

Optimisation par plan d'expériences de l'extraction de l'huile essentielle du (*thymus pallescens*)

SAHRAOUI. N¹, ABCHICH.H¹., MELLAL.M¹

1. Laboratoire des Phénomènes de Transfert. Département de Génie des procédés. USTHB. BP 32
El Alia. 16111 Bab-Ezzouar. Alger, Algérie.

sahraouinaima65@yahoo.fr

Résumé

Notre étude a porté sur la détermination des conditions optimales de l'extraction de l'huile essentielle par entraînement à la vapeur d'eau.

Pour ce faire, deux méthodes d'optimisation ont été suivies : une optimisation paramétrique et une optimisation par planification des expériences. Trois paramètres opératoires ont été choisis : la masse de thym à traiter, le temps d'extraction et le débit de vapeur d'eau. Le plan d'expériences adopté est le plan composite centré.

Les analyses par CG et CG/ SM ont permis d'identifier 28 constituants représentant 84,5 % de l'huile essentielle et mis en évidence la présence de 11,5 % d'hydrocarbures monoterpéniques, 74,3% de monoterpènes oxygénés, 2,6% de sesquiterpènes et 2,1% de sesquiterpènes oxygénés. Le constituant majoritaire est le Carvacrol avec 68,5 %.

Le rendement optimal obtenu par l'étude paramétrique est égal à 2,96%. Il a été obtenu pour une masse de 25 g, un débit de vapeur de 6 g.min⁻¹ et un temps d'extraction de 20min.

L'optimisation par plan d'expériences a été réalisée en adoptant le plan factoriel à deux niveaux de L'équation qui régit le système est de la forme :

$$Y = a_0 + a_1 X_1 + a_2 X_2 + a_3 X_3 + a_{1,2} X_1 X_2 + a_{1,3} X_1 X_3 + a_{2,3} X_2 X_3 + a_{1,2,3} X_1 X_2 X_3$$

Les variables réelles, sont remplacées par les variables centrées réduites (X_1 , X_2 , X_3) qui représentent, respectivement, la masse de la matière végétale, le temps d'extraction et le débit de vapeur d'eau.

I. INTRODUCTION

L'Algérie possède un patrimoine végétal très riche. Parmi ces plantes aromatiques et médicinales figure le thym. C'est une plante aromatique, médicinale et condimentaire, *Thymus pallescens* appartenant au genre *Thymus* et à la famille des *Labiées* dont les propriétés antibactérienne [1,2], antifongique [3,4] et anti-oxydante [5,6] ont fait l'objet de plusieurs recherches. Bien qu'ayant ces propriétés, à notre connaissance, les travaux relatifs à la plante Algérienne ainsi que sur l'optimisation des procédés d'extraction sont rares [7-9].

Par conséquent, et en raison de son abondance en Algérie, nous nous sommes intéressés à l'extraction de l'huile essentielle de thym (*Thymus pallescens*).

Le but de cette étude est de déterminer les conditions optimales du procédé d'extraction par entraînement à la vapeur d'eau permettant d'aboutir aux meilleurs rendements en huile essentielle. Deux méthodes d'optimisation ont été utilisées: une optimisation paramétrique et une optimisation par plan d'expériences [10,11].

II. MATERIEL ET METHODES

Les parties aériennes du *Thymus pallescens* ont été prélevées dans la région de Aïn Defla, située à environ 160 km à l'Ouest d'Alger. Les essais d'extraction par entraînement à la vapeur d'eau ont été réalisés à l'échelle laboratoire. Le temps d'extraction a été fixé à 30min. Le rendement en huile essentielle a été estimé par rapport à la matière végétale sèche, le taux d'humidité a été déterminé par la méthode de Dean et Stark [12].

$$R_{HE} (\%) = (M_{HE} / M_S) 100 \quad (1)$$

R_{HE} : rendement en huile essentielle (%)
 M_{HE} : masse d'huile essentielle (g) ;
 M_S : masse sèche de matière végétale (g).

