produits aromatiques extraits. Ceci explique son utilisation très courante, et son développement dans l'industrie actuelle des parfums. Le produit obtenu, après évaporation du solvant, est appelée " 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 de l'alcool absolu permet ensuite de séparer les graisses et obtenir après évaporation de l'éthanol, la phase dite " absolue " qui contient la majeure partie des composés. ^{odorants} (26)

III-2.5 L'extraction par dioxyde de carbone liquide ou supercritique

Ce procédé utilise le dioxyde de carbone sous deux états: liquide ou supercritique. Il est basé sur le fait que certains gaz, notamment le CO₂ dans des conditions critiques ou supercritiques, présente un pouvoir de dissolution accru vis à vis des divers composés tels que les huiles essentielles, les arômes, les colorants naturels, les graisses ect...

A l'état critique, la densité du CO₂ est voisine des liquides et ses qualités dissolvantes sont plus ou moins sélectives selon la température, la pression et la nature des solutés. Les industries d'extraction l'utilisent actuellement sous deux états, liquide ou supercritique, selon un même schéma de fonctionnement où seules les pressions diffèrent. Il est également possible de jouer sur la pression et le taux d'hydratation relatif de la matière première extraite pour séparer une huile essentielle de l'extrait végétal ou encore un composé odorant constituant l'huile essentielle.

Bien que ce procédé est très sélectif, il présente des inconvénients, il exige une technologie sophistiquée permettant de travailler à des pressions élevées. Ceci limite son utilisation aux productions à chiffres d'affaires très élevés. De plus les produits qui résultent de l'extraction par ce procédé diffèrent de ceux obtenus par d'autres techniques. (23)

CHAPITRE : 4

CHAPITRE IV

PLANIFICATION FACTORIELLE DES EXPERIENCES

1- INTRODUCTION

En entament une étude d'un procédé industriel le chercheur doit aboutir au meilleur résultat possible. Cela revient à effectuer une optimisation du procédé utilisé pour atteindre ces conditions optimales dont le but est de déterminer celles qui affecté l'efficacité.

pour ce faire deux méthodes peuvent être utilisées

- La méthode classique
- La planification des expériences

1-1 LA METHODE CLASSIQUE

La méthode classique est considérée comme étant l'étape initiale lors d'une étude d'optimisation. Son principe consiste à faire varier un des paramètre intervenant dans l'étude du procédé tout en gardant les autres constants et estimer l'influence de ces variations sur le système.

Les résultats donnés par cette méthode peuvent être pris en compte pour une optimisation par planification des expériences [30,33]

1-2 PLANIFICATION DES EXPERIENCES

La planification des expériences a pour but de structurer judicieusement les expériences de telle sorte qu'a partir d'un petit nombre d'expériences il soit possible de tester l'existence - présence ou absence- de l'effet des divers facteurs intervenants dans les expériences. (29)

La description et les détails de cette méthode sont donnés dans ce qui suit.

2-NOTIONS SUR LA PLANIFICATION DES EXPERIENCES

L'étude d'un système physique ou chimique consiste à prévoir son comportement, c'est à dire estimer l'état ou l'évolution des grandeurs de sortie en réponse à une perturbation des grandeurs d'entrée.

Pour décrire ces comportements types de ^{trois} modèles sont couramment utilisés

- modèle mathématique
- modèle homologique
- modèle analogique

-Le modèle mathématique est souvent préféré car il représente le système étudié par un ensemble de relations mathématique simples donnant la possibilité de prévoir son évolution, de formuler des recommandations et donc d'aborder les problèmes d'optimisation .

-L'établissement d'un modèle mathématique aussi simple soit-il requiert des données expérimentales. Lorsque ces données sont insuffisantes ou lorsque leurs qualités ne permet pas d'aboutir à l'élaboration d'un modèle il serait important de définir un programme systématique d'expérimentation permettant d'établir un modèle mathématique moyennant le minimum d'essais. (30).

2-1 PLAN D'EXPERIENCE

L'expérimentateur a trois types de problèmes différents

- 1- tester l'existence de l'effet des facteurs
- 2- rechercher les niveaux des facteurs qui donnent le maxima.

Bien souvent l'expérimentateur connaît les facteurs qui ont un effet et ce qu'il cherche c'est à chiffrer les effets des paramètres par quelques expériences et ensuite extrapoler. Dans ce cas il n'est pas indispensable de faire un plan très raffiné car le raffinement n'a d'intérêt que pour l'analyse de variance. (29).

2-2 PLAN FACTORIEL

L'un des plans les plus utilisés est le plan factoriel d'expérience à deux niveaux appelé généralement plan factoriel 2^n . Ce plan d'expérience trouve une application très générale pour l'établissement des modèles formels. Sa mise en oeuvre nécessite 2^n essais correspondant au total des combinaisons des deux niveaux des n variables.

Afin de simplifier l'écriture de toutes les combinaisons on définit généralement un nouveau système de coordonnées qui a pour origine l'intersection des valeurs moyennes entre les deux niveaux de chaque variable. (30, 31, 32).

Soient:

$x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$ les n variables

$x_{1i}, x_{2i}, x_{3i}, \dots, x_{ni}$ leurs valeurs inférieures

$x_{1s}, x_{2s}, x_{3s}, \dots, x_{ns}$ leurs valeurs supérieures

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

$$\frac{x_{1i}+x_{1s}}{2}, \frac{x_{2i}+x_{2s}}{2}, \frac{x_{3i}+x_{3s}}{2}, \dots, \frac{x_{ni}+x_{ns}}{2} = x_{1m}, x_{2m}, x_{3m}, \dots, x_{nm}$$

Les variables réduites s'écrivent sous la forme

$$X_1 = \frac{x_1 - x_{1m}}{\Delta x_1} \quad X_2 = \frac{x_2 - x_{2m}}{\Delta x_2} \quad \dots \quad X_n = \frac{x_n - x_{nm}}{\Delta x_n}$$

où

$$\Delta x_1 = \frac{x_{1s} - x_{1i}}{2} \quad \Delta x_2 = \frac{x_{2s} - x_{2i}}{2} \quad \dots \quad \Delta x_n = \frac{x_{ns} - x_{ni}}{2}$$

Le domaine expérimental est alors transformé dans le nouveau système en un hypercube centre à l'origine

(0,0,...0) et dont les sommets ont pour coordonnées (+1, +1, ..., +1)

On admet que la grandeur Y dont les variations sont étudiées (rendement, vitesse ...) peut être développé suivant une fonction polynomiale de x_1, x_2, \dots, x_n du type

$$Y = a_0 + a_1 X_1 + a_2 X_2 + \dots + a_R X_R + a_{12} X_1 X_2 + a_{13} X_1 X_3 + a_{1R} X_1 X_R + a_{23} X_2 X_3 \dots - a_{123} X_1 X_2 X_3$$

C'est le modèle du premier ordre

Les 2^n essais fournissent 2^n valeurs de la grandeur Y et permettent la détermination des 2^n coefficients de la fonction polynomiale qui est en faite le modèle mathématique à établir.

2.3 Effets principaux et interaction de deux paramètres

On définit l'effet simple d'un paramètre comme étant la variation de la réponse provoquée par un changement de niveau de ce paramètre. (30)

Dans un plan factoriel 2^2 chaque paramètre présente deux effets simples.

