

وزارة التعليم و البحث العلمي

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
BIBLIOTHEQUE — المكتبة
Ecole Nationale Polytechnique

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

1 ex

DEPARTEMENT GENIE-CHIMIQUE

PROJET DE FIN D'ETUDES

SUJET

EXTRACTION DE L'HUILE
ESSENTIELLE D'EUCALYPTUS
GLOBULUS PAR DISTILLATION
A LA VAPEUR D'EAU

Proposé par :

Tyczkowski

Etudié par :

Belmedani
Mohamed

Dirigé par :

A.Tyczkowski

PROMOTION JUIN 86

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE D'ALGER

PROJET DE FIN D'ETUDES

EXTRACTION DE L'HUILE ESSENTIELLE
D'EUCALYPTUS GLOBULUS
PAR DISTILLATION A LA VAPEUR D'EAU

Proposé et Dirigé par :

A. TYCZKOWSKI

Etudié par :

BELMEDANI MOHAMED

Promotion: Juin 1986

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
BIBLIOTHEQUE — المكتبة
Ecole Nationale Polytechnique

* D E D I C A C E S *

A mon père
A ma mère
A mes frères et soeurs
A mes neveux et nièces
A tous ceux qui me sont proches
A toutes les personnes de
bonne volonté.

MEMBRES DU JURY

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
BIBLIOTHEQUE — المكتبة
Ecole Nationale Polytechnique

PRESIDENT

M^r BELABBES .R

Professeur à l'ENP

EXAMINATEURS

M^{me} DERRICHE .R

Chargée de cours à l'ENP

M^r TYCZKOWSKI .A

Maitre de Conférence à l'ENP

M^{me} BOUCHTAOUI .S

Maitre Assistant Stagiaire
à l'ENP

M^r GZYWNA .R

Maitre de Conférence à l'ENP

REMERCIEMENTS :

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
المكتبة — BIBLIOTHEQUE
Ecole Nationale Polytechnique

Que monsieur A. TYCZKOWSKI
pour les conseils qu'il m'a prodigués,
et les riches discussions que nous avons
faites;

trouve ici l'expression de ma sincère
reconnaissance.

Que monsieur D. BELABBES
qui a accepté de présider ce jury
reçoit mes remerciements les plus anticipés.

Que mesdames R. DERRICHE, S. BOUCHTAOUI ainsi
que monsieur R. GZYWNA' qui ont accepté de
faire partie de ce jury

reçoivent mes hommages respectueux.

Mes remerciements vont également à tous
ceux qui ont participé de près ou de loin
à la réalisation de ce travail.

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

وزارة التعليم العالي .

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات .

مصلحة : الهندسة الكيميائية .

Département: Génie-Chimique

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات

BIBLIOTHEQUE — المكتبة

Ecole Nationale Polytechnique

الموجه : أ. تتكوفسكي .

Promoteur: A. TYCZKOWSKI

التلميذ المهندس : بلمد

Elève Ingénieur: BELMEDANI MOHAMED

الموضوع : إستخراج الزيت الأساسية لنبات الكاليتوس الكروي عن طريق التقطير ببخار الماء .
الملخص : عملنا يخص تطبيق عملية التقطير بواسطة بخار الماء لإستخراج الزيت الأساسية لمادة أولية نباتية كثيرة التواجد في الجزائر وهي الكاليتوس الكروي ودراسة تأثير وسطين مهمين هما دفق بخار الماء والحمولة على المراد بالزيت .

Sujet : Extraction de l'huile essentielle d'Eucalyptus globulus par distillation à la vapeur d'eau.

Résumé: Notre travail consiste à appliquer la distillation à la vapeur d'eau pour extraire l'huile essentielle d'une matière végétale très répandue en Algérie; "Eucalyptus globulus" et d'étudier l'influence de deux paramètres importants, en l'occurrence le débit de la vapeur d'eau et de la charge sur le rendement en huile.

Subject: Eucalyptus globulus extraction essential oil by steam distillation.

Abstract: Our work consists to apply steam distillation to extract essential oil from a plant materiel wide spread in Algeria the "Eucalyptus globulus" and to study the influence of two main parameters; the load and steam velocity on yield of oil.

T A B L E D E S M A T I E R E S

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات
 BIBLIOTHEQUE — المكتبة
 Ecole Nationale Polytechnique

I- INTRODUCTION	1
II- PARTIE THEORIQUE	
I/ MATIERES PREMIERES UTILISEES POUR LA FABRICATION DES HUILES ESSENTIELLES.	
I-1 Matières premières et huiles essentielles	2
I-2 Composition des huiles essentielles	2
I-3 Eucalyptus	3
I-4 Traitement et préparation de la matière végétale	5
II/ LES PROCEDES DE FABRICATION DES HUILES ESSENTIELLES.	
II-1 Distillation	10
a/ Hydrodistillation	10
b/ Hydrodistillation avec distillation à la vapeur d'eau	11
c/ Distillation à la vapeur d'eau	11
II-2 Extraction	
- Expression	14
- Enfleurage	14
- Macération	15
- Extraction par les solvants volatils	15
III/ EQUIPEMENTS DE LA DISTILLATION DES MATIERES VEGETALES.	17

IV/ BASES THEORIQUES DE LA DISTILLATION

A LA VAPEUR D'EAU

IV-1 Définition	22
IV-2 Utilisation de la distillation à vapeur	22
IV-3 Principe et théorie de la distillation à la vapeur	23

III- PARTIE EXPERIMENTALE

1- APPAREILLAGE ET MODE OPERATOIRE	29
2- MATIERE VEGETALE " EUCALYPTUS "	31
3- RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION	
A-Feuilles fraîches d'Eucalyptus	32
B-Feuilles sèches d'Eucalyptus	50
C-Analyse chromatographique de l'huile essentielle d'Eucalyptus	51
IV- CONCLUSION	60
BIBLIOGRAPHIE	62



I- INTRODUCTION

Au nombre de chapitres si variés que comporte l'étude de la chimie appliquée, il en est peu qui excitent autant l'intérêt que celui qui a trait aux parfums, soit naturels, soit synthétiques ou artificiels. Avant que les progrès de la chimie n'aient permis la production de composés synthétiques, on préparait les substances odorantes en traitant les matières végétales, soit par distillation, soit par des méthodes assez analogues à celles appelées aujourd'hui enflourage et macération.

L'art de la distillation, pratiqué habilement par les Chinois, pays à végétation intense, Hindous, Persans, Egyptiens, Grecs, Romains passa dès les premiers siècles de notre ère aux mains des Arabes, grands amateurs de parfums, qui augmentèrent le nombre et la qualité des huiles essentielles.

La distillation par la vapeur d'eau, procédé très avantageux puisqu'il permet de traiter en une fois de grandes quantités de plantes, convient à de très nombreuses essences: fleurs d'oranger, menthe, lavande, girofle, lemongrass, citronnelle, ...etc, qui ne sont pas altérées par l'action de l'eau à 100°C. (1)

Parmi ces essences, l'Eucalyptus globulus, utilisé plus en pharmacie qu'en parfumerie pour ses propriétés astringentes, fébrifuges, antica-tharales et antiseptiques. (2)

L'extraction de l'huile essentielle d'Eucalyptus globulus par distillation à la vapeur d'eau donne un rendement dépendant de plusieurs paramètres (conditions opératoires, appareillage, âge de la plante, état de la plante, endroit de la plantation, ...etc.).

C'est dans ce contexte que notre étude a porté sur l'influence de certains de ces paramètres, tels que: le débit de la vapeur d'eau, le poids de la charge et état (fraîcheur) de la plante sur l'extraction de l'huile essentielle des feuilles d'Eucalyptus globulus.

Avant de clore cette introduction, nous rappelons que l'Algérie, comme tous les pays où la tradition forestière n'est encore acquise, s'est intéressée aux Eucalyptus, car ils ^{sont} réputés très plastiques. Connus, en général, pour produire beaucoup de bois, les Eucalyptus devinrent des essences très utilisées dans les reboisements dits de production.

L'exploitation de l'huile essentielle des Eucalyptus en général, et de l'Eucalyptus globulus en particulier, reste très limitée dans notre pays, bien que nous disposons d'un important reboisement industriel à El-Kala spécialement conçu pour l'implantation de cette essence.

II- PARTIE THEORIQUE

I-MATIÈRES PREMIÈRES UTILISÉES POUR LA FABRICATION DES HUILES ESSENTIELLES.

I-1 Matières premières et huiles essentielles

Les huiles essentielles sont des matières odorantes employées généralement à la confection des parfums. Ce sont des produits naturels extraits des fleurs et des plantes aromatiques.

La sélection des matières premières (fleurs et plantes) repose sur un ensemble de considérations que nous ne saurions négliger. S'agissant des fleurs notamment, le lieu de la récolte, les conditions climatiques au cours de la floraison déterminent le rendement et la qualité de l'extrait.

Les huiles essentielles sont extraites à partir des matières premières végétales qui sont classées généralement en deux groupes; (3)

-le premier est composé des plantes ou parties de plantes renfermant beaucoup d'eau et un faible pourcentage de constituants odorants.

-le deuxième groupe comprend les racines, rhizomes, bois, feuilles, fruits, graines, mousses, résines et baumes.

Parmi les matières végétales très utilisées pour la fabrication des huiles essentielles, nous trouvons; le géranium, le girofle, le lemongrass, la citronnelle, le carvi, le bois de rose, le laurier, le camphre, l'eucalyptus, l'anis, le persil, les feuilles de figuier, la cannelle, le cumin, les fleurs de genêt, le jasmin, la menthe, les fleurs et feuilles de henné, le bois de cèdre, le pin, les jonquilles, la lavande, le lavandin, les fleurs de lilas, les fleurs du mandarinier, les mimosas, les fleurs de l'oeillet, les fleurs et feuilles de l'oranger, le romarin, les fleurs et feuilles de tabac, les fleurs de tilleul, les fleurs de térébente, les rhizomes et les fleurs d'Arnica montana, les rhizomes d'Atractylis, les racines d'aunée, les baumes de tolu, les racines de bruyère, les graines de café, ..etc.

I-2 Composition des huiles essentielles.

Les huiles essentielles sont des mélanges plus ou moins complexes, dont les constituants jouent au point de vue parfum, des rôles d'inégale importance. Les uns contribuent puissamment à l'arôme de l'huile, d'autres à l'harmonie du mélange, il en est qui, complètement inodores ou peu odorants, ont un rôle tout à fait effacé; enfin certains corps constituent des facteurs négatifs qu'il ya intérêt à éliminer.

Les principaux constituants de ces huiles sont les hydrocarbures terpéniques ($C_{10}H_{16}$)_n dont les plus fréquents les terpènes proprement dits $C_{10}H_{16}$.

(pinène, camphène, limonène, . . etc.); les sesquiterpènes $C_{15}H_{24}$ sont moins répandus.

On trouve aussi des constituants plus intéressants comme les alcools et les esters tels que les phénols et éthers de phénols ainsi que les aldéhydes et cétones. (4)

I-3 L'Eucalyptus.

I-3-1 Définition: L'Eucalyptus est un très grand arbre originaire d'Australie appartenant à la famille des myrtacées.

Il a une croissance extraordinairement rapide et peut atteindre exceptionnellement près de cent cinquante mètres (150m) de hauteur.

L'Eucalyptus est constitué de plusieurs espèces (plus de 600 espèces) dont cinq cents sont connues en Australie. Ces différentes variétés sont intéressantes à connaître à plusieurs points de vue car 30% de celles-ci contiennent de l'huile essentielle .

Les espèces d'Eucalyptus sont réparties en trois groupes: (5)

1° Eucalyptus riche en phéllandréne

Son huile essentielle sert comme solvant dans la flottation des minerais et comme base à la synthèse industrielle du thymol et du menthol et aussi comme agent désinfectant.

Les principales espèces de cet Eucalyptus sont *E. dives* et *E. australiana*.

2° Eucalyptus riche en cinéol

Très utilisé en pharmacie et en médecine comme agent thérapeutique.

Les espèces, les plus couramment utilisées à cet effet sont *E. globulus* et *E. polybractea*.

3° Eucalyptus riche en citronellal et en acétate de géranyle

Son huile essentielle est utilisée en parfumerie.

A cette catégorie appartiennent *E. citriodora* et *E. macarthuri*.

I-3-2 L'Eucalyptus globulus (figure. 1)

C'est une variété très importante possédant des propriétés remarquables qui sont appréciées à leur valeur, et on se préoccupe d'en tirer partie, non seulement pour la thérapeutique mais encore pour l'assainissement des pays marécageux.

Cette variété d'Eucalyptus est très répandue en Algérie à côté de l'Eucalyptus rostrata (figure. 2) et l'Eucalyptus gomphocephala (figure. 3).

a / Caractères physiologiques

C'est en 1792 que l'Eucalyptus globulus fut observé pour la première en Australie par Labillardière (6). Il a été introduit dans la zone méditerranéenne en 1869. Il présente lorsqu'il est jeune, l'aspect d'une masse pyriforme, mais sa physionomie ne tarde pas à varier beaucoup, suivant la manière dont on le gouverne et les conditions dans lesquelles il se développe. Il possède une odeur balsamique plus agréable que celle de la térébenthine et qui provient d'une huile essentielle volatile contenue en grande abondance dans ses feuilles. Le trait remarquable des feuilles adultes est leur longueur qui varie entre 20 et 35cm. Le fruit aussi est facilement distingué des autres espèces du genre.

La culture d'Eucalyptus prospère dans tous les climats intermédiaires entre les climats chauds et les climats tempérés.

b/ Huile essentielle d'Eucalyptus globulus

1-Propriétés physico-chimiques

C'est un liquide mobile à peine coloré en jaune clair, d'odeur aromatique forte rappelant à la fois le camphre et la lavande de saveur fraîche puis brûlante.

densité à 15°C/15°C	0,910 à 0,930	
pouvoir rotatoire	+0°18' à 15°0'	
indice de réfraction à 20°C	1,4600 à 1,4700	(7)
teneur en cinéol	70 à 75 %	
solubilité dans 70% d'alcool (N/W)	soluble dans 1,5 à 3 vol.	

2- Composition chimique .(2)

La première analyse de l'huile d'Eucalyptus globulus a été entreprise par Cloëz en 1870. Il en retira par distillation fractionnée un corps bouillant à 175°C, qu'il nomma eucalyptol. La composition exacte de l'eucalyptol, soit C₁₀H₁₈, a été reconnue par M. E. Jahns, qui démontra l'identité de ce corps avec le cinéol. L'hydrocarbure qui accompagne le cinéol, et qu'on désignait jadis par le terme d'eucalyptène, n'est autre que du α-pinène droit.

L'odeur secondaire désagréable et piquante de l'huile d'Eucalyptus brute, qui provoque la toux est due à plusieurs aldéhydes, surtout les valérianiques, butyliques et caproïques.

Outre ces corps, on trouve dans la fraction de tête, selon MM. G. BOUCHAR-
DAT et OLIVIERO, de l'alcool éthylique et de l'alcool amylique et des aci-
des gras, etc.

Les études faites jusqu'à présent, sur la composition de l'huile essen-
d'Eucalyptus globulus se sont limitées, la plupart du temps, à l'identi-
fication et au dosage des composés majeurs: α -pinène, limonène, cinéol,
aromadendrène et globulol, etc.

Elles ont fait ressortir la variabilité de la teneur de ces constituants
en fonction de l'origine géographique de la matière végétale.

3-Utilisation

Les feuilles d'Eucalyptus globulus, seule espèce officinale, sont inscrites
dans toutes les pharmacopées officielles, pour être employées en infusions,
ou en inhalations.

Avec l'huile, on prépare des pâtes de formules variées, auxquelles on
ajoute aussi du menthol, de la teinture de tolu, d'opium, etc., qui entrent
dans les formules de poudres antiseptiques qui donnent des résultats appré-
ciables dans les pansements des plaies, en favorisant la formation de bour-
geons charnus réparateurs; on l'associe souvent à l'iodoforme.

On prépare également un sirop qui un excellent antiseptique des bronches,
qui diminue la toux et fluidifie les expectorations. (6)

I-4 Traitement et préparation de la matière végétale

I-4-1 Broyage de la matière végétale

Avant d'extraire l'huile essentielle par les procédés que nous allons
voir dans le chapitre II, on prépare les plantes suivant leur nature, c'est à dire que l'on contusionne, divise, écrase, broie les plantes entières, les graines, les bois, les résines à l'aide d'appareils adaptés à ces usages car les huiles essentielles sont enfermées à l'intérieur des glandes des plantes aromatiques. (1)

La vaporisation de l'huile par la vapeur d'eau ne peut être accomplie que par l'hydrodiffusion qui est un processus lent. Pour améliorer la vitesse de vaporisation et par là favoriser la distillation des plantes, il faut que ces dernières subissent un traitement par broyage, morcellement, contusion, écrasement ou autres. Mais ce traitement de la matière végétale provoque une déperdition de l'huile volatile par évaporation et oxydation, et spécialement lors de l'utilisation d'appareils rotatoires et meules à grande vitesse.