L'étude a porté sur l'évaluation de l'influence sur le rendement en huile essentielle R_{HE} des paramètres opératoires, en l'occurrence la masse de thym, le temps d'extraction et le débit de vapeur d'eau. La planification des expériences a été réalisée en adoptant le plan composite centré. Le domaine expérimental de variation des paramètres a été fixé en se basant sur les résultats d'une étude paramétrique. Celui-ci est résumé dans le tableau I.

Tableau I : Domaine de variation des paramètres pour le plan composite centré

Variable \ Niveau		Niveau				
		$-\alpha$	-1	0	1	$+\alpha$
Masse M (g)	X_1	20	20	25	30	30
Débit Q (g.min ⁻¹)	X_2	4	4	6	8	8
Temps t (min)	X_3	2,5	2,5	5	7,5	7,5

L'équation qui régit le système est de la forme :

$$Y = a_0 + a_1 X_1 + a_2 X_2 + a_3 X_3 + a_{1,2} X_1 X_2 + a_{1,3} X_1 X_3 + a_{2,3} X_2 X_3 + a_{1,2,3} X_1 X_2 X_3 \quad (2)$$

Où

Y représente le rendement en huile essentielle et X_1 , X_2 et X_3 les variables réduites relatives à la masse de matière végétale, le temps d'extraction et le débit de vapeur d'eau respectivement. Les coefficients de cette équation, correspondent aux effets simples et d'interaction de deux et trois paramètres.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

III. 1. Analyse de l'huile essentielle

Les analyses par CG et CG/ SM ont permis d'identifier 28 constituants représentant 84,5 % de l'huile essentielle et mis en évidence la présence de 11,5 % d'hydrocarbures monoterpéniques, 74,3% de monoterpènes oxygénés, 2,6% de sesquiterpènes et 2,1% de sesquiterpènes oxygénés. Le constituant majoritaire est le Carvacrol avec 68,5 %.

III. 2. Etude de la cinétique d'extraction

III. 2. 1. Influence du temps d'extraction sur le rendement

Le rendement en huile essentielle obtenue par entraînement à la vapeur d'eau varie entre 1,50 % et 2,96 %. La représentation des variations du rendement en huile essentielle en fonction du temps (Figure 1) montre que la durée d'extraction est relativement courte puisqu'au bout de 30 min le rendement est stable. Nous pouvons aussi remarquer que le rendement augmente rapidement durant les 15 premières minutes, où plus de 89,52 % de l'huile sont extraits, l'augmentation du rendement devient plus lente par la suite.

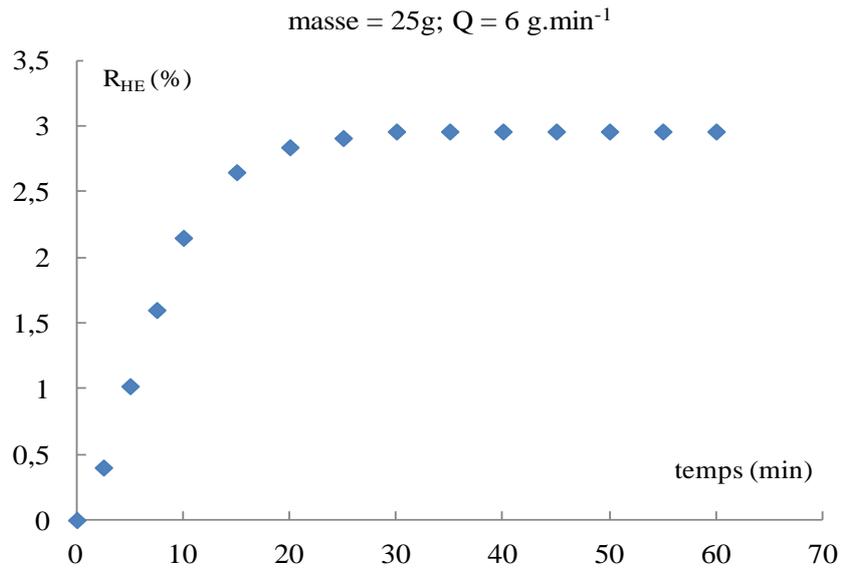


Fig 1: Influence du temps d'extraction sur le rendement

III. 2. 2. Détermination de l'ordre de la cinétique d'extraction

Afin de déterminer l'ordre de la cinétique d'extraction, nous avons supposé que cette dernière suit une loi du premier ordre où la vitesse d'extraction s'écrit :