Dans le plan 2^2 on a 2 paramètres x_1, x_2

Les interactions correspondent à l'effet simultané de deux ou plusieurs paramètres (un dans le plan 2^2).

L'interaction du premier ordre entre deux paramètres peut être calculée à partir de la différence entre l'effet principal du premier de ces deux paramètres pris au niveau supérieur de l'autre et l'effet principal de ce même paramètre pris au niveau inférieur de l'autre.

Dans le plan 2^2 où on a deux paramètres x_1, x_2 il y a une interaction de deux paramètres.

E_{12} correspondant aux interactions entre x_1 et x_2

Les effets simples ainsi que les interactions des paramètres peuvent être calculés par les relations suivantes

Effets simples

$$E_i = \frac{1}{4} \sum_{j=1}^4 x_{ij} y_j \quad i = 1, 2 \quad j = 1, 2, \dots, 4.$$

Effets conjugués ou interaction des paramètres

$$E_{ik} = \frac{1}{4} \sum_{j=1}^4 x_{ij} x_{kj} y_j \quad i = 1, 2, \quad k = 2 \text{ et } j = 1, 2, \dots, 4.$$

Les valeurs ainsi obtenues permettent de donner une appréciation sur l'influence des effets simples et conjugués sur le résultat ou réponse du système étudié.

CHAPITRE : 5

CHAPITRE V

EXTRACTION PAR SOLVANT

I INFLUENCE DE LA NATURE DU SOLVANT

Nous avons envisagé, au cours de cette étude d'extraction par solvant volatil de travailler avec un soxhlet de 1000 ml, avec quatre solvants différents.

La matière végétale provient de la région de Setif.

A/ APPAREILLAGE

L'appareillage d'extraction représente schématiquement sur la figure 3, est composé :

- d'un soxhlet de 1000 ml .
- d'un ballon de 1000 ml .
- d'un réfrigérant,
- et d'un chauffe ballon réglé .

B/ MODE OPERATOIRE

On a procédé lors de cette manipulation comme suit :

- 1 - Peser la quantité de graine suffisante pour remplir la cartouche du soxhlet.
- 2 - Mettre les graines pesées dans la cartouche.
- 3 - Remplir le ballon avec le solvant.
- 4 - Assembler le montage.
- 5 - Mettre en marche le chauffe-ballon.
- 6 - Ouvrir le robinet d'eau passant par le réfrigérateur.
- 7 - Le solvant est porté à ébullition.
- 8 - Les vapeurs de solvant se condensent dans le réfrigérant.
- 9 - Les gouttelettes de solvant s'écoulent dans le récipient du soxhlet, et entre en contact avec les graines.
- 10 - Quant le solvant condensé atteint son plus haut niveau, il retourne par un trop-plein dans le ballon, et le cycle évaporation-condensation se poursuit jusqu'à épuisement total des graines.
- 11 - L'extrait avec le solvant est recueilli dans le ballon.
- 12 - On refait les mêmes manipulations avec les autres solvants un par un.

1- Soxhlet
2- Cartouche
3- Ballon
4- Réfrigérant

5- Siphon
6- Chauffe ballon
7- Entrée d'eau
8- Sortie d'eau

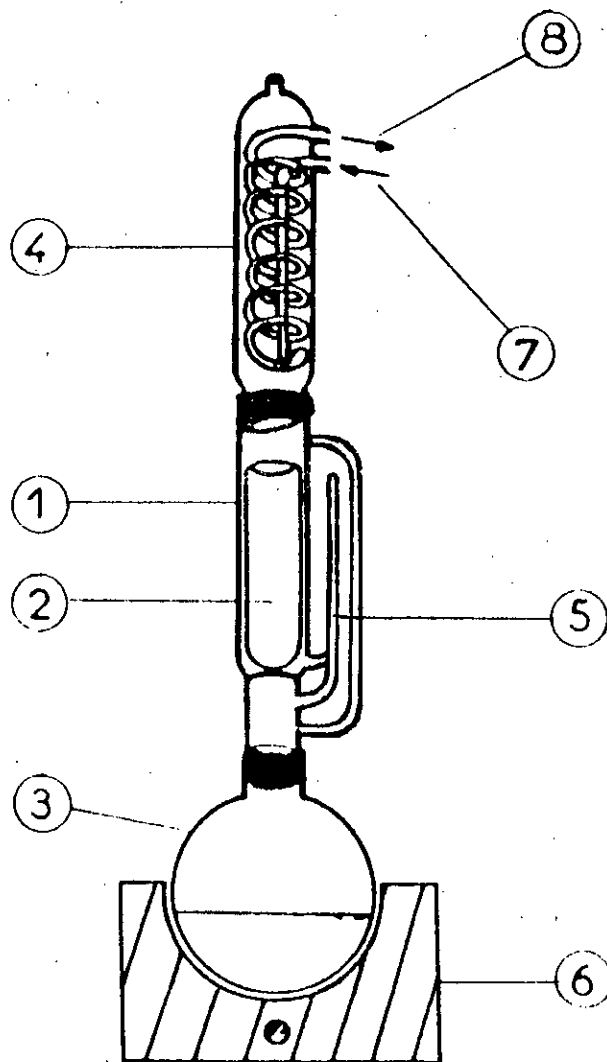


Figure 3 : Extracteur soxhlet

C/ CONDITIONS OPERATOIRES

Les conditions opératoires choisies sont les suivantes.

- Les solvants utilisés sont $T^{\circ}eb$
 - Ethanol $78,3^{\circ}C$
 - CCL4 $76^{\circ}C$
 - coupe pétrolière à tendance pentano-hexamique. SRA45- $75^{\circ}C$
 - THF $66^{\circ}C$.
- Temps de contact 3 jours
- Taux d'humidité 10 %
- Masse 55 g

La récupération de l'extrait concrète a été effectuée à l'aide d'un montage de distillation atmosphérique et à la fin sous vide afin d'éviter la dégradation de l'extrait.

D/ RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats sont rassemblés dans le tableau suivant

Solvant	Rendement %
Ethanol	7.12
THF	14
CCL4	0.49
coupe légère SRA	3.87

Tableau I. rendement en concrète des graines de Nigelle par différent solvants

Nous remarquons que le meilleur rendement a été obtenu par le THF suivi par l'éthanol, la coupe légère SRA et un rendement anormalement faible pour le CCL4 (0.49 %). Cette faible valeur du rendement, nous laisse supposer que le CCL4 n'arrive pas à atteindre les sites où est stockée la concrète.