L'étendue de la déperdition dépend de la vitesse de circulation de l'air

dans le système, le degré de chaleur et la composition de l'huile volatile (point d'ébullition et résistance à l'oxygène) . (7)

I-4-2 Emmagasinage de la matière végétale

L'emmagasinage de la matière avant le broyage ou le morcellement présente aussi quelques risques de déperdition d'une partie de l'huile volatile . Dans ce cas , la situation n'est pas aussi sérieuse que dans celui du broyage. Mais si le retard dans la distillation de la matière végétale ne peut être évité , la matière en question doit être emmagasinée dans ses conditions naturelles , car l'évaporation graduelle provoque une certaine perte en huile. La majeure partie de cette perte est le résultat de l'oxydation et de la resinification des huiles essentielles . (7)

L'emmagasinage de la matière végétale est déconseillé car la matière se dessèche et l'eau contenue dans les cellules de la plante remonte l'huile à la surface par diffusion d'où vaporisation de l'huile volatile. Le séchage provoque aussi des changements dans les propriétés physico-chimique des huiles essentielles .

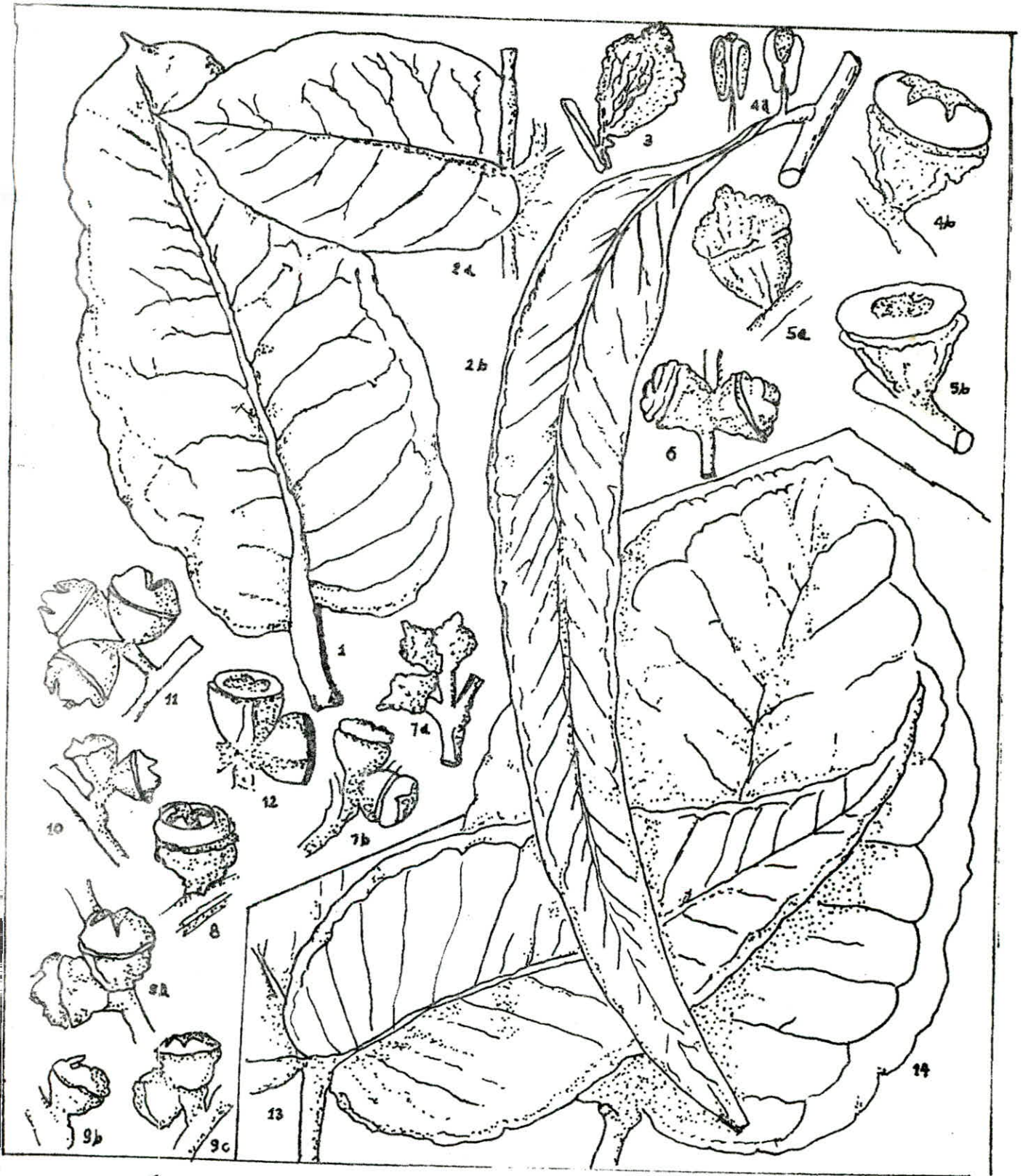


Figure 1 : EUCALYPTUS GLOBULUS, Labell



Figure 2: EUCALYPTUS ROSTRATA SCHELECHT

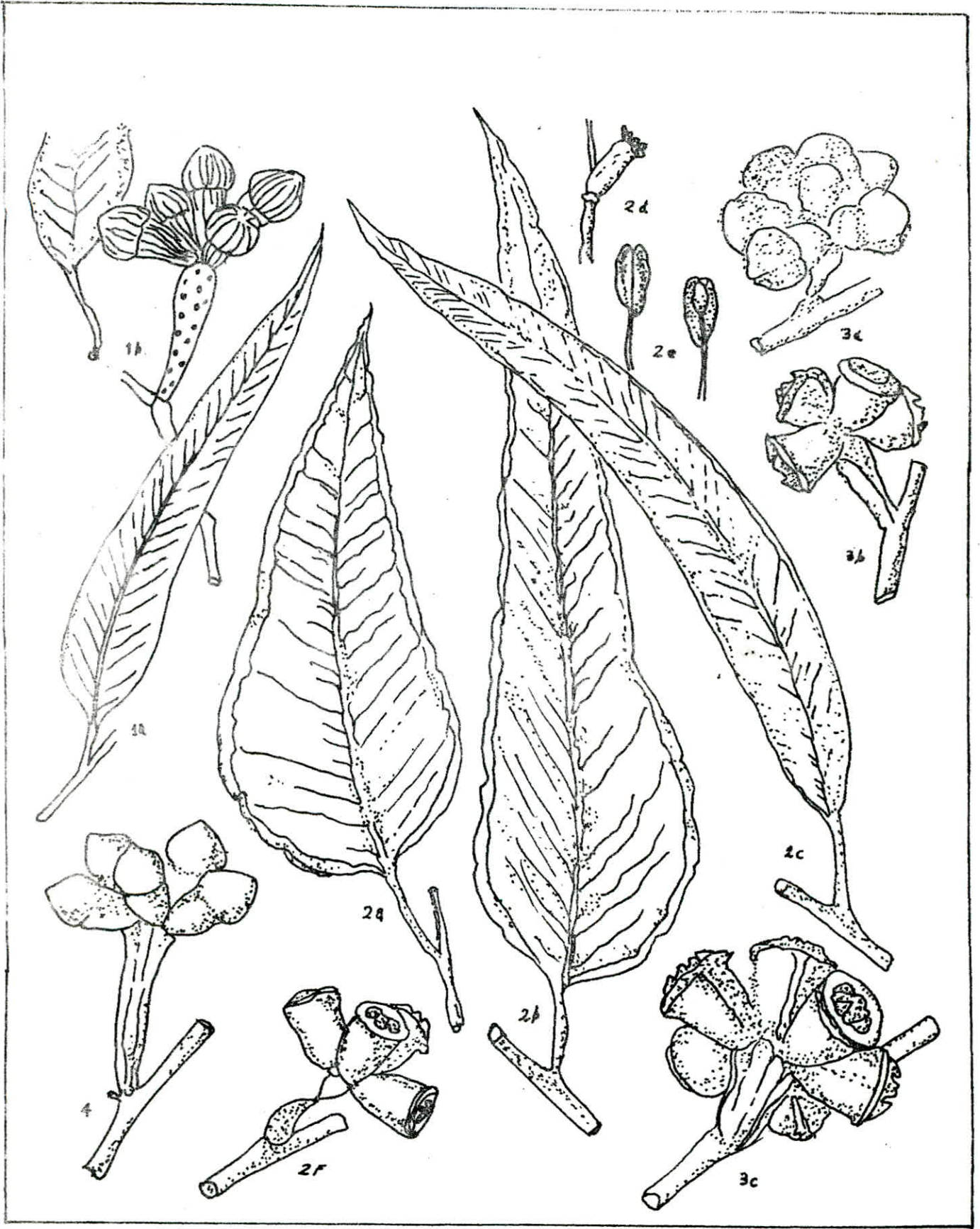


Figure 3 : EUCALYPTUS GOMPHOCEPHALA, DC

II-LES PROCÉDES DE FABRICATION DES HUILES ESSENTIELLES

II-1 Distillation

II-1-1 Méthodes générales de la distillation

La majorité des huiles essentielles est obtenue par distillation à la vapeur d'eau, mais aucune démonstration n'a été entreprise pour expliquer le processus avec lequel la vapeur isole effectivement l'huile essentielle des plantes aromatiques. Il est supposé que la vapeur pénètre le tissu de la plante et vaporise toutes les substances volatiles. Si cela est vrai, l'isolation de l'huile à partir des plantes aromatiques par distillation peut apparaître comme un processus plutôt simple qui nécessite simplement une quantité suffisante de vapeur d'eau. Cependant cela n'est pas le cas. En fait, la distillation des plantes fait intervenir plusieurs processus physico-chimiques. Dans l'industrie des huiles essentielles; une terminologie a été développée, laquelle distingue trois types de distillation:

- a/ Hydrodistillation (water distillation)
- b/ Hydrodistillation couplée à la distillation à la vapeur d'eau (water and steam distillation)
- c/ Distillation à la vapeur d'eau (steam distillation)

A l'origine ces termes ont été introduits par Von Rechenberg. (7) Ces trois méthodes sont sujettes aux considérations théoriques qui seront présentées dans le chapitre IV.

a/ Hydrodistillation:

Lorsque cette méthode est employée, la matière végétale à distiller est en contact direct avec l'eau bouillante. Elle peut flotter sur l'eau ou être complètement immergée selon sa densité et la quantité à traiter. L'eau bout par application de la chaleur avec des méthodes usuelles; feu direct (bec bunsen), chauffe ballon, ...etc.

Le trait caractéristique de cette méthode se situe donc dans le contact direct entre l'eau bouillante et la matière végétale. Quelques matières végétales (ex: amandes, roses et oranges) doivent être distillées pendant qu'elles sont complètement immergées et en mouvement libre dans l'eau bouillante, car dans la distillation à la vapeur ces matières s'agglutinent et forment un bloc compact, à travers lequel la vapeur ne peut pas pénétrer.

b/ Hydrodistillation avec distillation à la vapeur

Lorsque cette seconde méthode de distillation est utilisée, la matière végétale est déposée sur une grille perforée ou sur un écran inséré à une certaine distance au dessus du bas de l'alambic. La partie inférieure de l'alambic est remplie d'eau.

L'eau peut être chauffée par l'une des méthodes précédemment décrites. Dans ce cas la vapeur saturée et mouillée à basse pression s'élève à travers la matière végétale.

Les caractéristiques typiques à cette méthode sont:

premièrement, la vapeur est toujours entièrement saturée, mouillée et jamais surchauffée; deuxièmement, la matière végétale est en contact avec la vapeur seulement et non avec l'eau bouillante.

c/ Distillation à la vapeur d'eau

Longtemps la distillation directe, sans vapeur auxiliaire, a déçu l'expérimentateur en raison de la difficulté à extraire l'ensemble des produits odorants sans dégradation de produits résiduels.

Cette troisième méthode ressemble à la précédente excepté que l'eau n'est pas gardée en bas de l'alambic. La vapeur, saturée ou surchauffée et généralement à des pressions supérieures à la pression atmosphérique est introduite à travers la charge qui peut être déposée directement dans l'alambic ou sur une grille préalablement placée à une distance du bas de l'alambic. (7)

Ce procédé a été appliqué au traitement des concrètes vers la fin du siècle dernier par garnier et, 30 ans plus tard, dans l'ordre analytique par Walbaum et Rosenthal. (3)

II-1-2 Les principaux effets accompagnant la distillation des matières végétales.

a/ Effet d'hydrodiffusion

Même après que la matière végétale soit soigneusement préparée avec un bon broyage, seulement une partie de l'huile essentielle est présente à la surface de la matière végétale et elle est immédiatement disponible à la vaporisation. Le reste de l'huile arrive à la surface après la diffusion de la vapeur à travers l'ensemble du tissu de la plante.

La distillation des matières végétales est liée aux processus de diffusion,

et principalement avec l'osmose c'est à dire la diffusion à travers une membrane perméable.

Von Rechenberg (7) décrit le processus d'hydrodiffusion, dans le cas de la distillation des plantes comme suit:

- A la température d'ébullition de l'eau, une partie de l'huile volatile est dissoute dans l'eau présente à l'intérieur des glandes. Cette solution d'huile dans l'eau pénètre par diffusion à travers les membranes de la plante et enfin parvient à la surface extérieure; de là, l'huile est vaporisée par la vapeur d'eau qui passe.

Ce processus continue jusqu'à ce que toutes les substances volatiles soient diffusées à partir de l'huile des glandes et soient vaporisées par la vapeur d'eau qui traverse la charge constituée de la matière végétale.

b/ Effet d'hydrolyse

L'hydrolyse dans ce cas peut être définie comme une réaction chimique entre l'eau et certains constituants des huiles essentielles. Ces produits naturels se composent partiellement, et dans beaucoup de cas d'esters qui sont constitués d'acides gras et d'alcools. En présence d'eau, et particulièrement à température élevée, les esters tendent à réagir avec l'eau et forment des acides et des alcools.

Le trait caractéristique le plus important de ces réactions durant la distillation est que ces réactions sont incomplètes dans l'un ou dans l'autre sens. En conséquence, si la quantité d'eau et par suite sa concentration est grande, les quantités d'alcool et d'acide peuvent aussi être grandes et l'hydrolyse peut continuer à une étendue considérable.

Et comme résultat, le rendement en huile essentielle peut être décroissant. Ce résultat est un des principaux inconvénients de l'hydrodistillation, puisque la quantité d'eau présente est toujours grande, et l'hydrolyse relativement importante. Dans le cas de l'hydrodistillation couplée à la distillation à la vapeur d'eau, le degré d'hydrolyse est moins important et il peut atteindre son niveau le plus bas avec la distillation à la vapeur d'eau et particulièrement avec une vapeur légèrement surchauffée.

c/ Effet de la chaleur

Le troisième effet important accompagnant la distillation est l'influence de la température sur les huiles essentielles.

La pression de distillation (atmosphérique, élevée ou réduite) peut être

sélectionnée à volonté, mais la température de la vapeur d'eau ou de la vapeur naissante du mélange à travers la charge dans l'alambic varie au cours de l'opération. Elle est faible au début car les constituants à bas point d'ébullition des substances volatiles, dégagés à la surface par broyage de la matière végétale, vaporisent les premiers. Puis comme les constituants à haut point d'ébullition commencent à prédominer dans les vapeurs et que la quantité des vapeurs d'huile dans la vapeur du mélange décroît, la température monte graduellement jusqu'à ce qu'elle atteigne celle de la vapeur saturée à pression donnée.

pratiquement tous les constituants des huiles essentielles sont quelque peu instables à des températures élevées. (7)

Avant de clore la discussion générale sur les trois principales méthodes de distillation, il est nécessaire de mentionner brièvement que chaque méthode peut être modifiée en vue d'améliorer le rendement en huile en changeant la pression dans l'alambic. En conséquence, la distillation peut être menée:

- (a) A pression réduite
- (b) A pression atmosphérique
- (c) A pression élevée

Et la vapeur d'eau peut être saturée ou surchauffée.

Influence de la méthode de distillation sur la qualité d'huile

La qualité, de même que les propriétés physico-chimiques de l'huile volatile sont très influencées par les conditions de la matière végétale (âge, fraîcheur) et par le procédé de distillation. Plusieurs facteurs entrent en jeu, à savoir, la méthode de distillation, le degré de broyage de la matière végétale, le poids de la charge, la durée de distillation, la pression appliquée, la qualité de la vapeur d'eau, le traitement des eaux de distillation, etc.