$$-\ln\left[1 - \frac{R_{HE}}{R_{HE\infty}}\right] = k_E t \quad (3)$$

k_E : la constante de vitesse d'extraction

$R_{HE\infty}$: le rendement en huile essentielle au t infini

R_{HE} : le rendement en huile essentielle au temps t

La représentation de $-\ln\left[1 - \frac{R_{HE}}{R_{HE\infty}}\right]$ en fonction du temps (Figure 2) met en évidence deux droites. La

première de 0 à 15 min de pente k_1 et la seconde de 15 à 30 min de pente k_2 , montrant ainsi que la vitesse d'extraction de l'huile essentielle évolue selon l'ordre 1 comme le montre la (Figure 2). Les constantes de vitesse sont égales à $k_1 = 0,1924 \text{ min}^{-1}$, $k_2 = 0,020 \text{ min}^{-1}$

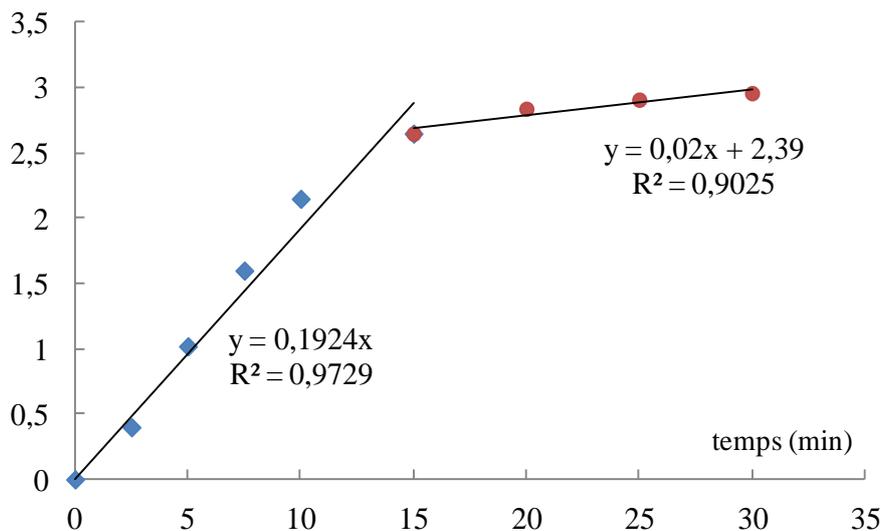


Fig 2: Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_{HE}}{R_{HE\infty}}\right]$ en fonction du temps

La comparaison des deux constantes de vitesse montre que la seconde étant faible par rapport à la première et que la majorité de l'huile étant récupérée durant cette étape, la seconde étape peut être négligée.

III. 3. Optimisation de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau

Deux méthodes d'optimisation ont été utilisées : une optimisation paramétrique et une optimisation par plan d'expériences

III. 3. 1. Etude paramétrique

III. 3. 1.1. Influence du débit de vapeur d'eau

Afin de déterminer l'influence du débit de vapeur d'eau sur le rendement en huile essentielle, des essais à différent débit de vapeur d'eau ont été effectués. Les résultats sont regroupés dans le tableau II. Nous pouvons remarquer que le maximum d'huile essentielle extraite est obtenu pour un débit moyen égal à 6 g.min^{-1} . Cela pourrait être dû au fait que pour les faibles débits (2 et 4 g.min^{-1}), la vapeur d'eau n'est pas assez suffisante, donc une partie de l'huile essentielle n'est pas entraînée. Pour le plus fort débit (8 g.min^{-1}) le rendement en huile essentielle est le plus faible. Cette diminution pourrait s'expliquer par la création de chemins préférentiels.