- 1- Chauffe ballon
- 2- Ballon de 50 ml
- 3-Colonne vigreux
- 4- Coude
- 5- thermomètre
- 6-Réfrigérant

- 7- Ballon de recette
- 8- Coude
- 9- Entrée d'eau
- 10- Sortie d'eau
- 11- Ampoule

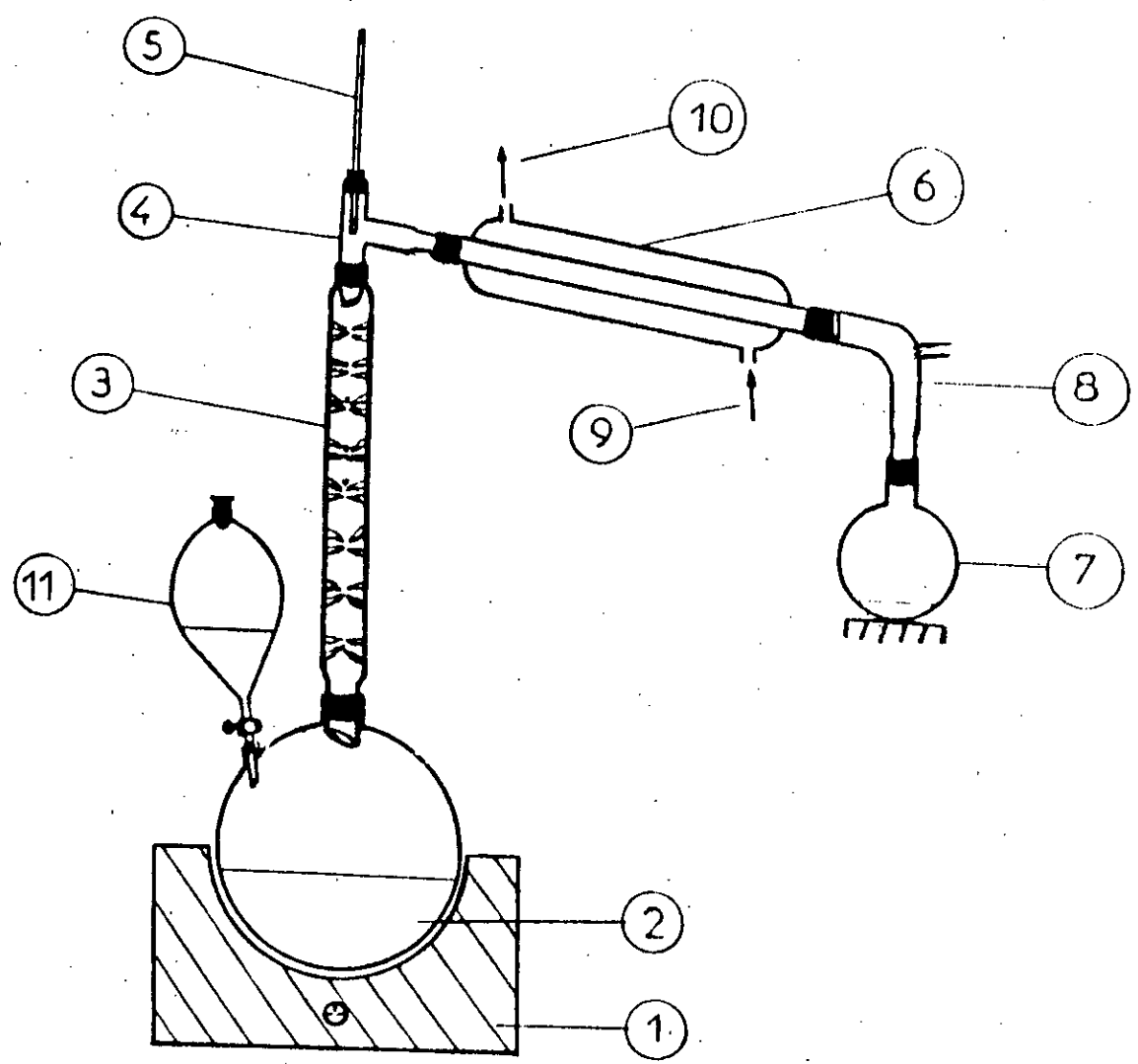


Figure 4 : Montage de la distillation atmosphérique

II/ INFLUENCE DU BROYAGE

Dans le but de comprendre la cause de la faible valeur du rendement obtenue avec CCL4 et de vérifier l'hypothèse émise nous nous sommes proposés de traiter par les mêmes solvants que précédemment, la matière végétale et dans les mêmes conditions que précédemment, mais finement broyées les résultats sont présentés dans le tableau II.

TABLEAU II

Solvants	RENDEMENT %	
	Graines Non Broyées	Graines Broyées
Ethanol	7.12	32.9
THF	14	39.6
CCL4	0.49	41.34
Coupe légère SRA	3.87	24.8

1 jour

Tableau II: Rendement en concrète des graines de Nigelle entières et broyées par différents solvants.

Nous remarquons qu'en premiér lieu que le broyage donne des rendements nettement plus important. D'autre part nous constatons un rendement d'environ 40% pour les graines broyées traitées au CCL4, ceci confirme que les graines entières, ne permettent pas l'accès à ce solvant aux sites où est emmagasinée la concrète.

En règle général, il est conseillé de broyer les graines avant de les épuiser dans les solvants organiques. Quand au choix du solvant, celui-ci repose sur la composition de chacun des extraits, ce qui peut faire l'objet d'une étude ultérieure.

CHAPITRE : 6

CHAPITRE VI

HYDRODISTILLATION

I) INFLUENCE DE LA FERMENTATION

Afin de voir l'effet de la fermentation sur le rendement en huile essentielle, nous avons fait une hydrodistillation des graines non fermentées durant 6 heures, puis nous avons fait subir aux graines, préalablement pesées, une fermentation dans l'eau non salée en premier lieu, et dans l'eau salée (30 g de sel de table par litre d'eau) en second lieu et cela durant 24 heures dans les deux cas.

Après fermentation nous avons fait l'hydrodistillation durant le même temps ^{que} pour les graines non fermentées.

L'appareillage de l'hydrodistillation est présenté schématiquement sur la figure.5

a- Mode opératoire.

- 1- Peser la matière végétale. (60g).
- 2- Remplir, le ballon d'eau.
- 3- Mettre en marche le chauffe-ballon.
- 4- Assembler le montage et mettre en marche le circuit d'eau du réfrigérant.
- 5- Introduire la matière végétale déjà pesée.
- 6- Le distillat. . . est récupéré dans des recipients qu'on change une fois plein.
- 7- L'huile , phase surnagente est séparée de l'eau par simple decantation à l'aide d'un solvant organique: ether diethylique ou CCl₄ pour avoir une bonne separation
- 8- L'huile essentielle est récupérée dans un tube à essai.
- 9- Le temps fixée atteint on arrête la distillation.

durée : 6 h. débit : 350 ml/h.

b- Résultats et discussion.

	graines non fermentées	graines fermentées à l'eau	graines fermentées à l'eau salée
R %	0,015	0,018	0,025

Tableau 3. Influence de la fermentation sur le rendement

- 1- Ballon
- 2- Chauffe ballon
- 3- Coude
- 4- Réfrigérant
- 5- Eprovette graduée