Difficultés rencontrées en distillation des plantes

Les huiles essentielles sont composées de constituants volatils qui sont plus ou moins sensibles à l'influence de la chaleur. Mais, il est certain que tous les constituants présents dans les plantes vivantes peuvent être isolés comme tels par distillation.

La distillation de certaines matières végétales présente des difficultés d'hydrodiffusion. Une partie de l'huile peut être extraite comme substance visqueuse insoluble dans l'eau, et une autre partie reste dans le tissu de la plante. D'où nécessité d'une méthode particulière de distillation

pour chaque type de matière végétale.

En raison de ces difficultés, et en raison du prix élevé de la distillation dans certains cas, il est suggéré d'utiliser la méthode d'extraction par solvants volatils et d'appliquer la distillation à la vapeur d'eau aux extraits concentrés.

II-2 Extraction

II-2-1 Expression

Ce procédé ne s'emploie que pour les substances riches en huile essentielle, comme le zeste de l'orange, de la bergamote et du citron.

La matière végétale est fortement pressée à froid, dans des sacs solides au moyen de la presse hydraulique, ou bien à nu dans des presses spécialement aménagées.

L'huile écoulee et décantée de la partie aqueuse par repos ou par filtration.

II-2-2 Enfleurage

C'est une extraction par un corps gras à froid qui se fait par contact sans immersion. C'est un des premiers moyens employés dans le but exclusif de parfumerie. C'est une méthode qui donne le meilleur rendement avec certaines fleurs comme le jasmin, les térébenthines et les jonquilles dont le parfum continue à se produire, après la récolte, durant tout le temps de la floraison. Il est essentiel dans ce cas de ne pas détruire la vie de la fleur pour qu'il soit possible de recueillir le parfum au fur et à mesure de sa production, ce qui conduit à éviter l'action de la chaleur et l'emploi des solvants comme le benzine qui tuent la fleur. Les principes d'enfleurage sont simples, le corps gras à froid possède un grand pouvoir d'absorption et s'il rentre en contact avec les fleurs parfumées il absorbe facilement le parfum dégagé.

la matière grasse solide est étendue sous une épaisseur de 3 à 7 mm sur des plaques de verre disposées au fond de cadres en bois; on emploie un mélange de graisses de porc et de boeuf de façon à obtenir une consistance convenable, et additionné d'une petite quantité de benjoin pour l'empêcher de rancir. On dispose les fleurs sur la surface de la graisse et on les renouvelle après 24 heures pour le jasmin, après 48 heures pour la jonquille et après 72 heures pour la térébenthine; on réenfleurage jusqu'à ce que la pommade ait la richesse voulue (30 fois et même davantage). La graisse saturée est appelée pommade française. (3)

Si la matière grasse est une huile, on imprègne d'huile une toile de coton que l'on tend sur un cadre, et on opère de même. Ensuite on soumet les linges à une forte pression pour en extraire l'huile parfumée appelée huile française.

La séparation des parfums contenus dans les huiles ou dans les graisses se fait par un brassage avec l'alcool dans des "batteuses" ; l'alcool dissout les matières odorantes et très peu de matières grasses.

La solution alcoolique est refroidie à - 10 - 15° C pour éliminer la petite quantité de matières grasses dissoutes, et on filtre.

L'épuisement complet de la matière grasse demande plusieurs lavages à l'alcool, après distillation de l'alcool on obtient l'huile essentielle.

II-2-3 Macération

C'est une extraction par un corps gras à chaud. Les fleurs à épuiser (oranger, violette, cassie, mimosa, etc.) dont les activités physiologiques sont arrêtées après la récolte sont introduites dans la matière grasse fondue à 50 - 70°C, puis on remue constamment. On laisse en contact 12 à 48 heures et on renouvelle la charge de fleurs 10 à 15 fois successives, jusqu'à ce que la pommade ait la richesse voulue. Finalement la pommade est décantée de l'eau de végétation apportée par les fleurs; l'extraction du parfum dissous se fait de manière analogue à celle pratiquée pour graisses d'enfleurage. Les fleurs épuisées impregnées de matière grasse, sont passées à la presse ou traitées par un dissolvant volatil.

II-2-4 Extraction par les solvants volatils

Cette extraction consiste à épuiser le produit odorant par un solvant et à chasser le solvant de l'extrait, soit par concentration distillatoire, soit par précipitation.

Le principe de l'extraction par solvants volatils est simple: les fleurs fraîches sont chargées dans des extracteurs spécialement construits et systématiquement extraits à la température de ces derniers, par un solvant pur, généralement l'éther de pétrole. Le solvant pénètre les fleurs et dissout le parfum naturel de la fleur qui cohabite avec quelques substances albimineuses et colorantes. La solution est pompée dans un évaporateur et concentrée à basse température. Une fois que le solvant est complètement chassé, l'huile concentrée de fleur est obtenue.

Le facteur le plus important pour que le processus d'extraction réussisse est la qualité du solvant employé.

Le solvant idéal est celui qui possède les propriétés suivantes: il doit extraire aisément l'ensemble des constituants odorants (sélectivité , pénétration cellulaire). Il doit être chimiquement inerte à l'égard de l'huile de fleur et de l'appareillage , être peu altérable et ne renfermer qu'un minimum d'impuretés .

Il serait en outre souhaitable qu'il possède un point d'ébullition uniforme et qu'il soit ininflammable et ne soit pas toxique.

En fait , il n'existe pas de solvant répondant à toutes ces exigences. La considération de toutes les caractéristiques fait apparaître l'éther de pétrole hautement purifié ainsi que le benzine comme solvants les plus adéquats.

III EQUIPEMENT POUR LA DISTILLATION DES MATIERES VEGETALES

L'équipement utilisé dans la distillation des matières végétales dépend de la grandeur de l'opération et de la méthode de distillation choisie. Cependant, il existe trois parties principales qui forment la base des trois méthodes de distillation des plantes aromatiques citées dans le chapitre II.

Ces parties principales sont:

1. L'alambic
2. Le condenseur
3. Le réservoir pour le condensat (séparateur d'huile)

La quatrième partie est constituée d'une chaudière pour la production de vapeur d'eau. (7)

III-1 L'alambic

L'alambic sert principalement comme un conteneur de la matière végétale et comme un récipient dans lequel l'eau et/ou la vapeur d'eau contacte la matière végétale et vaporise son huile essentielle.

Dans sa forme la plus simple, l'alambic est constitué d'un conteneur cylindrique ou réservoir, avec un diamètre égal ou légèrement inférieur à sa hauteur, et équipé d'un couvercle amovible qui peut être cramponné sur la section cylindrique. Sur cette dernière un tuyau est attaché pour conduire les vapeurs au condenseur.

Pour l'hydrodistillation (figure 4), cet équipement est suffisant; l'eau et la charge peuvent être introduites à l'intérieur de la section cylindrique, le couvercle mis en place et un feu peut être édifié sous l'alambic.

Pour l'hydrodistillation couplée à la distillation à la vapeur (figure 5) une grille est insérée suffisamment au dessus du fond de l'alambic pour éviter le contact entre l'eau bouillante et la matière végétale. L'eau est portée à ébullition soit par une chemise de vapeur, soit par un feu direct au dessous de l'alambic.

Dans le cas de la distillation à la vapeur d'eau (figure 6), la grille est maintenue tout près du bas de l'alambic et la vapeur est introduite à travers une tuyauterie jusqu'au niveau de la grille sur laquelle se trouve la matière végétale.

La section cylindrique peut être fabriquée par une tôle métallique galvanisée.

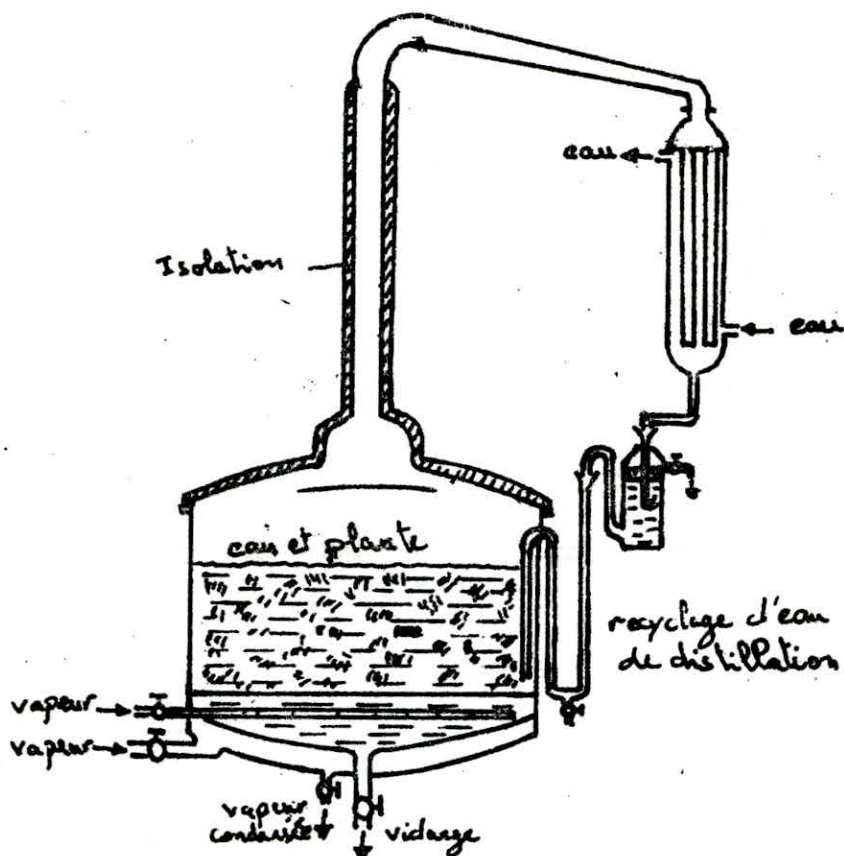


Figure 4 : Alambic pour l'hydrodistillation

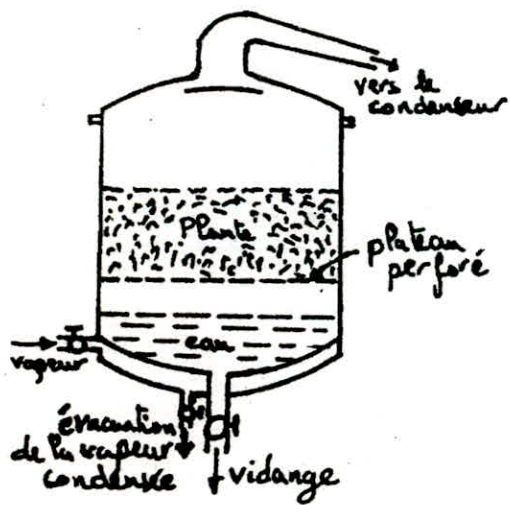


Figure 5 : Alambic pour l'hydrodistillation complée à la distillation à la vapeur

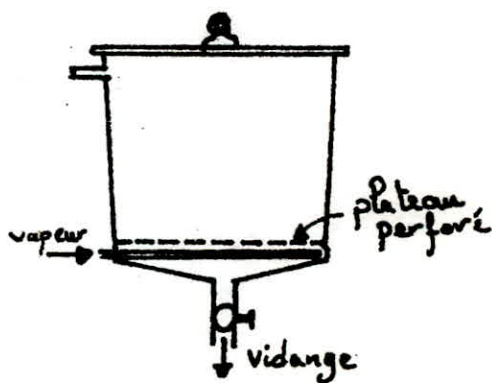


Figure 6 : Alambic pour la distillation à la vapeur

- Isolation de l'alambic

L'alambic doit être isolé pour conserver la chaleur et particulièrement quand il est exposé à l'air frais.

Si l'isolation n'est pas réalisée, une condensation excessive de vapeur d'eau à l'intérieur de l'alambic peut se produire à cause de la perte de chaleur à travers la surface de la section cylindrique. Et ceci provoque un mouillage excessif de la charge et de ce fait les particules de la plante se tassent, s'agglutinent et consomment une très grande quantité de la vapeur d'eau. La durée de distillation se trouve prolongée, et le rendement en huile devient faible.

III-2 Le condenseur

Sa dimension et son modèle sont variables, et plusieurs types peuvent être considérés.

Le condenseur sert à convertir toute la vapeur d'eau ainsi que les vapeurs chargées d'huile en liquide. Ceci exige un enlèvement d'une quantité de chaleur équivalente à la chaleur de vaporisation de l'eau et du mélange contenant l'huile plus une petite quantité de chaleur pour le refroidissement du condensat à une température inférieure à sa température d'ébullition.

La proportion de chaleur qui peut être enlevée des vapeurs naissantes du mélange (eau + matière végétale) est exprimée par la relation

$$q = U.A. T$$

- avec
- q : chaleur enlevée par unité de temps
 - U : constante qui dépend des conditions opératoires
 - A : surface disponible à l'échange de chaleur
 - T : différence de température entre les vapeurs et le milieu rafraichissant

La longueur du condenseur et le nombre de tubes peuvent être déterminés à partir de la quantité de vapeur à condenser.

Lors de l'utilisation de l'eau comme moyen de refroidissement il convient d'insérer deux serpentins limitrophes dans un réservoir condenseur.

La figure 7 montre un condenseur à serpentins. Il existe d'autres condenseurs tel que le condenseur tubulaire (figure 8) qui assure une meilleure condensation des vapeurs

Les tubes du condenseur tubulaire ou les serpentins doivent être fabriqués avec du cuivre fortement étamé.

III-3 Réservoir pour le condensat (séparateur d'huile)

La troisième partie essentielle pour l'équipement de distillation est constituée d'un réservoir décanteur ou séparateur d'huile. Sa fonction est de continuer la séparation rapide et complète de l'huile à partir de l'eau condensée. Puisque la quantité d'eau est beaucoup plus grande que la quantité d'huile dans le condensat, il est nécessaire d'enlever l'eau continuellement. Beaucoup de séparateurs sont construits selon l'ancien principe des vases flerintins (figure 9). L'huile volatile et l'eau sont insolubles l'un dans l'autre à cause de la différence de leurs densités.

Quelques matières végétales donnent des huiles distillants au début avec des fractions plus légères que l'eau et à la fin de la distillation avec des fractions plus lourdes que l'eau à cause de la croissance progressive de la densité de ces fractions de l'huile. Pour cela on utilise un séparateur du type de la figure 10 .

III-4 La chaudière

C'est un récipient métallique servant à la génération de vapeur. Ses dimensions dépendent de la quantité de vapeur nécessaire et de la pression de travail. La chaudière doit disposer d'un système de détermination du niveau d'eau et de la pression .

Cependant, il existe deux types de chaudières: chaudières à basse pression et chaudières à pression élevée. Les premières produisent une faible pression mais avec un grand volume de vapeur et les secondes sont plus efficaces en ce qui concerne la distillation en raccourcissant sa durée.