Tableau II : Influence du débit de vapeur d'eau sur le rendement en huile essentielle
($M = 25\text{g}$ et $t = 30\text{min}$)

Débit de vapeur d'eau $Q \text{ (g.min}^{-1}\text{)}$	Rendement en huile $R_{HE} \text{ (%)}$
2	1,50
4	1,86
6	2,96
8	2,00

III. 3. 1.2. Influence de la masse de matière végétale

Les résultats de l'étude de l'influence de la masse de matière végétale sur le rendement en huile essentielle à débit constant (6 g.min^{-1}), sont résumés dans le tableau III. Le meilleur rendement est obtenu pour une masse de 30 g . Le faible rendement obtenu pour une masse maximale de 30g est probablement dû au tassement de la matière végétale dans le lit. Alors que pour la masse minimale (20g), cela pourrait s'expliquer par la création de chemins préférentiels dus à une grande dispersion du lit donc une porosité élevée entraînant un mauvais contact entre la vapeur d'eau et la plante.

Tableau III : Influence de la masse de matière végétale sur le rendement en huile essentielle
($Q = 6 \text{ g.min}^{-1}$ et $t = 30 \text{ min}$)

Masse de matière végétale $m \text{ (g)}$	Rendement en huile $R_{HE} \text{ (%)}$
20	2,53
25	2,96
30	1,96

D'après l'étude menée sur l'influence du temps d'extraction, du débit de vapeur d'eau et de la masse de matière végétale sur le rendement en huile essentielle, nous pouvons conclure que les conditions optimales sont :

Temps d'extraction : $t = 20\text{min}$

Masse de la matière végétale : $m = 25 \text{ g}$

Débit de vapeur d'eau : $Q = 6 \text{ g.min}^{-1}$

L'étude paramétrique ne permet d'évaluer que l'effet individuel de chacun des paramètres sans prendre en compte les interactions éventuelles entre ces derniers. Une étude par plan d'expériences est donc nécessaire afin d'évaluer leur influence sur le rendement en huile essentielle.

III. 3.2. Etude par plan d'expériences

Les résultats du plan d'expériences établi pour l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau sont illustrés dans le tableau IV.

Tableau IV : Conditions opératoires et rendements en huile essentielle du plan composite centré

	Essai	Variables réelles			Variables réduites			R _{HE} (%)
		M (g)	t (min)	Q (g/min)	A	B	C	
Plan factoriel Complet	1	20	2,5	4	-1	-1	-1	2,51
	2	30	2,5	4	+1	-1	-1	0,46
	3	30	7,5	8	+1	+1	+1	2,91
	4	20	7,5	4	-1	+1	-1	2,87
	5	30	7,5	4	+1	+1	-1	1,12
	6	20	2,5	8	-1	-1	+1	1,45
	7	30	2,5	8	+1	-1	+1	2,50
	8	20	7,5	8	-1	+1	+1	2,12
Points Axiaux	9	20	5	6	-1	0	0	2,38
	10	30	5	6	+1	0	0	1,63
	11	25	2,5	6	0	-1	0	1,14
	12	25	7,5	6	0	+1	0	2,19
	13	25	5	4	0	0	-1	1,97
	14	25	5	8	0	0	+1	2,00
Répétitions au centre	15	25	5	6	0	0	0	2,04
	16	25	5	6	0	0	0	2,02
	17	25	5	6	0	0	0	2,04
	18	25	5	6	0	0	0	2,02

Nous pouvons remarquer que le rendement optimal en huile essentielle est obtenu pour l'essai numéro 3 qui correspond aux coordonnées réduites (+1, +1, +1) et réelles (M = 30g, t = 7,5min, Q = 8g .min⁻¹) pour un rendement en huile essentielle de 2,96%.