- 6- Ampoule à décanter
- 7- Entrée d'eau
- 8- Sortie d'eau
- 9- thermomètre

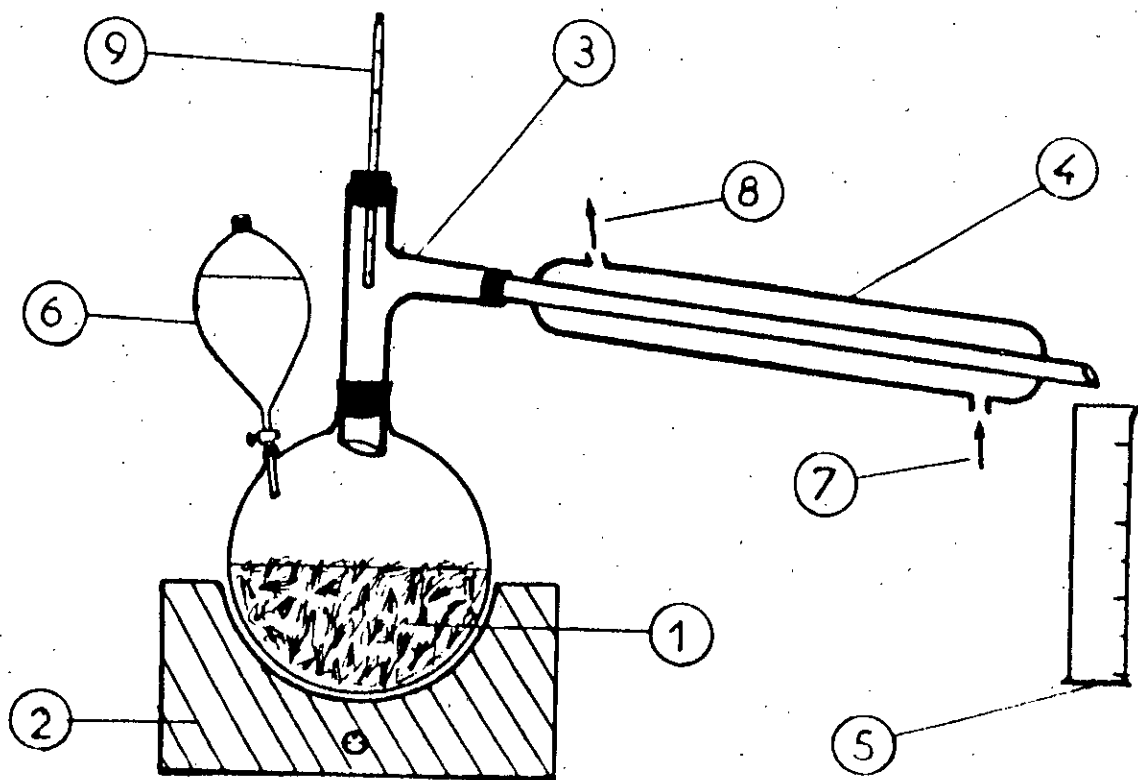


Figure 5 : Montage de l'hydrodistillation

Nous remarquons que la fermentation favorise le rendement en huile essentielle, ce qui est conforme aux résultats trouvés par Gurguiev et collaborateur [7].

2) Influence du broyage

Afin de voir l'effet du broyage sur le rendement en huile essentielle nous avons broyé les graines de Nigelle à l'aide d'un moulin à café.

a- Mode opératoire.

Le même que précédemment avec les précautions :

- d'introduire rapidement des graines broyées dans le ballon afin d'éviter l'échappement des huiles essentielles
- de les introduire seulement une fois que l'eau est bouillante dans le ballon pour éviter la formation des mousses.

b- Résultats et discussion.

	graines non broyées	graines broyées
R %	0,015	0,072

Tableau 4. Influence du broyage sur le rendement

Nous remarquons que le rendement est nettement amélioré par le broyage

CHAPITRE : 7

CHAPITRE VII

ETUDE CINETIQUE DE L'HYDRODISTILLATION PAR PLANIFICATION FACTORIELLE DES EXPERIENCES

Nous avons constaté précédemment que le broyage influait sur le rendement beaucoup plus que la fermentation. On s'est proposé alors d'effectuer un plan d'expériences en retenant comme paramètres le broyage de la matière végétale et le débit de vapeur qui sont des paramètres technologiques.

Les niveaux inférieurs et supérieurs attribués aux paramètres étudiés sont donnés dans le tableau suivant:

paramètres	niveau inférieur	niveau supérieur
débit(m ³ /h)	200	350
broyage	non	oui

Tableau 5: Niveaux inférieurs et supérieurs des paramètres étudiés

VII.1- Mode opératoire

Pour simplifier l'exploitation des résultats, les variables réelles sont remplacées par des variables réduites calculées à l'aide des relations suivantes:

$$X_1 = (V - V_m) / \Delta V \quad \begin{matrix} \text{débit} \\ \text{(vitesse)} \end{matrix}$$
$$X_2 = (B - B_m) / \Delta B \quad \text{(broyage)}$$

avec:

$$V_m = (V_1 + V_2) / 2$$
$$B_m = (B_1 + B_2) / 2$$

et:

$$\Delta V = (V_2 - V_1) / 2$$
$$\Delta B = (B_2 - B_1) / 2$$

Le domaine expérimental est décrit dans un repère orthonormé à deux dimensions correspondants aux variables réduites (X_1, X_2), par un carré dont les sommets ont pour coordonnées $(+1,+1)$, $(+1,-1)$, $(-1,+1)$, $(-1,-1)$.

Les variables réelles et réduites sont représentées dans le tableau suivant:

expériences	paramètres réelles		paramètres réduits	
	débit (ml/h)	broyage	X_1	X_2
1	200	oui	-1	+1
2	200	non	-1	-1
3	350	oui	+1	+1
4	350	non	+1	-1

Tableau 6: Conditions opératoires de la planification des expériences

VII.2.-Résultats (voir tableau 7)

Les résultats issus de la planification factorielle nous ont permis de représenter sur la figure 8 la variation du rendement R_E en fonction de la durée t d'extraction et sur la figure 9, celle de la vitesse instantanée V_E et ce, pour les quatre sommets du carré définissant notre domaine expérimental

Le plan factoriel 2^2 , adopté ici permet de représenter la variation du rendement en huile R_E et celle de la vitesse d'extraction V_E par des fonctions polynomiales de premier ordre en X_1 et X_2

$$R = R_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + a_{12}X_1X_2$$

$$V = V_0 + b_1X_1 + b_2X_2 + b_{12}X_1X_2$$

où a_i et b_i représentent les effets individuels
et a_{ij} et b_{ij} représentent les effets conjugués.

Temps (h)	1	2	3	4	5	6	
expérience 1	0.021	0.027	0.032	0.034	0.036	0.039	%
expérience 2	0.0023	0.005	0.0077	0.01	0.013	0.016	%
expérience 3	0.048	0.054	0.059	0.063	0.068	0.072	%
expérience 4	0.0042	0.0063	0.011	0.012	0.013	0.015	%

Tableau 7: Evolution des rendements en fonction du temps du plan d'expérience 2².

A l'aide de ces données expérimentales, nous avons déterminé les effets individuels et conjugués du débit de vapeur d'eau et du broyage d'une part, sur le rendement R_E global en huile et d'autre part, sur la vitesse V_E d'extraction au cours de l'opération d'hydrodistillation. Les valeurs des effets individuels et conjugués de ces deux paramètres sur le rendement R_E et sur la vitesse sont reportées respectivement sur les tableaux 8 et 9.