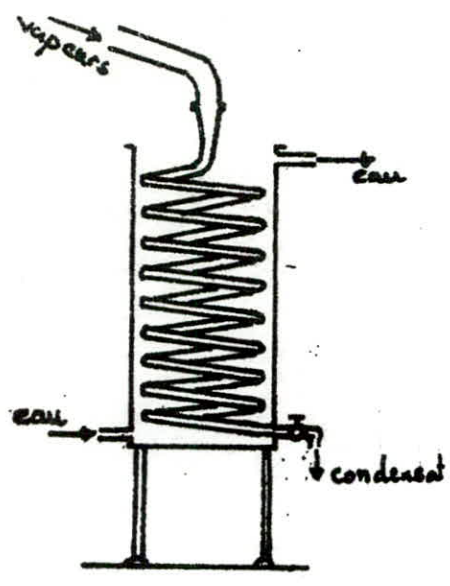


Figure 7 : condenseur à serpentín

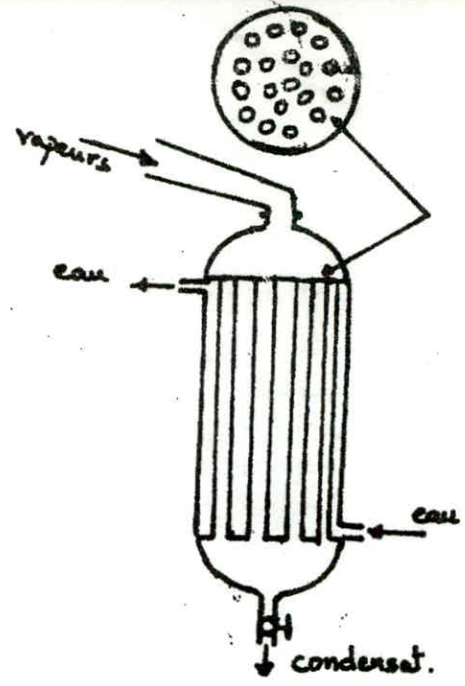


Figure 8 : condenseur tubulaire

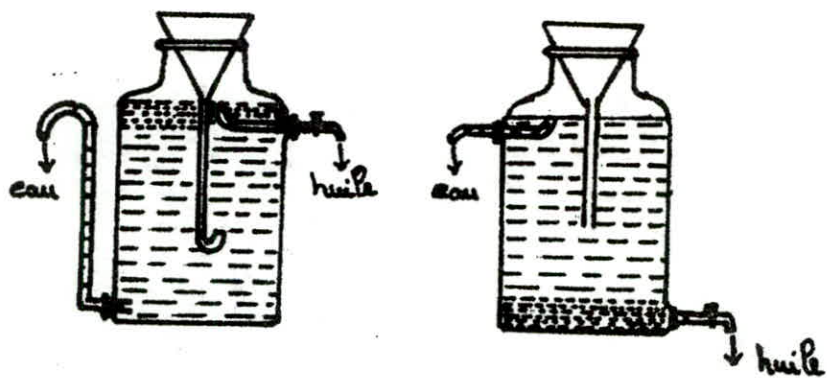


Figure 9 : vases Florentins

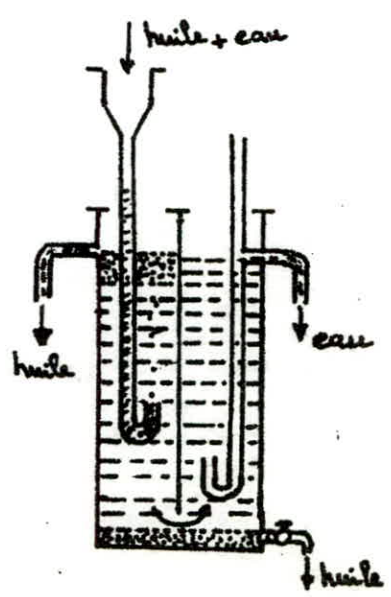


Figure 10 : séparateur d'huile

IV. BASES THEORIQUES DE LA DISTILLATION A LA VAPEUR

IV-1 Définition

La distillation est un processus de séparation de composés ou de mélanges de composés du fait de la différence dans leur volatilité ou dans leur pression de vapeur .

La distillation à la vapeur est une technique de distillation dans laquelle la vapeur d'eau est en contact direct avec le mélange à distiller. Essentiellement, il s'agit de vaporiser une substance en faisant passer de la vapeur d'eau dans un mélange d'eau et de cette substance . (8)

Plus généralement , la distillation conduite en présence d'un composé inerte tel que l'azote, le dioxyde de carbone, etc ... est régie par les mêmes relations fondamentales que la distillation à la vapeur d'eau.

La vapeur d'eau est utilisée en raison de son apport d'énergie , de son faible prix et de sa disponibilité.

L'avantage principal de ce mode de rectification est l'abaissement du niveau de température où la suppression du bouilleur.

Par contre l'introduction d'eau dans le système entraîne une perte en produit.

IV-2 Utilisation de la distillation à la vapeur d'eau

Plusieurs cas se présentent:

- Cas où le produit à distiller est thermiquement instable ou pouvant réagir avec d'autres composés à la température d'ébullition .
- Cas où le mélange à distiller est constitué de deux liquides aux températures d'ébullition élevées .
- Cas de séparation de deux liquides dont l'un est volatil en présence d'eau.
- Cas où le liquide distillé est non miscible avec l'eau.
- Cas où les autres méthodes de distillation ne sont pas suffisantes ou présentent un danger.
- Cas où le produit à haut point d'ébullition ne peut pas être distillé par un chauffage direct sous basse pression.

IV-3 Principe et théorie de la distillation à la vapeur

La mixture de deux liquides immiscibles ne conduit pas à une phase liquide homogène, mais à deux couches superposées. Pour la séparation d'un tel mélange, il ne serait pas nécessaire de faire appel à la distillation mais les lois régissant l'équilibre entre les deux phases liquides sont à la base d'une technique spéciale de distillation appelée entraînement à la vapeur ou distillation à la vapeur ou coddistillation.

- Cas d'un binaire (eau + un liquide)

Placés dans un ballon, ils forment deux couches superposées complètement insolubles l'une dans l'autre. Mais supposant que l'agitation soit suffisante pour que ces deux liquides viennent au contact de la phase vapeur, maintenue à une pression constante, égale, par exemple à la pression atmosphérique. L'expérience montre que le nombre total de molécules présentes dans la phase vapeur au dessus d'un mélange liquide à deux phases à une température donnée, est égal à la somme des nombres de molécules présentes, si chaque liquide est traité tout seul. C'est à dire, que tout se passe comme si chaque substance se vaporisait seule, indépendamment de l'autre. Donc la pression de vapeur d'un mélange de deux liquides non miscibles ne dépend pas de la fraction molaire de chaque composant, mais dépend seulement de leur pression de vapeur. La pression partielle de chaque substance est égale à sa pression de vapeur à la température considérée:

$$P_e = P_e^0$$

$$P_l = P_l^0$$

avec $P = P_e + P_l$

P : La pression totale

P_e^0 : Pression de vapeur de l'eau

P_e : Pression partielle de l'eau

P_l^0 : Pression de vapeur du liquide

P_l : Pression partielle du liquide

- Cas des huiles essentielles

Un système d'eau et d'huile essentielle forme un liquide à deux phases. La pression de la phase vapeur est maintenue constante, soit en reliant l'espace vapeur avec l'atmosphère soit par un contrôle judicieux pour maintenir une pression réduite élevée. Ceci nous ramène à la discussion de la distillation des liquides hétérogènes qui prévoit que la pression totale exercée par un tel mélange est due à la somme des pressions de chaque type de molécule. Alors la pression de vapeur totale du mélange est égale à la somme des pressions partielles des vapeurs. (7)

IV-3-1 Température d'ébullition (ou de distillation) du mélange

La règle d'additivité des pressions partielles offre un moyen d'estimation de la température à laquelle toute distillation à la vapeur va survenir.

Quand la température d'un liquide est abaissée, la tendance des molécules de ce liquide d'aller en phase vapeur diminue, donc la concentration des molécules en phase vapeur diminue aussi et conséquemment la pression de vapeur.

Alors la température va être diminuée à une valeur telle que la pression totale exercée par le mélange vapeur soit de nouveau égale à la pression de travail.

Ainsi la température d'ébullition pour tout liquide à deux phases va être toujours inférieure au point d'ébullition de chacun des liquides purs à la même pression totale.

Pour la détermination de cette température, nous procédons à une résolution graphique.

1^{ère} Méthode

Nous traçons d'abord un diagramme de la pression de vapeur en fonction de la température avec deux orientations de l'axe des ordonnées. Sur la partie en dessous de l'axe des abscisses est portée la pression de vapeur de l'eau en fonction de la température et sur la partie au dessus, la pression de vapeur du liquide en fonction de la température.

A partir du point d'ébullition du liquide, nous traçons une parallèle à la courbe de la partie supérieure. L'intersection de cette parallèle avec la courbe se trouvant en dessous de l'axe des abscisses donne un point à partir duquel on trace une perpendiculaire à l'axe des abscisses et l'intersection nous donne la température d'ébullition du mélange. (9)

Exemple: binaire (eau - aniline)

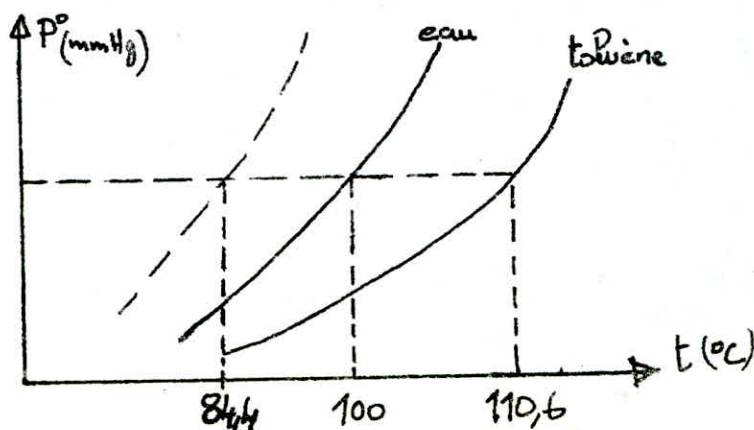
Les résultats de la pression de vapeur en fonction de la température pour les deux liquides sont regroupés sur le tableau suivant:

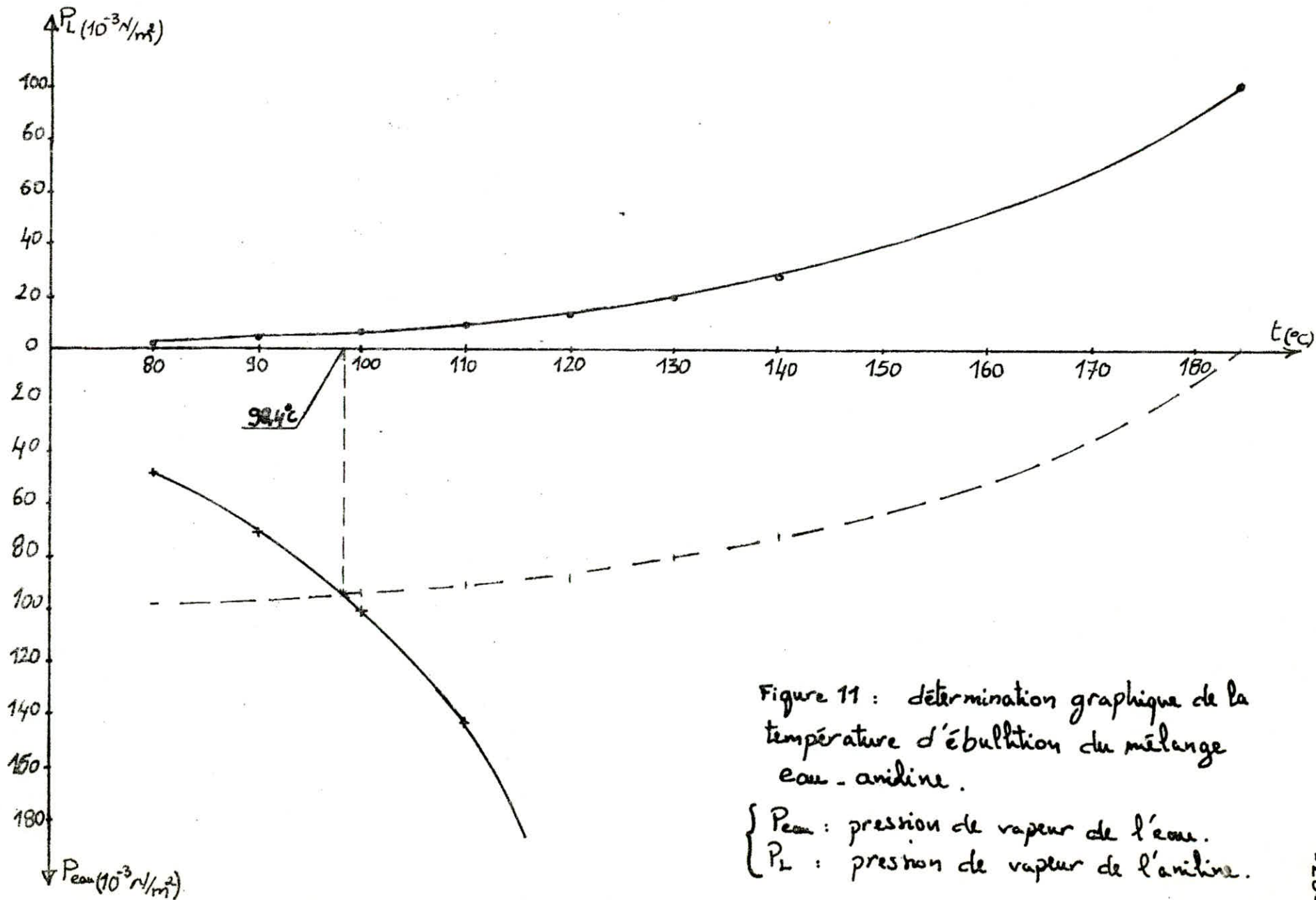
T (°C)	80	90	100	110	120	130	140	184,4
$P_1 \cdot 10^{-3}$ (N.m ⁻²)	2,40	3,90	6,10	9,23	12,9	19,3	27,2	101,3
$P_e \cdot 10^{-3}$ (N.m ⁻²)	47,4	70,1	101,3	143,3	198,5	270,1	361,4	

Avec ces valeurs, nous traçons le diagramme de la pression de vapeur en fonction du temps (figure 11) et nous déduisons graphiquement la température d'ébullition du mélange eau-aniline. $T_{eb} = 98,4$ °C.

2^e Méthode

On peut prévoir la température d'ébullition du mélange par résolution graphique: on cherche l'intersection de la droite d'ordonnée $P=760$ mm Hg, par exemple, avec la courbe somme des pressions de vapeur de l'eau et du toluène. (10)





IV-3-2 Composition de la phase vapeur à pression atmosphérique

- Cas d'un binaire (eau + un liquide)

A une pression constante d'une ou quelques atmosphères il est justifié de considérer que la phase vapeur obéit à la loi des gaz parfaits. Il en résulte que la composition de la phase vapeur est déterminée par application de la loi de Dalton .

$$y_e = \frac{P_e}{P} = \frac{P_e^0}{P}$$

$$\text{et } y_l = \frac{P_l}{P} = \frac{P_l^0}{P}$$

y_e : fraction molaire de la vapeur d'eau dans la phase vapeur.

y_l : fraction molaire de la vapeur du liquide dans la phase vapeur.

La composition de la phase vapeur est donc indépendante de la composition de la phase liquide, et reste constante tant que les deux constituants sont présents dans la phase liquide.

Cette composition formée d'un mélange liquide à deux phases dépend des pressions de vapeur partielles de ces constituants purs. Le rapport entre les poids des composants du mélange va être donné par le rapport de leurs pressions de vapeur multiplié par le rapport de leurs poids moléculaires. (11)

$$\frac{W_{H_2O}}{W_L} = \frac{P_{H_2O}^0}{P_L^0} \cdot \frac{M_{H_2O}}{M_L}$$

W_{H_2O} : poids de l'eau

W_L : poids du liquide

$P_{H_2O}^0$: pression de vapeur de l'eau

P_L^0 : pression de vapeur du liquide

M_{H_2O} : masse moléculaire de l'eau

M : masse moléculaire du liquide

Dans la distillation à la vapeur d'eau des matières végétales, il est possible de changer substantiellement le rapport de l'eau à l'huile dans le condensat par changement de la pression de travail.

$$\frac{W_{H_2O}}{W_{huile}} = \frac{P_{H_2O}}{P_{huile}} \cdot \frac{M_{H_2O}}{M_{huile}}$$

Dans toute distillation à la vapeur d'eau utilisant les vapeurs saturées, la somme de la pression de vapeur de l'eau et celle de l'huile va égaler la pression de travail et la température de l'alambic va automatiquement s'ajuster jusqu'à ce que cette condition soit accomplie. En général la pression de vapeur de l'eau diminue beaucoup plus lentement avec la température que la pression de vapeur de l'huile essentielle tel que le rapport des poids de l'eau à l'huile augmente. Réciproquement, ce rapport diminue avec l'augmentation. (7)

III- PARTIE EXPERIMENTALE

1. APPAREILLAGE ET MODE OPERATOIRE

L'huile essentielle est obtenue par distillation à la vapeur d'eau .

L'appareillage en verre comprend les parties suivantes:

un, deux, trois ballons de deux litres sont chauffés pour produire de la vapeur (figure 12). Ces ballons sont fermés de bouchons de deux trous; dans l'un est inséré un tube de verre plongeant dans l'eau et servant à prévenir toute surpression pouvant se créer à l'intérieur du système; l'autre ouverture assure le passage de la vapeur d'eau dans le mélange réactionnel.

Un ballon de quatre litres à 4 orifices (3 pour l'entrée de la vapeur d'eau et 1 pour la sortie de la vapeur chargée d'huile) contient la matière végétale (coupée en petits morceaux). Ce ballon de quatre litres est suivi d'un réfrigérant où les vapeurs chargées d'huile sont totalement condensées, et enfin un collecteur où le condensat est recueilli.

Pour distiller à la vapeur, nous portons à ébullition l'eau constituant la source de vapeur sans la relier au ballon qui contient la matière végétale. Lorsque l'ébullition commence , nous ~~branchons~~ branchons la source de vapeur au ballon de distillation. L'entraînement continue jusqu'à ce que les gouttelettes condensées ne contiennent plus d'huile essentielle à leur surface (condensat devient limpide). L'huile essentielle (phase surnageante) est séparée de l'eau par simple décantation.