Par ailleurs, les valeurs obtenues pour les essais correspondant aux répétitions au centre montrent une bonne reproductibilité des résultats.

L'analyse de la variance des paramètres opératoires étudiés à savoir (masse de la matière végétale temps d'extraction et débit de vapeur) qui sont traduit par le diagramme de Pareto (Figure 3) révèle que :

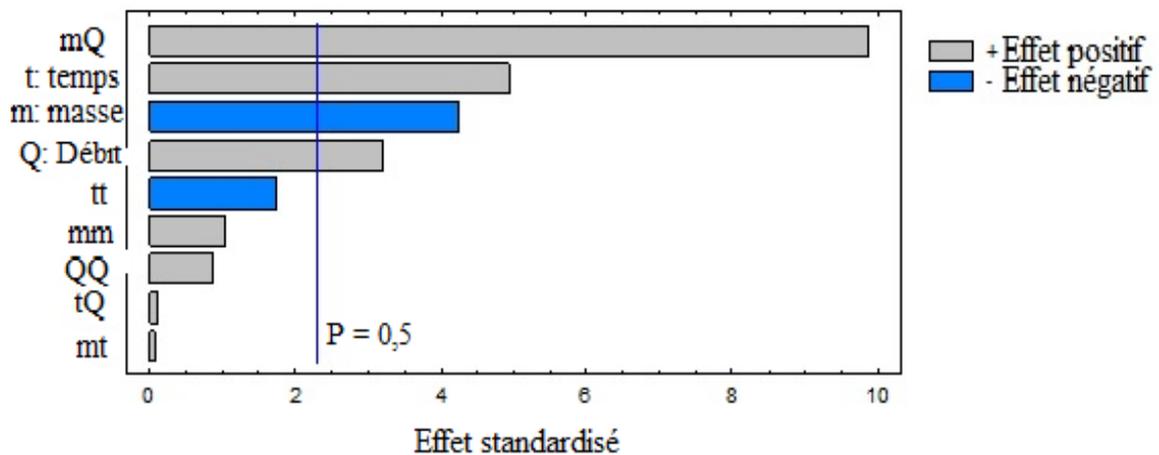


Figure 3: Diagramme de Pareto

- L'effet simple du temps, du débit et l'effet conjugué Masse-débit ont un effet significatif positif sur le rendement ;
- L'effet simple de la masse de la matière végétale a un effet significatif négatif sur le rendement.

En revanche, les effets quadratiques temps-temps, masse-masse, débit –débit, temps-débit et masse-temps ne sont pas significatif.

Le traitement mathématique des résultats du plan d'expérience par le logiciel STATGRAPHICS® a conduit à une équation mathématique du rendement en fonction des paramètres opératoires choisis (masse de la matière végétale, temps d'extraction et débit de vapeur). Le modèle est donné par les équations suivantes :

En variables codées:

$$R_{HE} (\%) = 1,95429 - 0,271 X_1 + 0,315 X_2 + 0,205 X_3 + 0,126429 X_1X_1 + 0,005 X_1X_2 + 0,705 X_1X_3 + 0,213571 X_2X_2 + 0,0075 X_2X_3 + 0,106429 X_3X_3 \quad (4)$$

En variables réelles :

$$R_{HE} (\%) = 15,9986 - 0,732057 m + 0,448714 t - 1,98679 Q + 0,00505714 mm + 0,0004 mt + 0,0705 mQ - 0,0341714 tt + 0,0015 tQ + 0,0266071 QQ \quad (5)$$

Le point optimum obtenu par le logiciel est :

En variable codées : A = -1 ; B = 0,71 ; C = -0,99

La valeur optimum de rendement: $R_{HE} = 3,065\%$.

En variable réelles : M = 20g ; t = 6,77 min ; Q = 4,0 g.min⁻¹

La valeur optimum de rendement: $R_{HE} = 3,065\%$.