Temps(h)	1	2	3	4	5	6	
effet du débit a_1	0.0072	0.0071	0.0076	0.0078	0.008	0.008	(%)
effet du broyage a_2	0.016	0.017	0.018	0.019	0.0195	0.02	
effet conjugué a_{12}	0.006	0.006	0.006	0.007	0.008	0.0085	

Tableau 8: Variation des effets individuels et conjugué sur le rendement

Temps (h)	1	2	3	4	5	6	
effet du débit b_1	3	0.55	0.27	0.1	0.9	-0.15	(g/g.h)
effet du broyage b_2	4.15	1.65	1.3	1	0.63	-0.4	
effet conjugué b_{12}	-1.5	0.25	0.43	0.55	0.63	0.45	

Tableau 9: Variation des effets individuels et conjugué sur la vitesse

Remarque: On notera que tous ces effets sont à multiplier par 10^{-5} . (tableau 9)

VII.3- Interprétation

Nous remarquons que le broyage donne un meilleur rendement que le débit d'eau

Pour comparer les effets individuels et conjugués du broyage et du débit de vapeur, nous avons tracé en fonction du temps la variation de ces effets (figure 7).

Ces graphes montrent que l'effet prépondérant est celui du broyage, alors que l'effet individuel du débit et l'effet conjugué du broyage et du débit sont de même ordre de grandeur tout au long de l'hydrodistillation. Nous remarquons par ailleurs qu'au delà de trois heures de

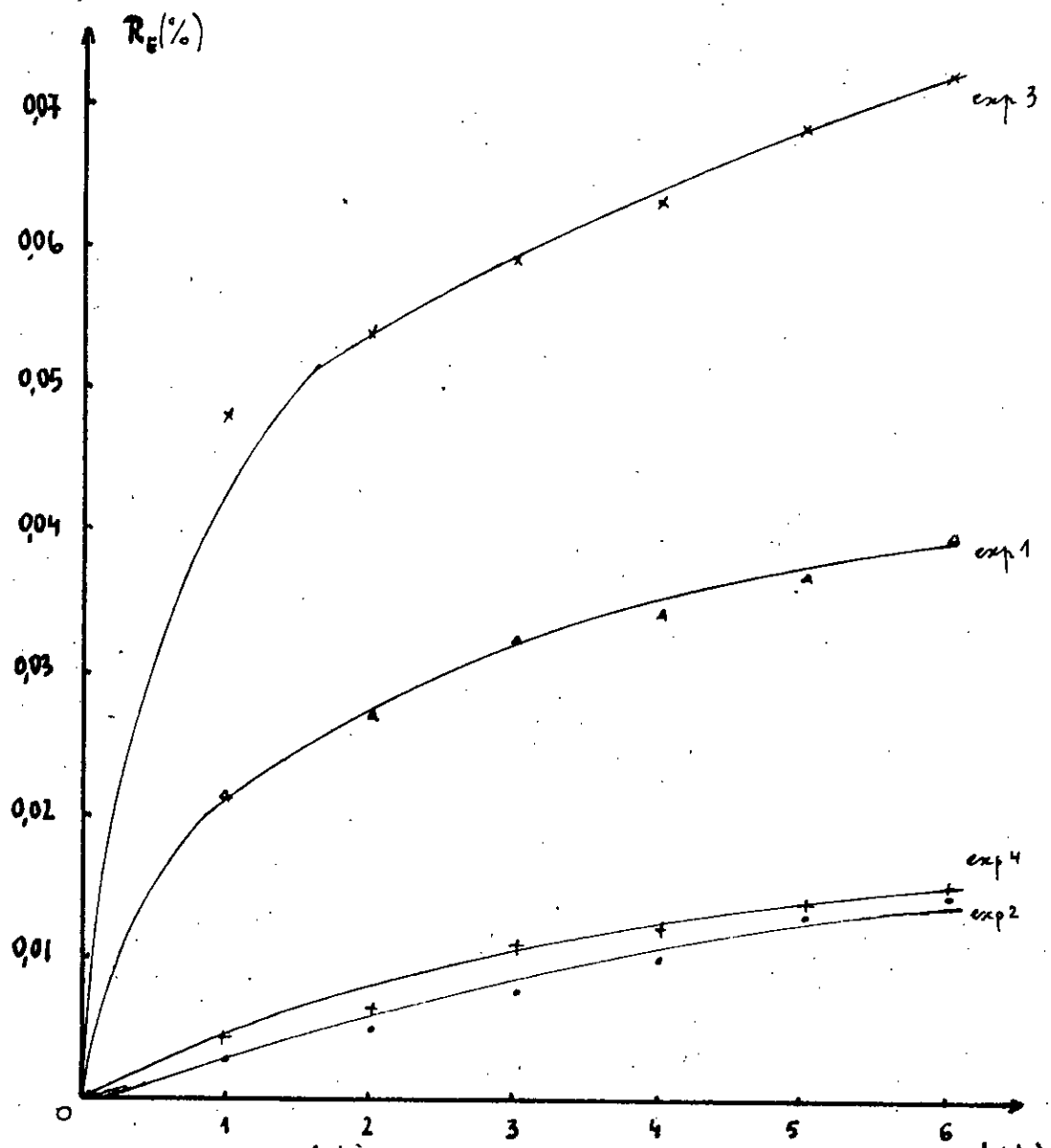


Figure 6 : Evolution du rendement R_E en fonction du temps.