- Isolation du ballon de distillation et des ballons de production de vapeur.

Au cours des premières expériences, nous avons remarqué qu'une partie des vapeurs se condensait avant d'atteindre le réfrigérant

Figure 12

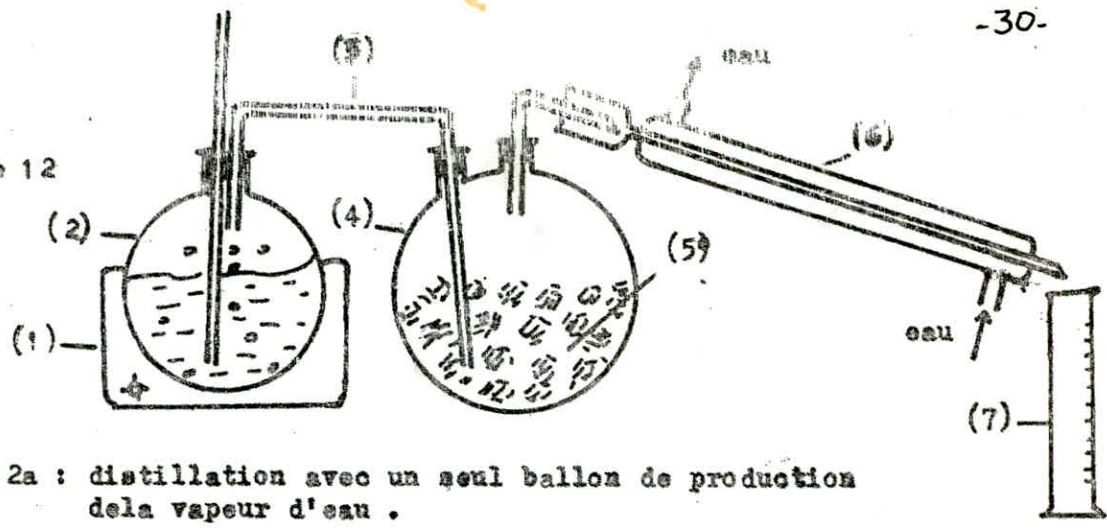


Fig 12a : distillation avec un seul ballon de production de la vapeur d'eau .

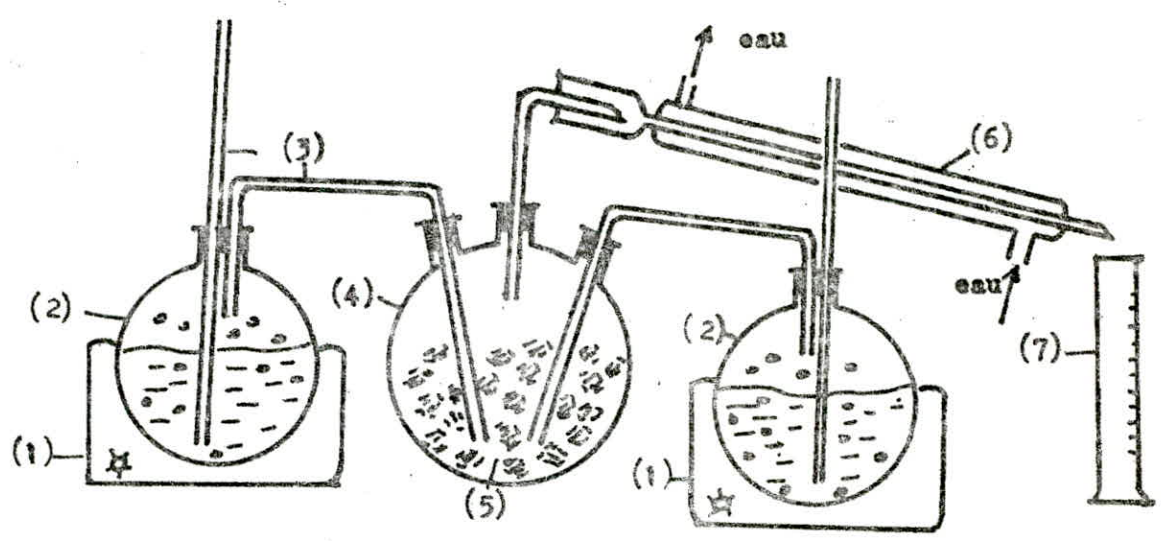


Fig. 12b : distillation avec deux ballons de production de la vapeur d'eau .

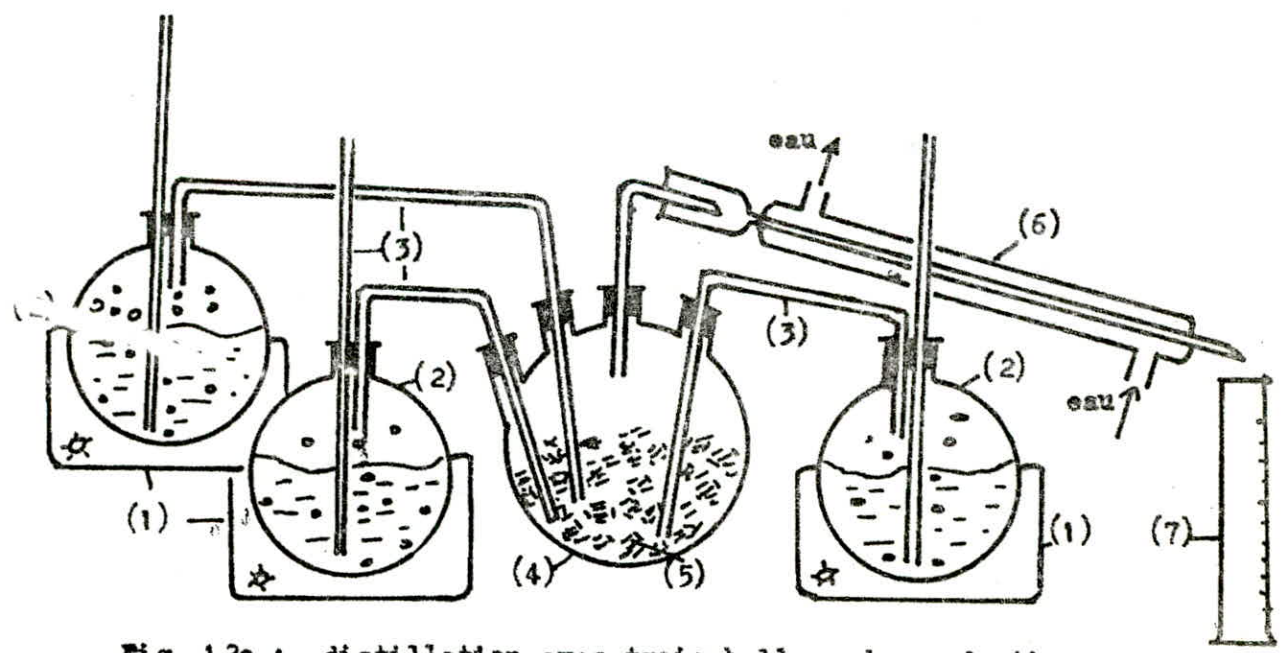


Fig. 12c : distillation avec trois ballons de production de la vapeur d'eau .

- 1-chauffe-ballon.
- 2-ballon de production de vapeur.
- 3-tubes de verre .
- 4-ballon de distillation.
- 5-matière végétale.
- 6-réfrigérant.
- 7-collecteur de condensat.

ou les tubes en verre et revenait dans les différents ballons. Cette défaillance est due à l'existence d'un gradient de température résultant de la différence de température entre le bas des ballons où il y a naissance des vapeurs et le haut de ces mêmes ballons, ce qui provoque une perte de chaleur.

Pour remédier à ce problème, nous avons calorifugé avec de l'amiante le ballon de distillation ainsi que les ballons de production de vapeur.

2- Matière végétale " Eucalyptus "

Les expériences ont été réalisées sur des feuilles jeunes et adultes d'arbres parfaitement identifiés par le département botanique de l'INA (Institut National Agronomique).

Pour l'Eucalyptus rostrata: les feuilles ont été cueillies des arbres de l'Ecole Nationale Polytechnique.

Pour les feuilles d'Eucalyptus gomphocephala et globulus : elles provenaient d'une plantation à Ben Aknoun près d'Alger . Le traitement de ces feuilles avant la distillation consistait à les couper en petits morceaux et de les utiliser soit fraîches, soit sèches.

- Mesure de la densité

Nous remplissons un pycnomètre préalablement lavé, séché et taré, avec l'huile essentielle, que nous pesons. Nous le remplissons ensuite avec de l'eau distillée que nous pesons aussi.

Etant donné le même volume d'huile et d'eau distillée, la connaissance de la tare du pycnomètre ainsi que la masse volumique de l'eau distillée nous permettent de déterminer la densité des huiles extraites des différentes expériences.

- Mesure de l'indice de réfraction

nous mesurons l'indice de réfraction de l'huile avec le réfractomètre de Abbe lié à un bain thermostaté à 20°C.

- Mesure du débit de la vapeur d'eau.

Nous nous sommes assurés d'abord que la condensation des vapeurs était totale, ensuite nous avons procédé au calcul du débit volumique du condensat qui peut être considéré comme débit massique de la vapeur d'eau car ce condensat est constitué à plus de 99% en volume d'eau. nous pouvons calculer le débit volumique correspondant à la vapeur en connaissant la pression et la température (voire résultats expérimentaux).

- calcul du rendement

nous avons retenu pour le calcul des rendements, la méthode faisant intervenir directement des rapports de poids.

$$R\% = \frac{\text{masse de l'huile extraite}}{\text{masse de la charge}} \times 100$$

3- Résultats expérimentaux et discussion.

A- Feuilles fraîches d'Eucalyptus.

- Avant l'isolation du ballon de distillation et les ballons de production de la vapeur.

nous avons réalisé quatre essais; le premier sur l'Eucalyptus rostrata, le second sur l'Eucalyptus gomphocephala et les deux derniers sur l'Eucalyptus globulus.

La distillation lors de ces essais a été menée avec deux ballons de production de vapeur.

Voici les résultats de ces essais:

- *Eucalyptus rostrata*

charge : 600 g

volume d'huile recueilli 1,5ml

densité à 20°C 0,915

indice de réfraction à 20°C 1,4842

d'où le rendement en huile 0,23%

- *Eucalyptus gomphocephala*

Sur une charge de 600 g, nous n'avons pas pu recueillir d'huile. Nous avons remarqué seulement l'existence de particules de couleur blanche et quelques traces d'huile en suspension. Le rendement est donc négligeable.

- *Eucalyptus globulus*

1- charge : 500 g

volume d'huile recueilli 2,8ml

densité à 20°C 0,918

indice de réfraction à 20°C 1,4652

d'où le rendement en huile 0,51 %

2-charge : 250g

volume d'huile recueilli 1ml

densité à 20°C 0,918

indice de réfraction à 20°C 1,4652

d'où le rendement en huile 0,37 %

Discussion :

Après avoir réalisé ces quatre essais, nous pouvons conclure que les trois espèces d'*Eucalyptus* étudiées contiennent de l'huile. Mais l'*E. globulus* est le meilleur des trois espèces car il contient plus d'huile que les deux autres espèces.

Au cours de ces essais, nous avons remarqué qu'une partie des vapeurs naissante du mélange réactionnel et celles des ballons de production de vapeur se condensait et revenait dans les différents ballons. Pour cette raison, nous avons isolé les ballons comme c'est mentionné dans le premier paragraphe de la partie expérimentale afin d'éviter cette condensation .

- Après l'isolations des différents ballons.

Après avoir vérifié que nous pouvons extraire de l'huile d'Eucalyptus par distillation à la vapeur d'eau et que cette technique de distillation dépend beaucoup de la quantité ou du débit de la vapeur d'eau, nous allons travaillé dans cette partie d'une manière systématique. Nous essayons d'optimiser le rendement en huile en agissant sur deux paramètres importants, en l'occurrence; le débit de la vapeur d'eau (un ballon, deux ballons ou trois ballons de production de vapeur), et la charge (250,500 ou 750g) en feuilles d'Eucalyptus globulus.

Les résultats des différentes expériences sont regroupés sur les tableaux (N° 1, N° 5 et N° 9).

Les tableaux (N° 2,3,4,6,7,8,10,11,12) donnent la variation du débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps pour les différents nombres de ballons de production de vapeur et pour différentes charges que nous représentons sur les figures (N° 13,14 et 15).

TABLEAU N°1 : Résultats de la distillation avec différents débits de vapeur d'eau
Charge : 250 g

	Durée de la distillation (sec)	volume du condensat (ml)	volume d'huile (ml)	Densité à 20°C	Indice de réfraction à 20°C	masse d'huile (g)	Rendement en huile (%)
Un ballon de production de vapeur	4134	700	1,9	0,917	1,4651	1,74	0,70
Deux ballons de production de vapeur	2093	700	1,7	0,918	1,4660	1,57	0,63
Trois ballons de production de vapeur	1440	700	1,4	0,920	1,4665	1,30	0,52

Charge: 250g

TABLEAU N°2 : débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ U N ballon de production de vapeur _

t (sec)	259	393	509	625	730
Q_{10^2} (g/s)	10,4	14,93	17,24	18,00	19,50
t (sec)	844	947	1055	2730	4134
Q_{10^2} (g/s)	19,00	19,50	19,50	19,50	19,50

TABLEAU N°3 : débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Deux ballons de production de vapeur _

t (sec)	108	233	288	344	400
Q_{10^2} (g/s)	18,52	35,30	36,36	35,64	37,04
t (sec)	510	630	970	1130	2093
Q_{10^2} (g/s)	37,04	37,04	37,04	37,04	37,04

TABLEAU N°4 : débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Trois ballons de production de vapeur _

t (sec)	63	115	159	278	316
Q_{10^2} (g/s)	31,75	38,46	45,45	52,63	51,28
t (sec)	354	430	675	840	1440
Q_{10^2} (g/s)	52,63	52,63	52,63	52,63	52,63

Fig. 13 : Débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps
Charge : 250

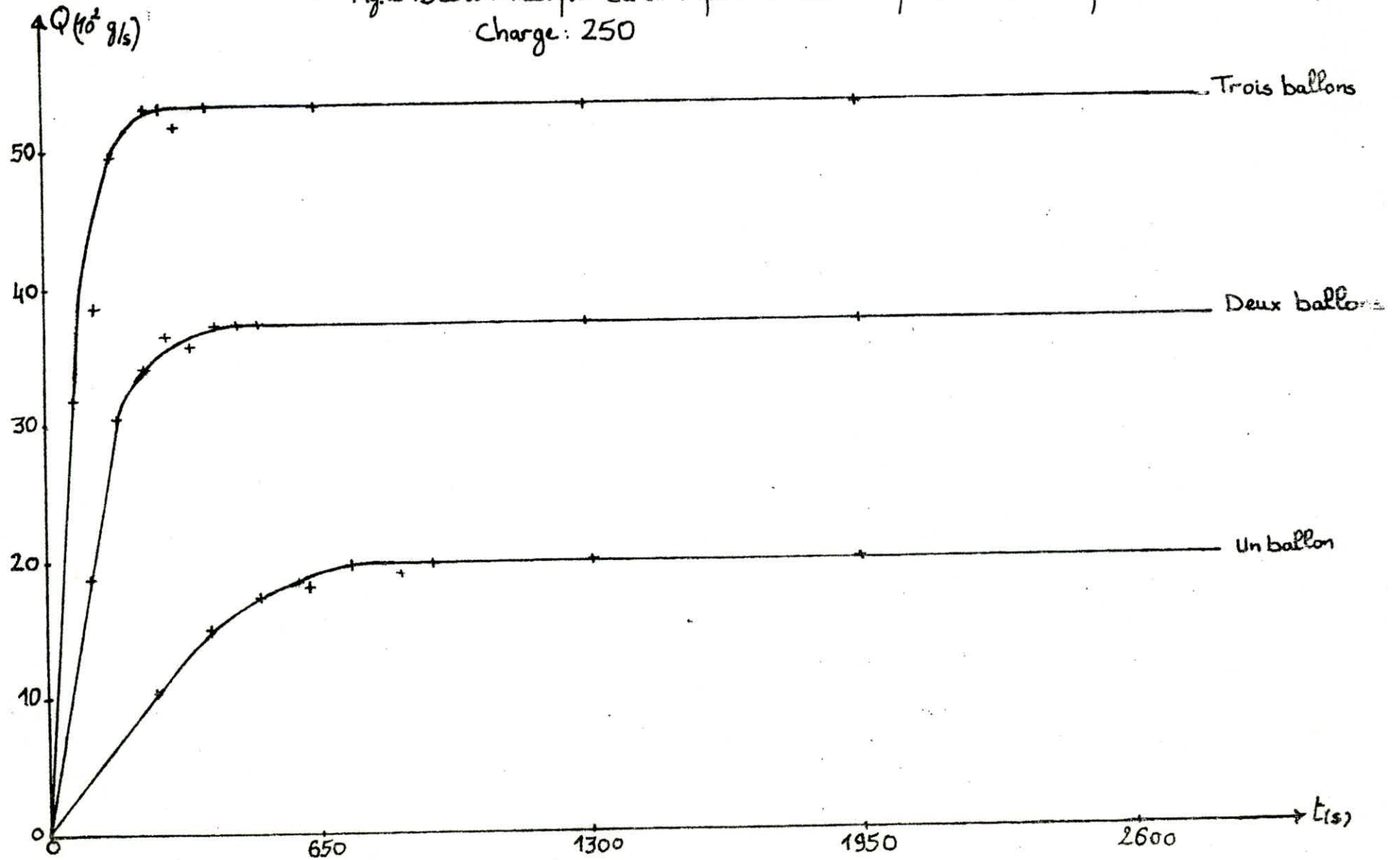


TABLEAU N° 5 : Résultats de la distillation avec différents débits de vapeur d'eau
Charge: 500 g

	Durée de la distillation (sec)	volume du condensat (ml)	volume d'huile (ml)	Densité à 20°C	Indice de réfraction à 20°C	Masse d'huile (g)	Rendement en huile (%)
Un ballon de production de vapeur	6249	1100	4,2	0,917	1,4651	3,85	0,77
Deux ballons de production de vapeur	3229	1100	6,0	0,920	1,4665	5,52	1,10
Trois ballons de production de vapeur	2198	1100	3,0	0,918	1,4665	2,75	0,56

Charge : 500g

TABLEAU N° 6 débit de la vapeur d'eau en fonction du temps.