Les valeurs réelles calculées des paramètres (masse, temps et débit) sont dans l'intervalle des valeurs réelles expérimentales et l'optimum théorique correspond à l'optimum expérimental.

Les valeurs codées théoriques des paramètres (masse, temps et débit) sont dans l'intervalle des valeurs expérimentales et l'optimum théorique correspond à l'optimum expérimental.

La valeur du coefficient de détermination R^2 est égale à 95,0388 %, ce qui signifie un bon ajustement du modèle proposé.

Les surfaces de réponse sont des représentations graphiques à trois dimensions de la réponse du système étudié en fonction de deux paramètres, le troisième étant fixé à son niveau zéro (central). Ce type de représentation permet de rechercher des régions expérimentales pour lesquelles la réponse est optimale.

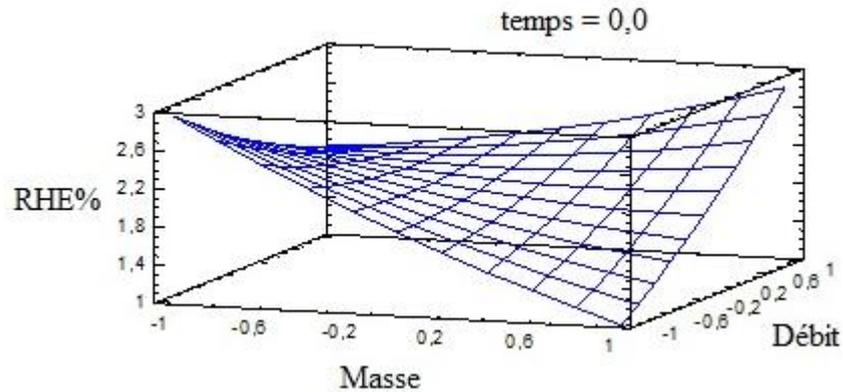


Fig 4: Surface de réponse correspondant au couple Masse-Débit

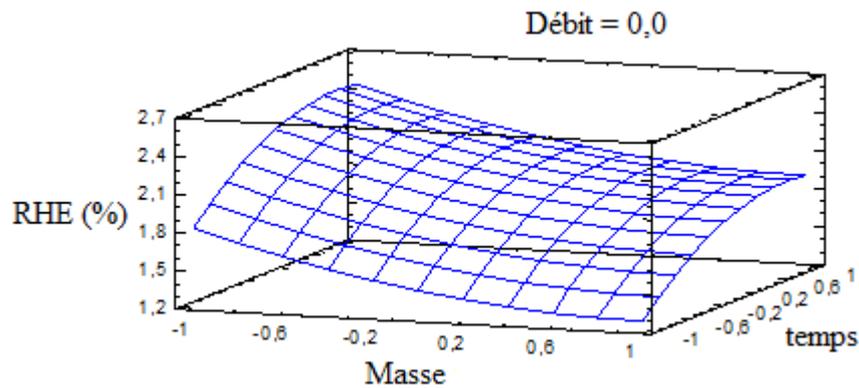


Fig 5: Surface de réponse correspondant au couple Masse-temps

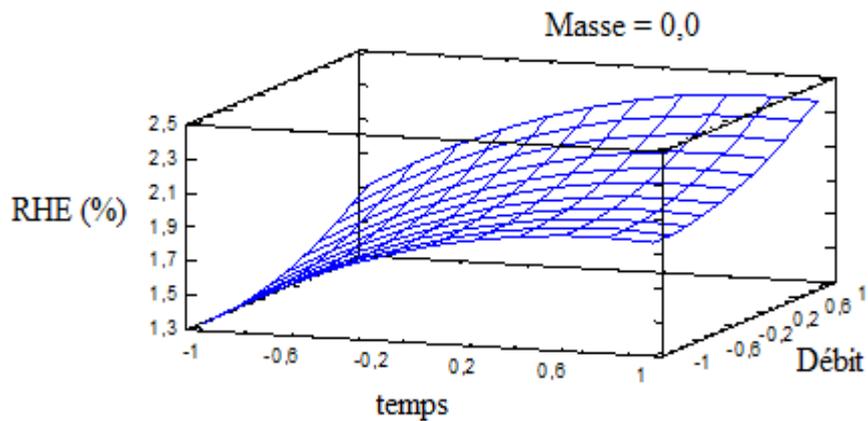


Fig 6: Surface de réponse correspondant au couple temps-Débit

Les figures 4,5 et 6 représentant respectivement les variations du rendement en fonction des effets conjugués masse-débit, masse-temps et temps-débit, montrent que le rendement est optimal lorsque la masse est à son niveau inférieur et le débit à son niveau supérieur. Elles indiquent aussi que le rendement augmente avec le temps et qu'il semble maximal pour des masses avoisinant 20g c'est à dire lorsqu'elle est à son niveau inférieur.

IV. CONCLUSION

L'objectif de ce travail était d'optimiser les conditions opératoires de l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau de l'huile essentielle de *Thymus pallescens* à savoir, la masse de matière végétale, le temps d'extraction et le débit de vapeur d'eau.