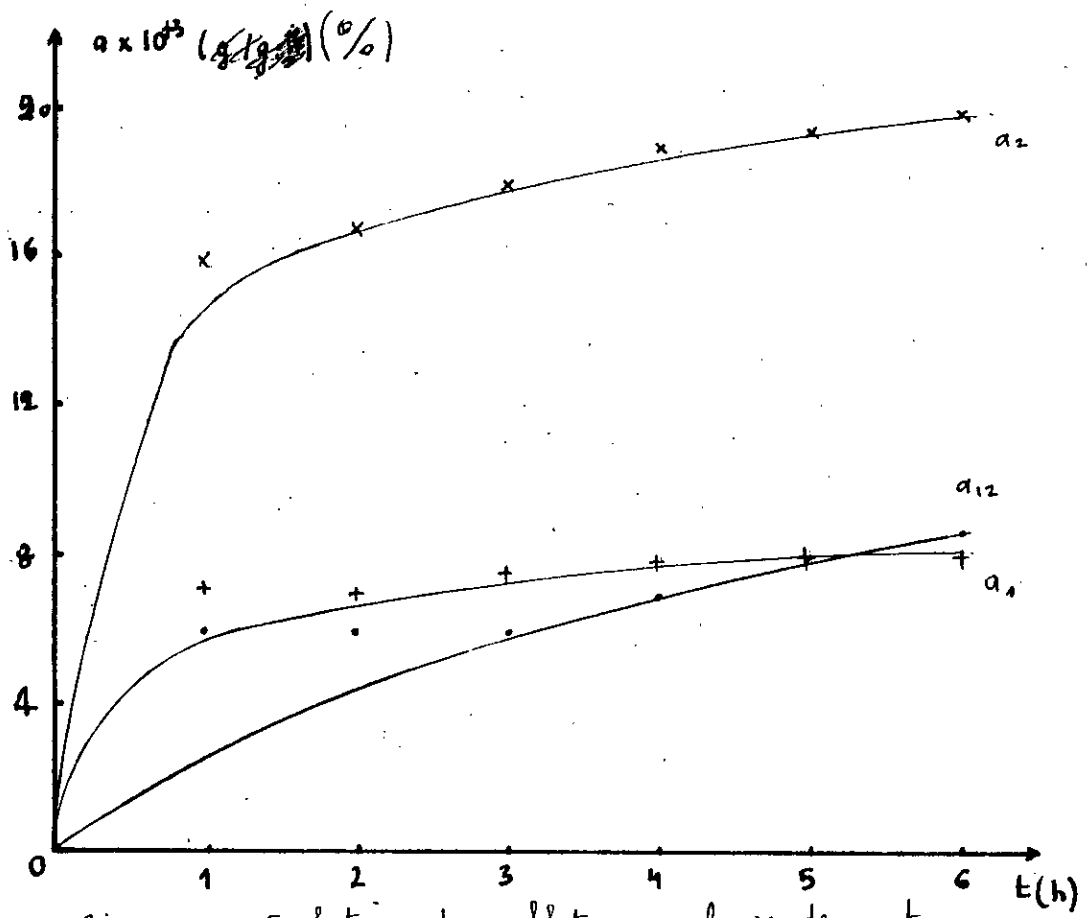


Figure 7 : Evolution des effets sur le rendement en fonction du temps.

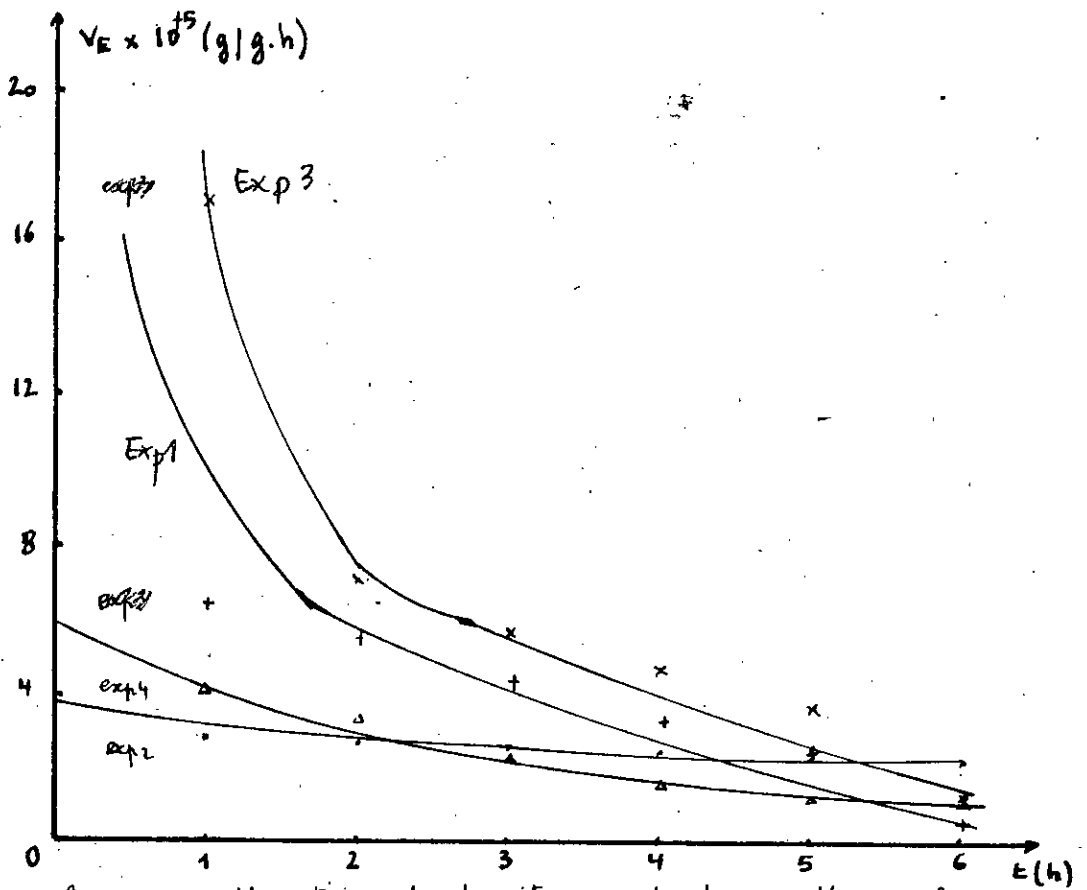


Figure 8: Variation de la vitesse instantanée V_E en fonction du temps.

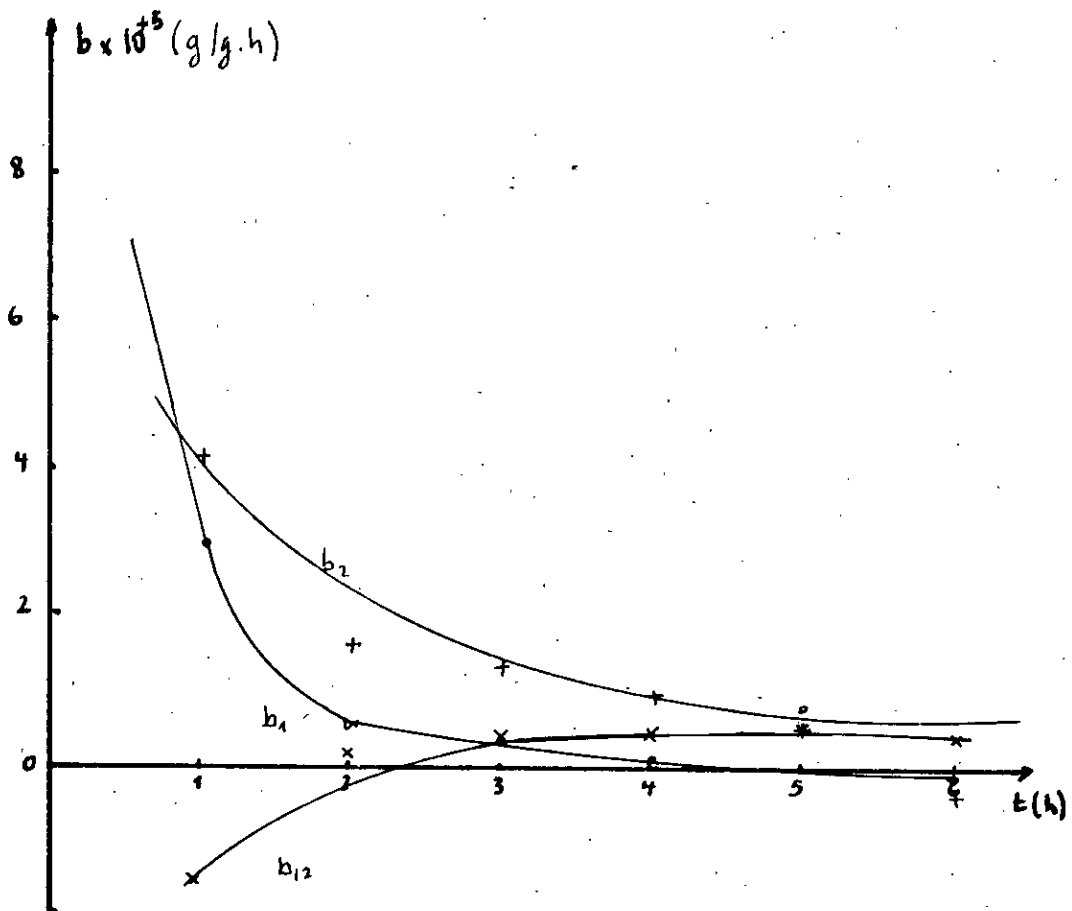


Figure 9: Evolution des effets sur la vitesse V_e en fonction du temps.

traitement tous les effets peuvent être considérés constants car leurs taux de variation est du même ordre que l'erreur expérimentale.