_ Un ballon de production de vapeur _

$t_{(sec)}$	269	410	526	637	748
$Q_{10^2}(g/s)$	10,00	14,84	17,24	18,02	20,00
$t_{(sec)}$	1072	1180	3200	4130	6249
$Q_{10^2}(g/s)$	20,00	20,00	20,00	20,00	20,00

TABLEAU N° 7 débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Deux ballons de production de vapeur _

$t_{(sec)}$	111	165	225	283	347
$Q_{10^2}(g/s)$	18,86	33,90	33,33	34,48	34,48
$t_{(sec)}$	397	449	501	605	3229
$Q_{10^2}(g/s)$	35,71	37,03	37,03	37,03	37,03

TABLEAU N° 8 débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Trois ballons de production de vapeur _

$t_{(sec)}$	83	152	247	351	397
$Q_{10^2}(g/s)$	24,10	40	50	52,63	52,63
$t_{(sec)}$	433	650	1015	1980	2198
$Q_{10^2}(g/s)$	55,01	52,63	52,63	52,63	52,63

Fig.14 : Débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps
charge : 500g

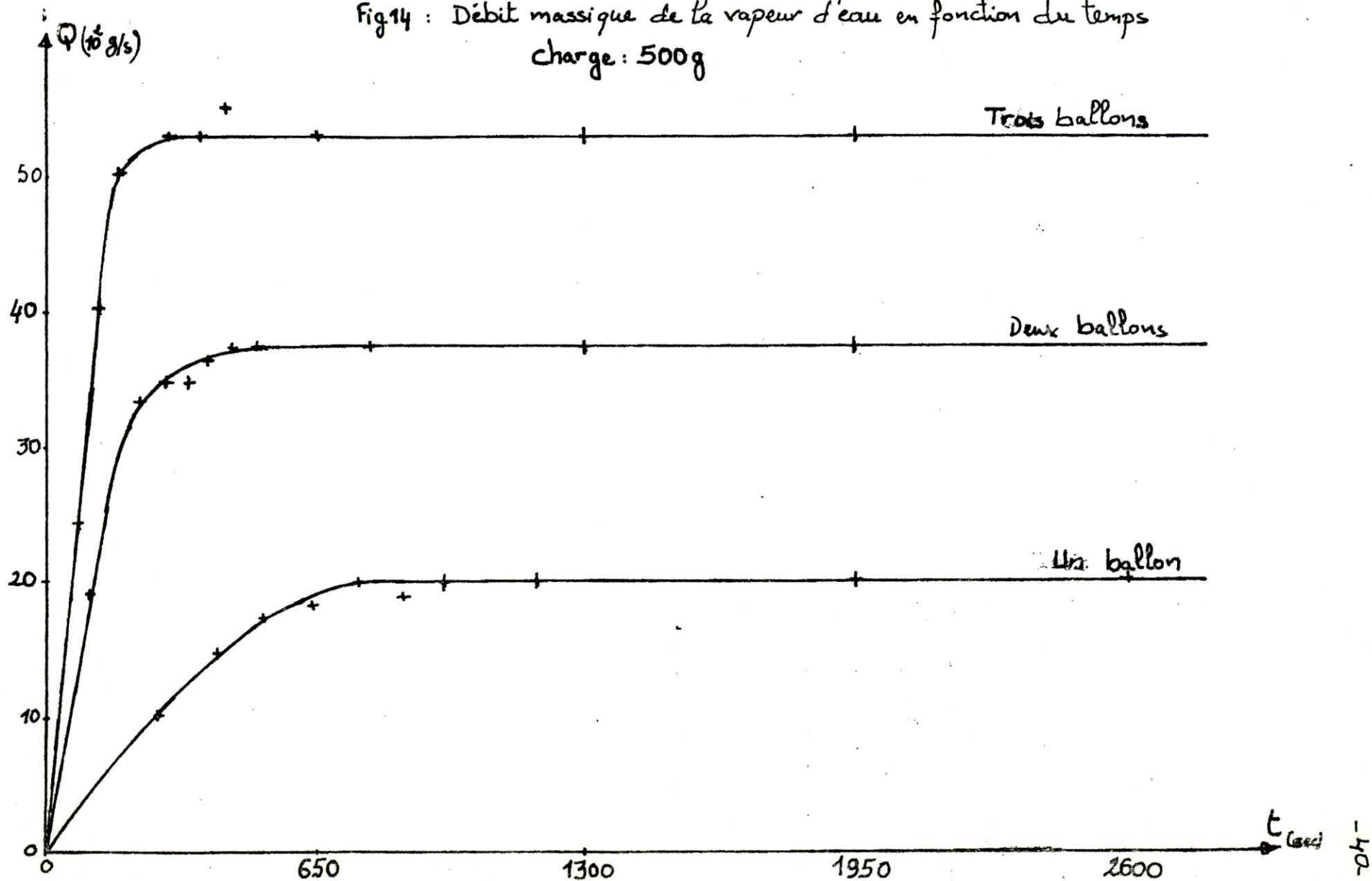


TABLEAU N° 9 : Résultats de la distillation avec différents débits de vapeur d'eau
charge : 750g

	Durée de la distillation (sec)	Volume du condensat (ml)	Volume d'huile (ml)	Densité à 20°C	Indice de réfract ⁿ à 20°C	Masse d'huile (g)	Rendement en huile (%)
Un ballon de production de vapeur	8305	1500	8,2	0,917	1,4651	7,52	1,00
Deux ballons de production de vapeur	4872	1500	7,4	0,920	1,4665	6,81	0,91
Trois ballons de production de vapeur	2982	1500	5,4	0,917	1,4651	4,95	0,66

Charge : 750g

-42-

TABLEAU N° 10, débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Un ballon de production le vapeur _

t (sec)	206	340	462	569	674
Q_{10^3} (g/s)	7,15	13,93	15,39	17,20	18,10
t (sec)	775	875	977	1082	8305
Q_{10^3} (g/s)	19,80	20,00	20,00	20,00	20,00

TABLEAU N° 11 débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Deux ballons de production de vapeur _

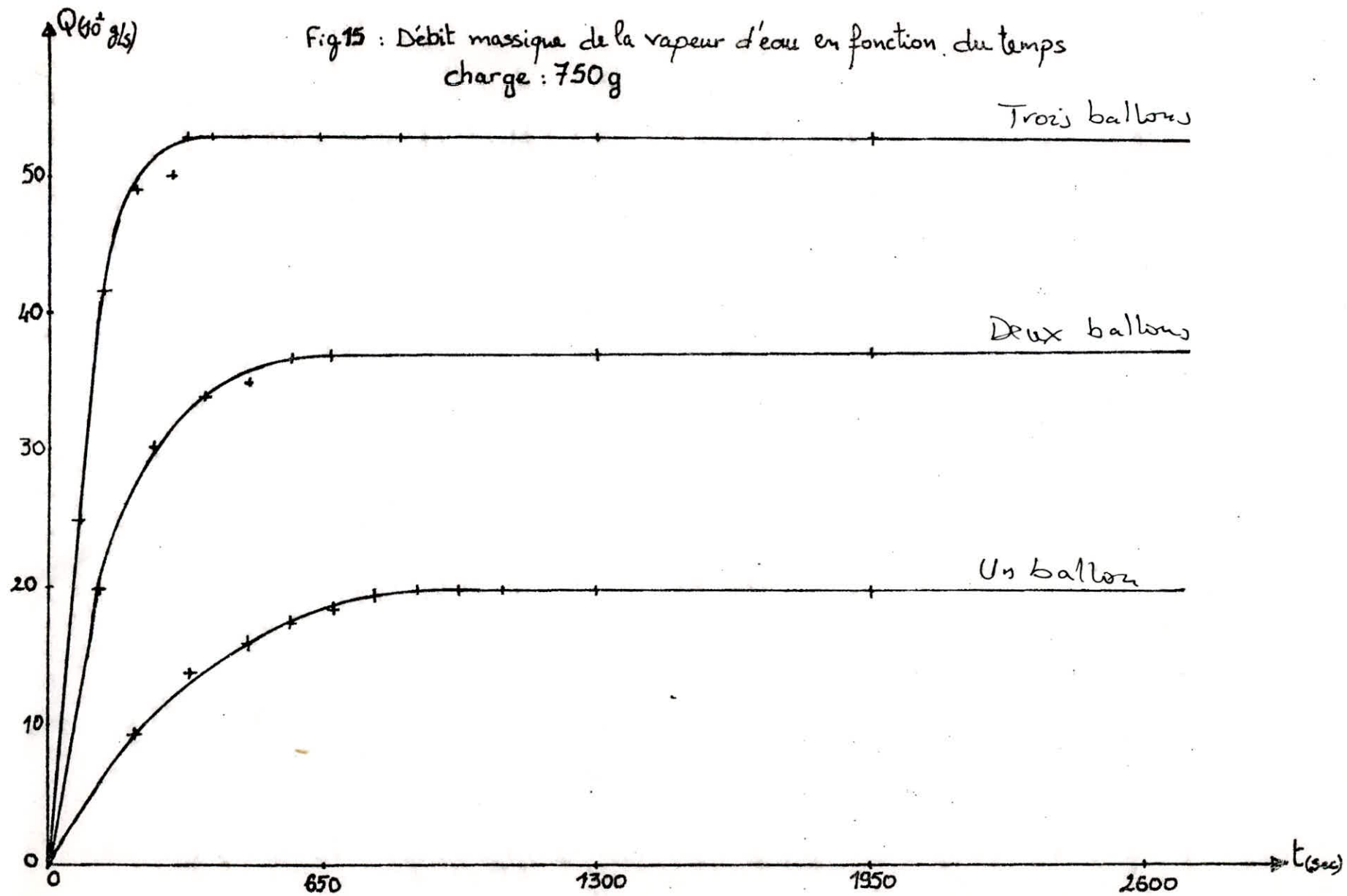
t (sec)	110	244	366	469	569
Q_{10^3} (g/s)	16,00	30,40	33,90	35,00	37,00
t (sec)	662	1300	1945	2650	4872
Q_{10^3} (g/s)	37,00	37,00	37,00	37,00	37,00

TABLEAU N° 12 débit de la vapeur d'eau en fonction du temps;

_ Trois ballons de production de vapeur _

t (sec)	117	195	286	325	384
Q_{10^3} (g/s)	25,31	41,67	50	52,63	52,63
t (sec)	424	830	1220	1600	2982
Q_{10^3} (g/s)	54,1	52,63	52,63	52,63	52,63

Fig 15 : Débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps
charge : 750g



Discussion:

Nous remarquons que le rendement obtenu varie de 0,52 à 1,1 %

TABLEAU N° 13 : rendement en huile en fonction de la charge et du débit de vapeur.

		charge en grammes		
		250	500	750
un ballon de production de vapeur	RENDEMENT (%)	0,70	0,77	1,00
deux ballons de production de vapeur		0,63	1,10	0,91
trois ballons de production de vapeur		0,52	0,56	0,66

Le rendement maximum a été obtenu par une distillation avec deux ballons de production de vapeur d'eau et une charge de 500 grammes d'Eucalyptus globulus.

Ceci peut être expliqué par le fait que nos conditions opératoires ne permettent pas un meilleur rendement que celui obtenu car nous avons remarqué d'une part que tous les réfrigérants utilisés ne permettaient pas une condensation totale des vapeurs lors de l'utilisation de trois ballons de production de vapeur et d'autre part une charge de 750 grammes ne convenait pas pour un ballon de distillation de quatre litres. Cette charge de 750 grammes occupait plus de trois quarts du volume du ballon de distillation d'où une mauvaise circulation de la vapeur d'eau à travers la matière végétale.

- Influence de la charge sur le débit de la vapeur d'eau.

En traçant les courbes donnant la variation du débit de la vapeur d'eau en fonction du temps, nous avons remarqué que ce débit augmente au départ jusqu'à ce qu'il atteigne une valeur constante qu'il garde jusqu'à la fin de la durée de distillation.

Ceci peut être expliqué par le fait qu'au départ, l'équilibre thermique n'était pas encore établi en raison de la différence de température qui existait entre la charge et la vapeur d'eau qui la traversait.

La vitesse d'établissement de cet équilibre thermique dépend beaucoup de la quantité de la charge. Avec une charge plus petite la vapeur met moins de temps à traverser la matière végétale et de ce fait l'équilibre thermique est vite établi. (voir figure 16).

-Avant de clore cette discussion, nous rappelons que le débit massique de la vapeur d'eau peut être converti en débit volumique. Connaissant la pression de travail $P = 1 \text{ atm}$ (pression atmosphérique) et la température d'ébullition de l'eau à cette pression; $T = 100^\circ \text{C}$ et en appliquant la loi des gaz parfaits $PV = nRT$, nous pouvons déterminer la masse volumique de la vapeur d'eau et en conséquence le débit volumique de cette vapeur.