L'analyse chromatographique de l'huile essentielle a permis d'identifier 28. Le constituant majoritaire est le Carvacrol avec 68,5 %. L'étude cinétique a montré que l'extraction par entraînement à la vapeur d'eau du *Thymus pallescens* suit une loi du 1^{er} ordre et que 89,52 % de l'huile sont extraits les 15 premières minutes. L'étude par plan d'expériences a permis d'atteindre les conditions optimales du procédé d'extraction de l'huile essentielle et de proposer un modèle qui décrit le procédé à 95,0388 %. Elle a aussi montré qu'il existe une forte interaction entre la masse et le débit de vapeur d'eau.

REFERENCES

- [1]. N. Sahraoui, A. Hellal, C. Boutekedjiret, F. Bentahar, J. M. Bessière. *International Journal of Essential Oil Therapeutics*. 1, (2), 83-90, 2007.
- [2]. M. Hazzit, A. Baaliouamer, A.R. Veríssimo, M.L. Faleiro, M.G. Miguel. *Food Chemistry*, 116, 3, 714–721 October 2009
- [3] M. B. Belkheir, S. Bertouche, N. Sahraoui, A. Hellal, C. Boutekedjiret
2nd edition of the international congress: Microbial Biotechnology for Development MICROBIOD 2, Marrakech, 02nd-04th October 2012.
- [4] I. Rasooli, M. Bagher Rezaei, A. Allameh. *Food Control*, 17, 359-364, 2006.
- [5] N. Sahraoui, A. Bouzaza, A. Dahdouh, C. Boutekedjiret. 4th International congress in green process engineering to held in 7-10 April 2014, Sevilla (Spain)
- [6] S. Bouhdid, M. Idaomar, A. Zhiri, D. Baudou, N. Skali, J. Abrini. Congrès international de biochimie. Agadir, Maroc, 2006.
- [7] Z. Kabouche, N. Boutaghane, S. Laggoune, A. Kabouche, Z. Ait-Kaki, K. Benlabed. *The International Journal of Aromatherapy*. 15, 129–133, 2005.
- [8] N. Sahraoui, C. Boutekedjiret
Chapitre de livre Idité par Springer in *Progress in Clean Energy*, Volume 1, pp 831-841, (2015).
- [9] M. E. Lucchesi, F. Chemat, J. Smadja. *Journal of Chromatography A*, 1043, 323–327, 2004.
- [10] J. Goupy. *Pratiquer les plans d'expériences*. Éd Dunod, Paris, France, 2005
- [11] M. Pillet. *Les plans d'expériences par la méthode TAGUCHI*. Éd d'Organisation, Paris, France, 1997.
- [12]. Official Method Ja 2a-46, *American Oil Chemist' Society, Champaign, IL*, 1993.