Sur la figure 9, nous remarquons que l'augmentation du débit d'eau a un effet positif sur la vitesse et tend vers une constante en fin d'extraction.

Le broyage a lui aussi un effet positif qui tend vers une constante.

L'effet conjugué des deux paramètres a une influence négative jusqu'à la deuxième heure et au delà il prend une valeur constante.

4 Application du modèle $R(t) = \text{Ln}(1 - R(t)/R_{\infty}) = kt$.

où $R(t)$: rendement en huile essentielle à l'instant t .

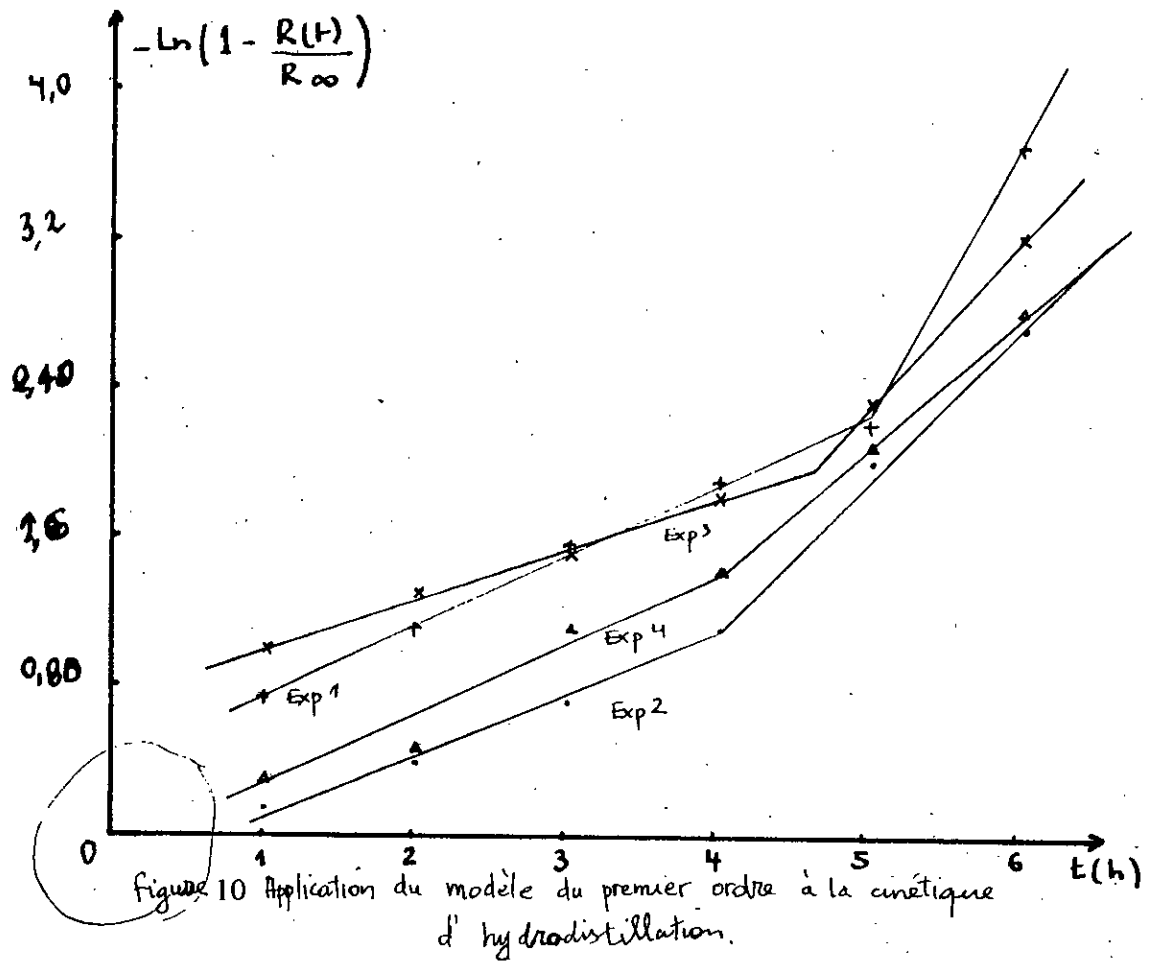
R_{∞} : rendement en huile essentielle en fin d'opération.

On voit que toutes les courbes sont formées par deux droites de pentes différentes dont les valeurs sont regroupées dans le tableau 10. On peut dire qu'il existe 2 étapes au cours de l'hydrodistillation.

Expériences	1	2	3	4	
1ere pente	0.36	0.35	0.26	0.36	(1/h)
2eme pente	1.4	0.8	0.76	0.68	(1/h)

tableau 10. valeurs des pentes du modèle

$$R(t) = \text{Ln}(1 - R(t)/R_{\infty})$$



CONCLUSION

Ce travail nous a permis de déterminer l'influence de quelques paramètres opératoires sur le rendement en essence et ce pour l'hydrodistillation (fermentation, broyage) et l'extraction par solvants volatils (nature du solvant, broyage).

Par ailleurs nous avons suivi l'évolution du rendement avec la durée d'hydrodistillation pour un plan d'expérience 2^2 où les deux variables sont le débit de vapeur d'eau et le broyage. Cette étude nous a permis de déterminer l'évolution des effets individuels et conjugué des paramètres suscitée aussi bien sur le rendement en huile essentielle que sur la vitesse de hydrodistillation V_E .

Nous avons remarqué que la rendement RE est le plus affecté par l'effet simple du broyage que par l'effet simple du débit ou l'effet conjugué des deux paramètres et que la vitesse instantanée d'extraction V_E est la plus affectée par l'effet simple du débit puis par l'effet simple du broyage et que l'effet conjugué des deux paramètres est négatif jusqu'à la deuxième heure d'extraction.

Concernant l'extraction par solvant, cette étude préliminaire, nous a conduit à conclure que le broyage augmente considérablement le rendement, mais pour la sélection il est nécessaire de compléter ce travail par une étude analytique afin de déterminer la qualité de concrète ce qui peut faire l'objet de travaux futurs.