$$PV = nRT \Rightarrow PV = \frac{m}{M} RT \quad \text{d'où} \quad \rho = \frac{m}{V} = \frac{PM}{RT}$$

$$P = 1 \text{ atm}$$

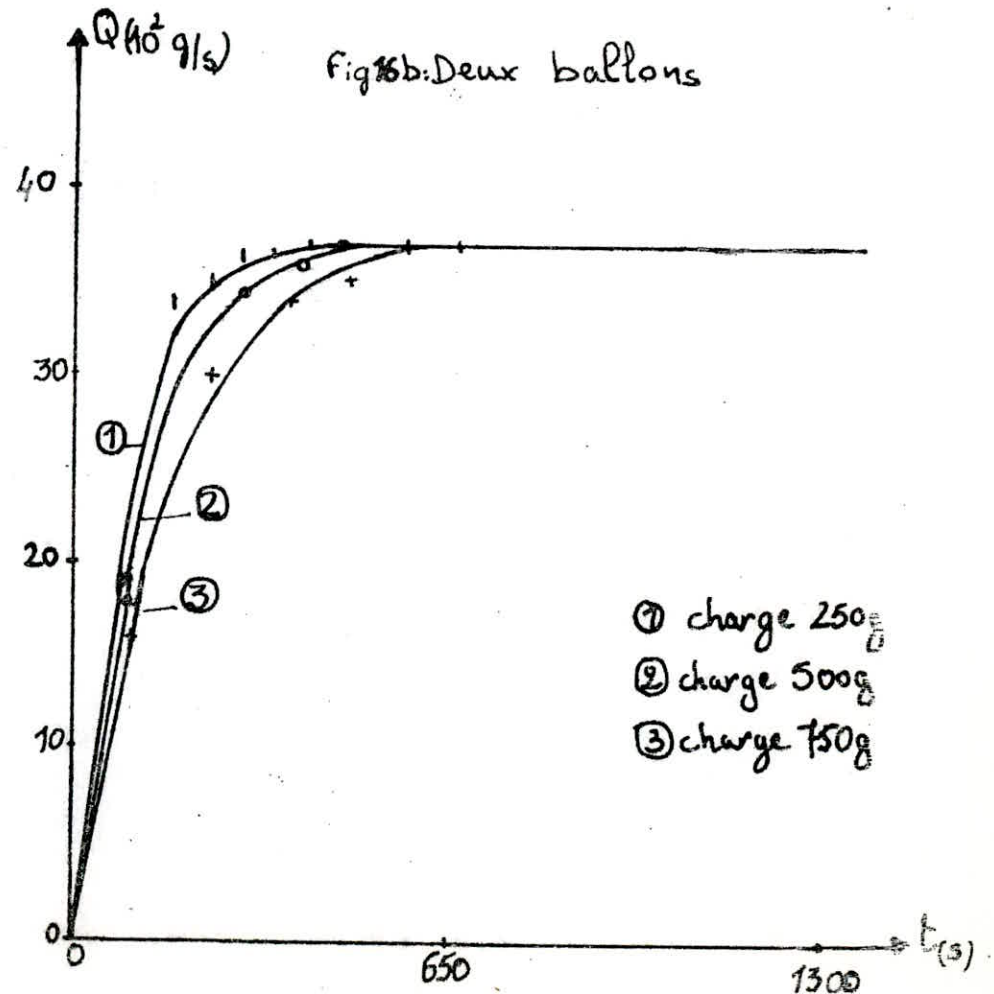
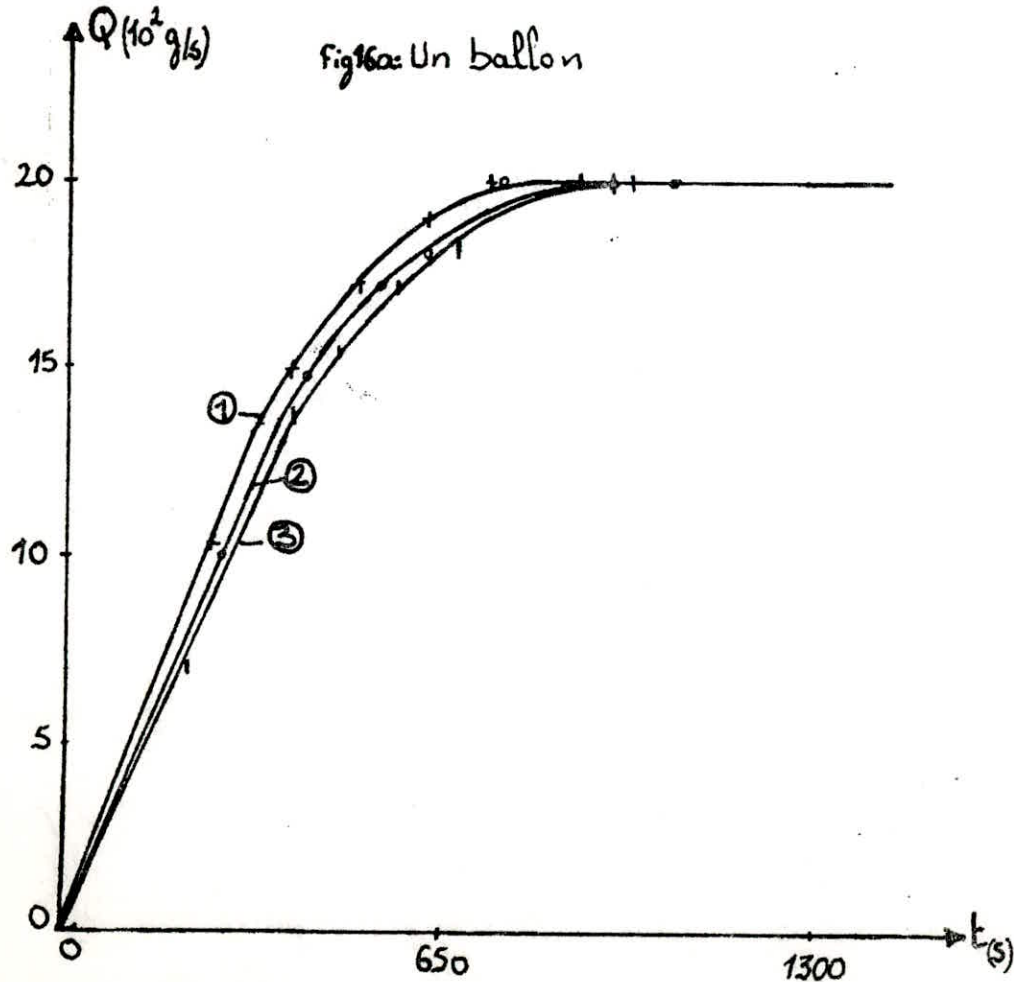
$$M = 18 \text{ g.mol}^{-1}$$

$$R = 0,0821 \text{ atm.mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$$

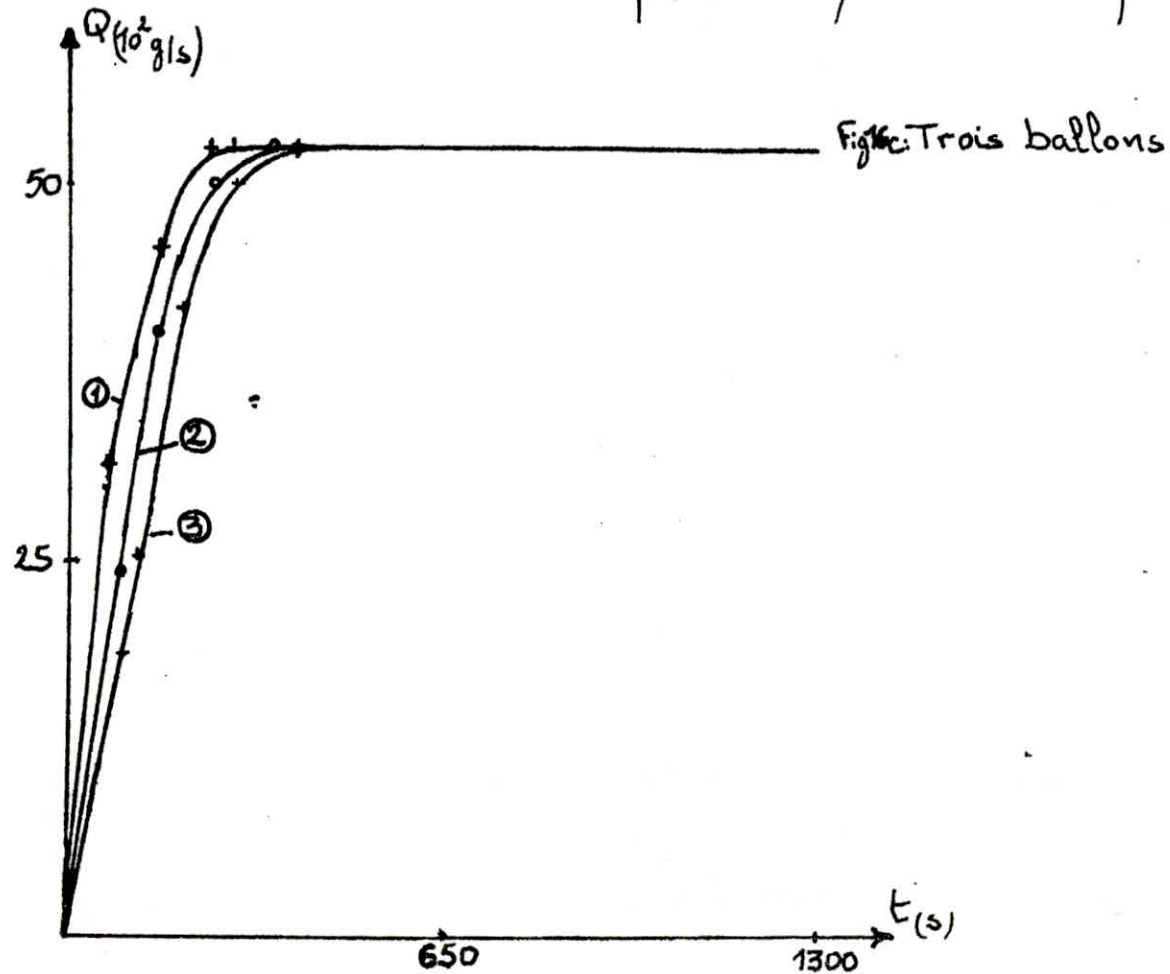
$$\text{alors} \quad \rho = 0,588 \cdot 10^{-3} \text{ g.ml}^{-1}$$

- Influence de la charge sur le débit massique de la vapeur d'eau

Fig. 16 : Débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps pour différentes charges



Débit massique de la vapeur d'eau en fonction du temps pour différentes charges.



- ① charge 250g
- ② charge 500g
- ③ charge 750g

Donc le débit volumique V devient

$$V = \frac{Q}{\rho} = \frac{\text{débit massique}}{\text{masse volumique}}$$

$$V: [\text{ml} \cdot \text{s}^{-1}]$$

$$Q: [\text{g} \cdot \text{s}^{-1}]$$

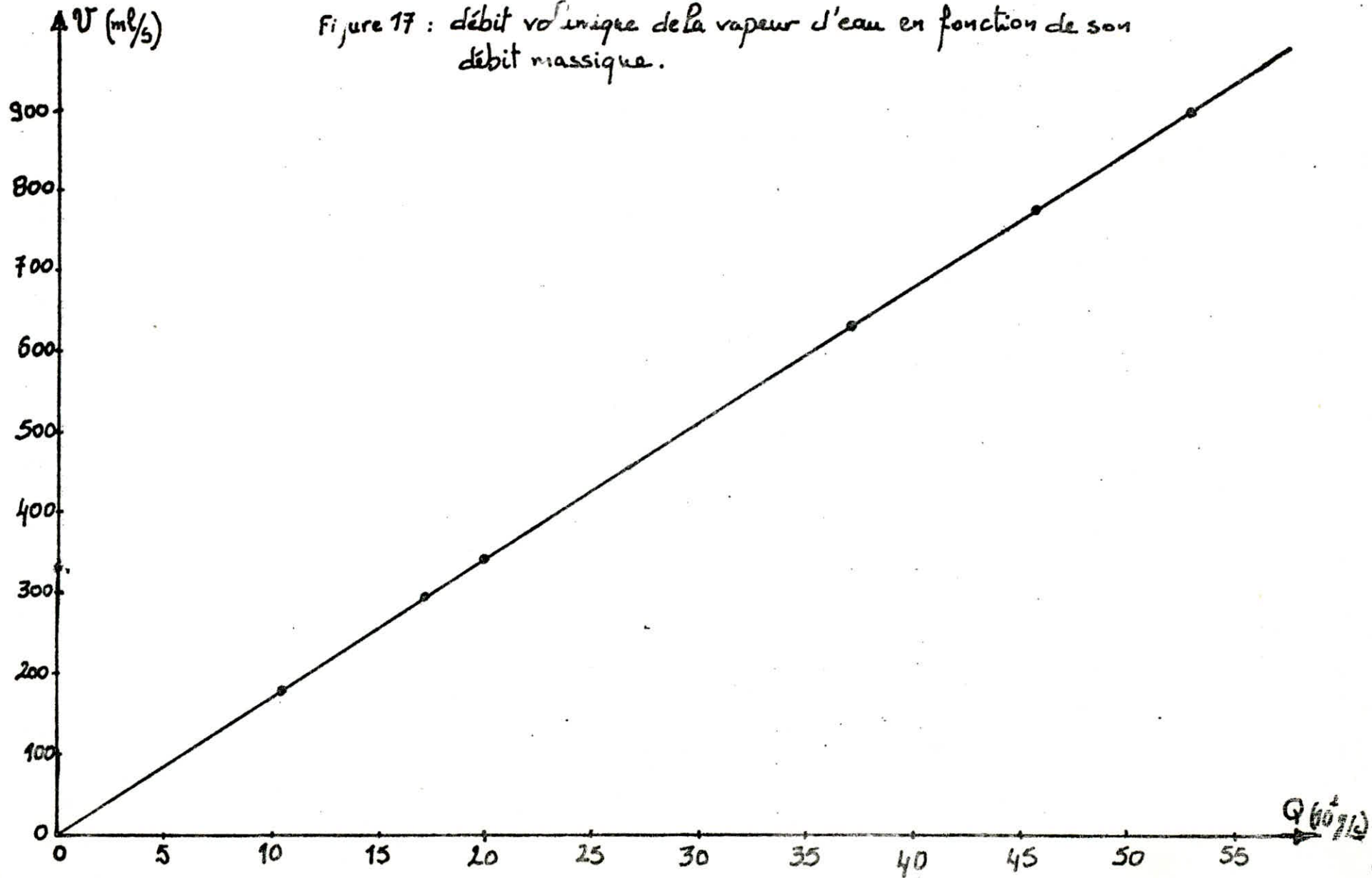
$$\rho: [\text{g} \cdot \text{ml}^{-1}]$$

TABLEAU N° 14 : débit volumique de la vapeur d'eau en fonction de son débit massique

$Q(10^2 \text{ g.s}^{-1})$	10,40	17,24	20,00	37,04	45,45	52,63
$V(\text{ml} \cdot \text{s}^{-1})$	176,87	293,20	340,14	629,93	772,96	895,07

La figure 17 donne la variation du débit volumique en fonction du débit massique de la vapeur d'eau.

Figure 17 : débit volumique de la vapeur d'eau en fonction de son débit massique.



B- Feuilles sèches (Eucalyptus globulus)

pour l'évaporation de l'eau contenue dans les feuilles fraîches, nous avons utilisé deux méthodes

-Dessication à l'air libre

-Dessication à l'étuve à 105°C

Nous avons préparé quatre échantillons que nous avons laissé se dessécher jusqu'à poids constant; le premier à l'étuve à 105°C et les trois derniers à l'air libre mais dans des conditions différentes; un, dans un endroit sans grande circulation d'air, un autre exposé au soleil et le dernier à l'air libre et à l'abri du soleil.

La distillation a été menée sur des charges de 500 grammes de feuilles sèches et avec deux ballons de production de vapeur (durée 2 heures) les rendement en huile essentielle ainsi que la perte en poids des feuilles d'Eucalyptus globulus sont regroupés sur le tableau n° 15.

TABLEAU N°15 : rendement en huile et perte en poids pour des feuilles d'Eucalyptus globulus.

	1er échant.	2ème échant.	3ème échant.	4ème échant
perte en poids(%)	47,5	22	43,4	45
rendement en huile (%)	0,35	1,47	0,74	0,70

La perte en poids des feuilles d'E. globulus a été calculée par l'expression suivante :

$$\text{perte en poids (\%)} = \frac{\text{poids initial} - \text{poids final}}{\text{poids initial}} \times 100$$

Discussion:

Le meilleur rendement a été obtenue avec le deuxième échantillon qui a perdu 22 % de son poids initial.

Par contre les trois autres échantillons ont donné des rendements relativement faibles par rapport a celui obtenu avec une même charge de feuilles fraîches et avec le même débit de vapeur d'eau. Ceci peut être expliqué par le fait que ces échantillons ont perdu en plus de l'eau, les constituants les plus volatils tels que les alcools et les aldéhydes.

Donc nous pouvons conclure que les conditions de séchage influent beaucoup sur le rendement en huile, en conséquence, il faut éviter de stocker la matière végétale dans des conditions pouvant provoquer une évaporation des constituants volatils.

C- Analyse chromatographique de l'huile essentielle d'Eucalyptus

Les analyses ont été conduites à l'institut de chimie alimentaire de l'école nationale polytechnique de Lodz (Pologne) sur un chromatographe en phase gazeuse GCHF 18.3 (produit par la R D A), muni d'une détection à ionisation de flamme.

Les conditions de travail sont données dans le tableau 16.

- * Les conditions opératoires du chromatographe GCHF 18.3 sont les mêmes pour les deux huiles essentielles; celle d'Eucalyptus globulus et celle d'Eucalyptus rostrata.

TABLEAU N° 16 : Conditions opératoires du chromatographe

GCHF 18,3

longueur de la colonne	3 m
phase stationnaire	PEGA + DECS 6% (phase liquide) sur chromosorb WHMDS
gaz vecteur	azote
débit	40 ml . mn ⁻¹
détecteur	ionisation de flamme
température colonne	programmation linéaire 60 -200°C
sensibilité	vitesse : 8°C . mn ⁻¹ 10 ⁹

Les chromatogrammes n°1 concernant l'huile essentielle d'E. rostrata et n°2 et n°3 concernant l'huile essentielle d'E. globulus (pour le n°3, la quantité injectée était plus importante que celle du n°2) sont représentés sur les figures 18,19 et 20.

La composition en pourcentage et nature des composés identifiés sont données dans les tableaux 17,18 et 19.

-Détermination de la composition quantitative.

Pour la déterminer, nous avons considéré que la concentration (en pourcentage massique) de l'un des constituants C_A dans le mélange est égal à la surface du pic correspondant $S_{(A)}$ divisée par la somme des surfaces $\sum(S)$ des pics de tous les autres constituants, soit

$$C_A = \frac{S_{(A)}}{\sum(S)} \times 100$$

Figure 18: Chromatogramme (n°1) de l'huile essentielle d'*Eucalyptus rostrata*

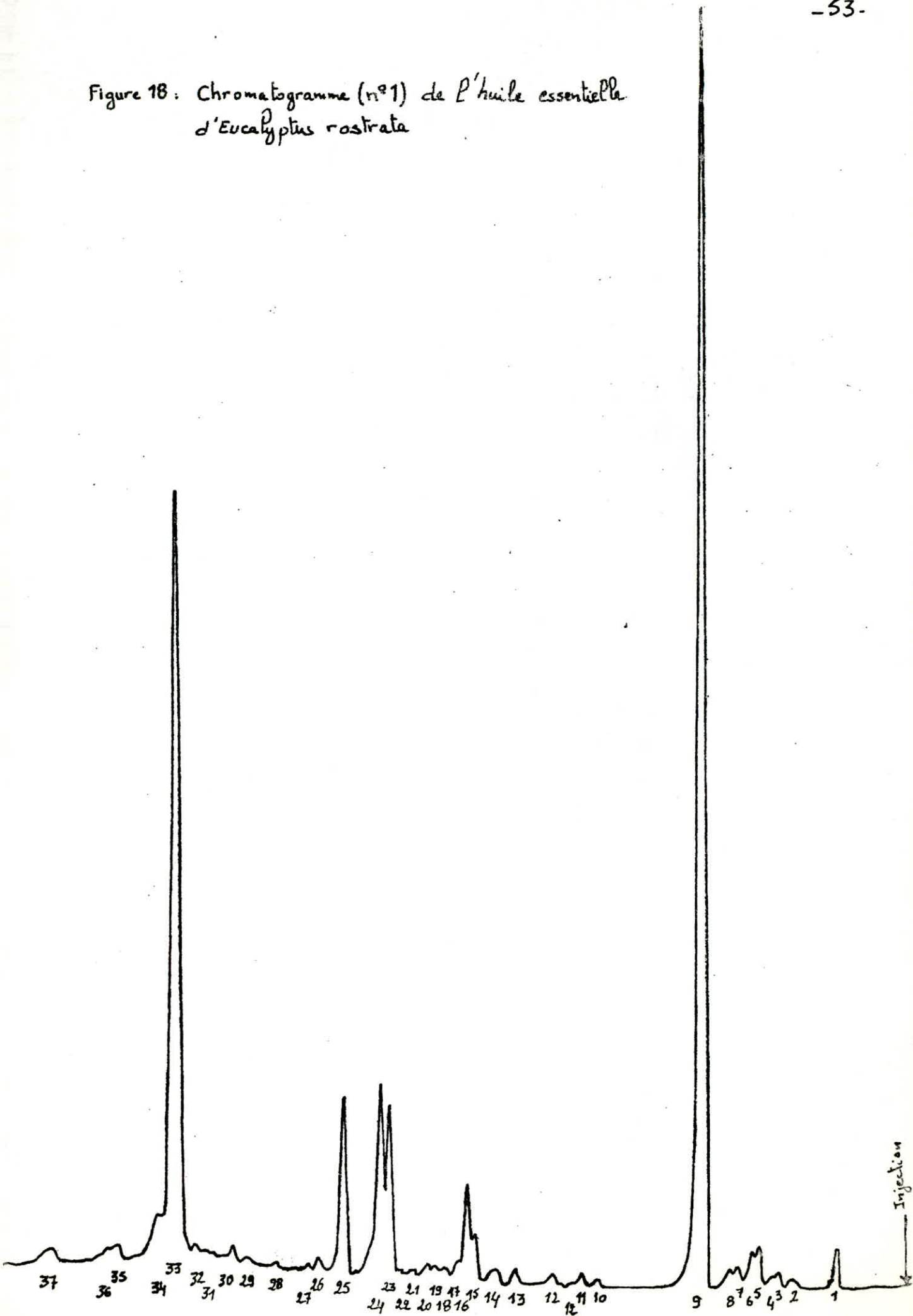


Figure 19: chromatogramme (n°2) de l'huile essentielle d'Eucalyptus globulus.

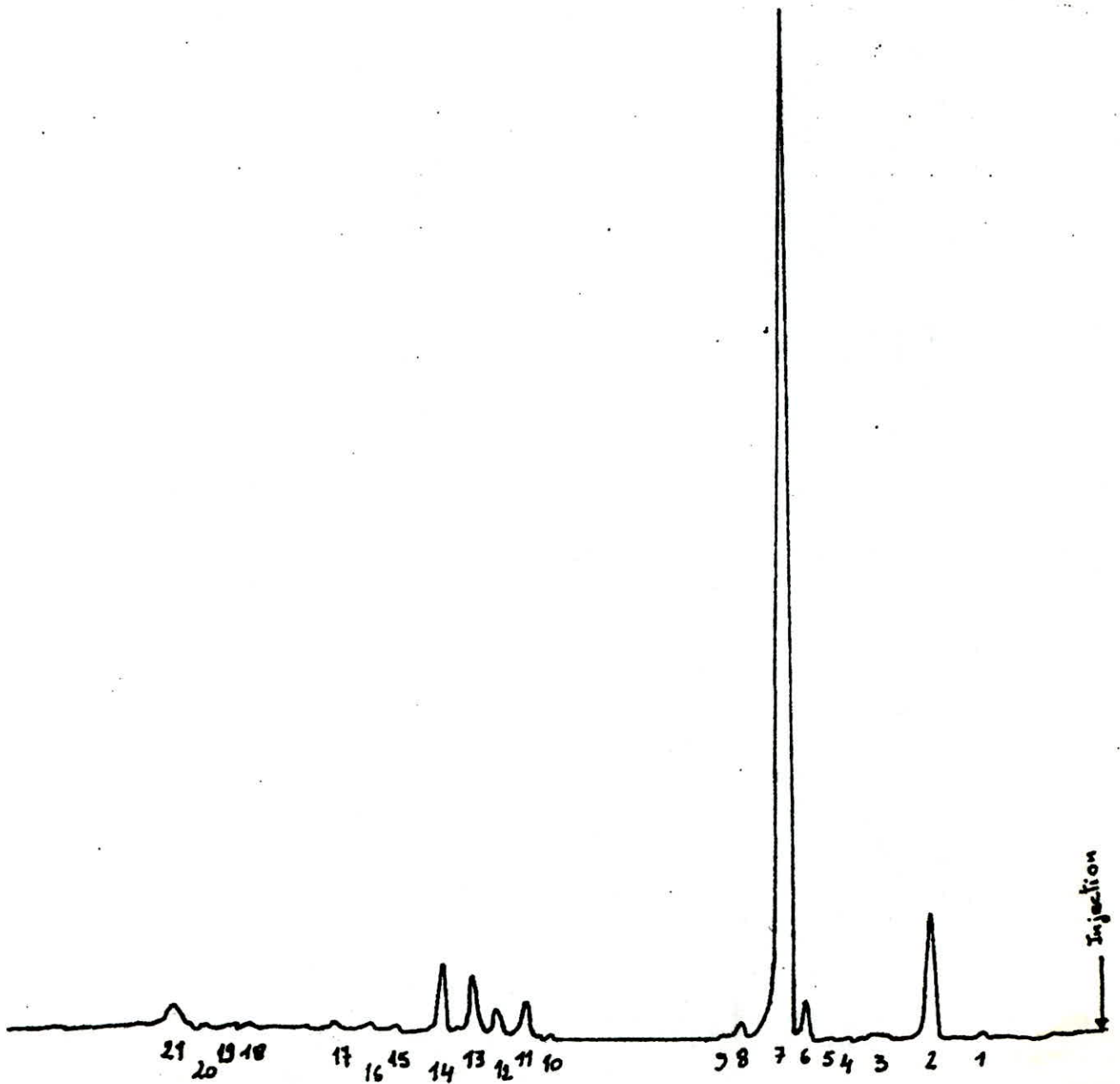


Figure 20 : Chromatogramme (n°3) de l'huile
essentielle d'Eucalyptus globulus.

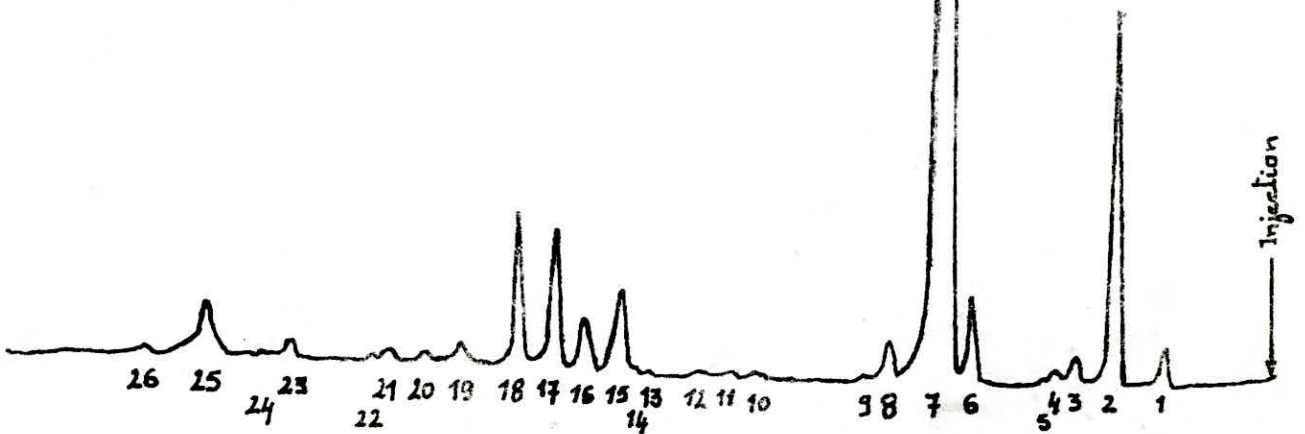


TABLEAU N° 17 : Composition de l'huile essentielle
des feuilles d'*Eucalyptus rostrata*.

N° des pics	Nature du composé	Composition en pourcentage massique
1	α -pinène	1,50
2		0,37
3		0,75
4		0,53
5	limonène	1,50
6		1,50
7	1,8-cinéol	0,75
8	terpinène	0,75
9	p_cymène	39,67
10		0,37
11		0,37
12		0,75
13	linalol	0,75
14		0,75
15		0,75
16		2,99
17		0,75
18		0,37
19		0,22
20	bornéol	0,37
21		0,15
22	citronellal	0,15
23		3,74
24		5,99
25		2,99
26		0,75
27		0,15
28		0,22
29		0,37
30		0,75
31		0,15
32		0,37
33		22,46
34	alcool sesquiterpénique	1,88
35		1,50
36		1,12
37		1,50

TABLEAU N° 18 : Composition de l'huile essentielle
des feuilles d'*Eucalyptus globulus*.

N° des pics	Nature du composé	pourcentage en pourcentage massique
1		0,25
2	α -pinène	12,60
3		0,50
4		0,13
5	β -pinène	0,13
6	limonène	2,52
7	1,8-cinéol	62,97
8	p-cymène	1,26
9		0,25
10		0,25
11		3,78
12		2,52
13		3,78
14	α -terpénéol	3,78
15		0,50
16		0,25
17		0,50
18		0,76
19		0,50
20		0,25
21	sesquiterpène	2,52

TABLEAU N° 19 Δ Composition de l'huile essentielle
des feuilles d'Eucalyptus globulus.

N° des pics	Nature du composé	Composition en pourcentage massique
1		2,10
2	α -pinène	5,43
3		1,24
5	β -pinène	0,12
4	camphène	0,62
6	Limonène	2,48
7	1,8-cinéol	58,31
8	p-cymène	1,86
9		0,37
10		0,25
11		0,37
12		0,25
13		0,50
14		0,62
15		3,72
16		2,48
17		3,72
18	α -terpinéol	3,72
19		1,86
20		1,24
21		1,24
22		0,37
23		1,86
24		0,37
25	sesquiterpène	3,72
26		1,24

Discussion.

Les résultats de l'analyse chromatographique de l'huile essentielle d'*Eucalyptus globulus* ont permis de confirmer la richesse de cette espèce d'*Eucalyptus* en cinéol et de confirmer la présence d' α et β -pinène, limonène et camphène déjà signalés par divers auteurs et aussi de p-cymène, α -terpinéol et de sesquiterpène.

Pour les autres constituants non identifiés, nous suggérons d'utiliser, en plus de la chromatographie, d'autres techniques d'analyse afin d'arriver à leur identification.

En ce qui concerne l'huile essentielle d'*Eucalyptus rostrata*, nous remarquons qu'elle est riche en p-cymène (environ 40%) et qu'elle contient un faible pourcentage massique de cinéol, terpinène, limonène, α -pinène, linalol, bornéol, citronellal et alcool sesquiterpénique.

IV- CONCLUSION

D'après les expériences et les résultats, nous avons pu vérifier que l'huile essentielle d'Eucalyptus peut être extraite par distillation à la vapeur d'eau à partir des trois espèces d'Eucalyptus que nous avons étudié (E. rostrata, E. gomphocephala et E. globulus).

Le rendement en huile est plus important, dans le cas de l'Eucalyptus globulus, il varie de 0,52 à 1,1%. La composition de cette huile est aussi intéressante car elle contient une grande quantité de cinéol (60% environ) lequel possède des propriétés très appréciées en pharmacie.

Le pourcentage d'huile récupéré à partir des différentes expériences montre qu'avec nos conditions opératoires et avec notre appareillage, le rendement est maximum pour une charge de 500 grammes d'E. globulus et deux ballons de production de vapeur d'eau (environ 630 ml. s^{-1}).

L'augmentation du débit de la vapeur d'eau ainsi que la charge n'a pas donné de meilleurs résultats, car d'une part, les différents réfrigérants que nous avons utilisé ne permettaient pas la condensation totale des vapeurs lors de l'utilisation de trois ballons de production de vapeur (895 ml. s^{-1}), et d'autre part, une charge de 750 grammes d'E. globulus ne convenait pas avec les dimensions de notre ballon de distillation. Cette charge de 750 grammes occupait plus de trois quarts du volume du ballon de distillation d'où une mauvaise circulation de la vapeur d'eau et, en conséquence, un faible entraînement de l'huile.

En ce qui concerne l'influence de la fraîcheur des feuilles

d'*Eucalyptus globulus* sur le rendement en huile, nous ne pouvons pas donner une conclusion définitive, nous avons constaté seulement que la perte en poids des feuilles dépendait des conditions de séchage. Donc nous pouvons dire que si l'emmagasinage de la matière végétale ne peut être évité, il faut qu'il soit réalisé dans des conditions adéquates afin de conserver la totalité des constituants de l'huile essentielle. Enfin dans le but d'atteindre un rendement meilleur que celui obtenu lors de notre travail, nous suggérons dans l'avenir d'améliorer l'appareillage prototype de la distillation à la vapeur que nous avons utilisé et de faire une étude détaillée sur l'influence de la fraîcheur (état initial) des feuilles d'*Eucalyptus globulus* sur le rendement et sur la composition de l'huile.

B I B L I O G R A P H I E

- 1- R. DELANGE: Essences naturelles et parfums
Edition: Armand Collin (1930)
- 2- P. FOURNIER: Le livre des plantes médicinales et
vénéneuses Tome II
Edition: Paul Lechevalier (1948)
- 3- Y.R. NAVES: Technologie et chimie des parfums
naturels
Edition: Masson et Cie (1974)
- 4- P. CARRE: Précis de technologie et de chimie
industrielle Tome III
Edition: Librairie J.B. Baillière et fils (1953)
- 5- I.I. SIDOROV: Technologia naturalnyh effirnyh
Edition: Masel - Moskva (1984)
- 6- P. FOURNIER: Matières premières usuelles du
règne végétal
Tome II: Thérapeutique-Hygiène-Industrie
Edition: Masson et Cie (1944)
- 7- E. GUENTHER: Essentiel oils
Tome I et IV
Edition: R.E. KRIEGER (1972)
- 8- M. VAN WINKLE: Distillation (Chemical Series)
Edition: Mc Graw-Hill 1967/
- 9- M. SERWINSKI: Zasady Inzynierii Chemicznej
Edition: W.N.T Varsovie (1971)

10-E.S.PERRY -A.WEISSBERGER: Distillation

(Technique of organic chemistry vol. IV)

Edition: Interscience Publishers (1965)

11- ROBINSON - GILLILAND : Elements of fractional distillation
(Chemical Series)

Edition: Mc Graw-Hill (1950)