ANNEXES

DETERMINATION DU TAUX D'HUMIDITE

Pour ce faire, il faut se munir de l'appareil de DEAN & STARK, le reactif utilisé est le xylène ou le toluène. Nous procédons alors de la manière suivante :

Dans un ballon de 500 ml, nous introduisant 20 à 30 grammes (+0.001g) de matière végétale. Nous version ensuite, 200ml de xylène dans le ballon que nous surmontons d'un réfrigérant muni d'un récipient gradué. Ensuite nous portons le mélange à reflux (2 à 4 gouttes par seconde) jusqu'au moment où le niveau d'eau se stabilise et le solvant surnageant l'eau dans le récipient devient limpide. Vers la fin du dosage, nous élevons le chauffage afin de récupérer toutes les gouttes déposées sur les parois du réfrigérant. Enfin, nous laissons le tout se refroidir et nous notons le volume d'eau dans le récipient.

La teneur en eau dans la matière végétale est calculée par la formule suivante :

$$H = (V \cdot 0.998) 100 / G$$

Avec : H : La teneur en eau (%).

V : Le volume d'eau (ml).

G : La masse de la matière végétale(g).

1- Ballon de distillation
2-Réfrigérant
3-Sortie d'eau

4-Chauffe ballon
5- Tube de recette
6-Entrée d'eau

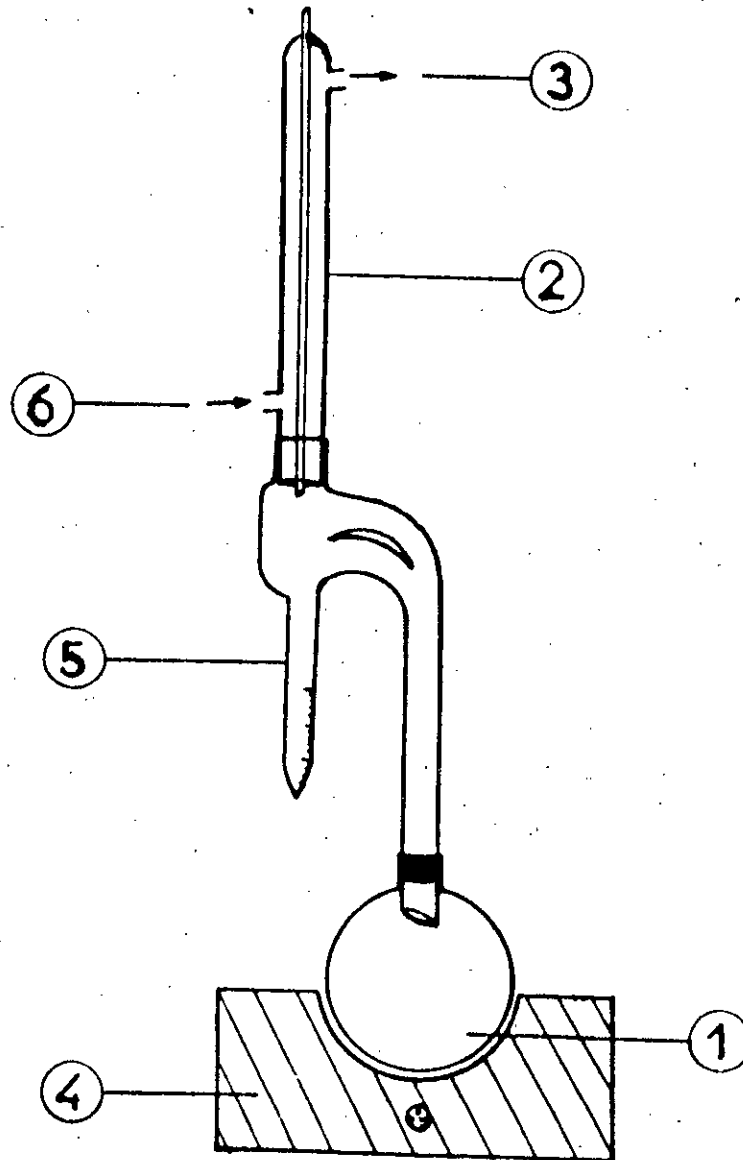


Figure 11. : Appareil de Dean & Stark

Bibliographie

(1) R.R. Paris, H.Moyse, Matière médicale, Masson, Paris, 1976.

X (2) ~~Boutekedjiret Thèse de magistère ENP, Alger, 1990.~~

1- Paul Schauenberg, Guide des plantes médicinales Ferdinand Paris 3^o ed Delachaux-niestle

2- Janvolaak et Jiri Stodola, Plantes médicinales, GRUND Paris 1984.

3- Paul H.Mensier, Dictionnaire des huiles végétales, ed Paul le chevalier 1957.

4- G.Planchon, 1896, Pharmacognosie journal tx.

5- Yahia Mahmoudi, Les plantes médicinales dans le jardin prophétique, palais du livre 1990 Blida.

6- Fourment, Répertoire des plantes médicinales et aromatiques d'Algérie, document de renseignements agricoles, bulletin n°61.

7- Beniston, fleurs d'Algérie, entreprise nouvelle du livre Alger 1984.

8- E.Germain, Nouveau dictionnaire de botanique, ed J B Baillère et fils 1870.

9- Maire, Flore de l'Afrique du nord T11, ed Le chevalier 1964.

10- Trabut, Précis de botanique médicale, 2^oed Masson 1898.

11- R.Merad Chiali, Thèse de Doctorat en pharmacie 1973 université d'Alger.

12- James M Guillingham. *chemical abstract 1965*.

13- TCVY, Chemical Abstracts. 1965.

14- G. Diourte, Projet de fin d'étude, ENP Alger, 1986

15- T.Bernard, F.Perinaux, R.Bravo, M.Delma, A.Graset, information chimie n°298, Octobre 1988

16- G.R Boucard, V.C.Boucard, R.W.Serth, B.S Ainsworth. Recent advances in separation techniques.

17- The essential oils sub-committee, analyst 1971, 887-894, 96

18- DJ.Grau, GS.Hammond: Chimie organique VII. Gauthier Villars 1963.

19- S.Miall, A new dictionary of chemistry, London, Longman Creen, 1940.

20- A.L Bloomfield. The parfumery and ess-oils record, 3, 1936.

21- E. Guenter, The ess-oil Vol I, ed Krieger 3^e édition 1982.

22- Hacks, Chemical dictionary, Philadelphia, 1944.

23- M.Y. Boumghar. Thèse de Magistère. ENP, Alger 1989

24- H.Tatu, L'industrie moderne des parfums.

25- Carree, Précis de technologie et de chimieindustrielle. T II. ed Baillere et Fils 1953.

26- Y.R. Naves, Les parfums naturels pp.1-43, ed. Masson et cie Paris, 1974.

27- L.Bezanger et Beauques, M Pin. Plantes médicinales des régions tempérées. ed Maloine S.A 1980 pp232.

28- A.Benkaci PFE, ENP, Alger

29. Martin H, Programmation linéaire appliquée Paris ed technip 1967.
30. Boutekdjiret these de magistère ENP 1990 ..
31. Benyoussef these de magistère ENP 1990 .
32. Trambouze P, Warquier J.P Le developpement des procedés de raffinage et de petrochimie ed. technip 1975.
33. Benyahia P.F.E, ENP Alger 1988
- ? 34. E. Guergiev & D.J. Kutchkova
Rivista italiana E.P.P.O.s, Maggio, 1978 .