

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene

Faculté de Génie Mécanique & Génie des Procédés



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER

En: Génie des Procédés

Spécialité : Génie des Procédés Industriels

Par : NAAMA SABRINA

**Application des procédés d'extraction par solvant
volatil à la récupération de la concrète d'origan
(*Origanum glandulosum* (Desf.))**

Soutenu le 20 / 05 / 2009, devant le jury composé de:

Mme F. BENTAHAR	Professeur (USTHB)	Président
Mlle C. BOUTEKEDJIRET	Professeur (ENP)	Directeur de thèse
Mme L. TOUMI	Maître de Conférences (USTHB)	Examineur
Mme O. KHALFI	Docteur (INA)	Examineur

Résumé

Parmi les plantes aromatiques et médicinales spontanées, notre intérêt s'est porté sur l'origan (*Origanum glandulosum*) provenant de la wilaya de Sétif située à environ 250km à l'Est d'Alger.

Notre étude a visé deux objectifs principaux, d'une part l'extraction de la concrète d'*Origanum glandulosum* par solvant volatil par trois procédés : extraction en charge dispersée, extraction par Soxhlet et extraction par circulation continue. Une étude paramétrique a été entreprise, l'effet sur le rendement en concrète et la cinétique d'extraction de plusieurs paramètres à savoir : la vitesse d'agitation, le rapport solvant / masse de matière végétale, la température d'extraction, la nature du solvant et le débit du solvant a été étudié. Une comparaison entre les trois procédés d'extraction a été entreprise.

D'autre part, l'utilisation des plantes comme source d'insecticide est relatée par une abondante littérature. C'est dans ce contexte que nous avons essayé de valoriser les extraits d'*Origanum glandulosum* (Desfontaines) par l'évaluation de leur activité insecticide sur le *Callosobruchus maculatus* (F.), ravageur très nuisible aux légumineuses stockées.

Mots clés : extraction, *Origanum glandulosum*, concrète, solvant volatil, charge dispersée, Soxhlet, circulation continue, cinétique d'extraction, activité insecticide.

Abstract

Among the aromatic and medicinal spontaneous plants, our interest has focused on oregano (*origanum glandulosum*) from the wilaya of Setif located about 250 km to the East of Algiers.

Our study deals on two main objectives, on one hand, extraction of concrete of *Origanum glandulosum* Desf. by volatile solvent according to three processes: extraction with dispersed load, extraction by Soxhlet and extraction by continuous circulation.

The effect on the yield of concrete and the kinetic of this extraction of several parameters with: speed agitation, report solvent/masse of plant material, temperature extraction, the nature of solvent and the flow of solvent was studied. A comparison between the batch, the percolator and the Soxhlet showed better yield of extraction for this last.

In other way, the use of plants as source of insecticides is very common and cited in the scientific literature. In this context that we have studied the insecticidal activity of the extract of *Origanum glandulosum* on a particular insect *Callosobruchus maculatus* (F.), insect devastator of legume stored.

Key words: extraction, *Origanum glandulosum*, concrete, volatile solvent, dispersed load, Soxhlet, continuous circulation, kinetic of extraction, insecticidal activity.

ملخص

يتركز اهتمام هذا العمل على دراسة نبات (*Origanum glandulosum*) الذي هو عبارة عن نبتة عطرية، طبية وعفوية مصدرها من شرق البلاد وتحديدا من ولاية سطيف التي تبعد بحوالي 250 كلم عن الجزائر العاصمة.

تصبو هذه الدراسة إلى تحقيق هدفين رئيسيين هما استخراج الزيت المكثف من نبتة الزعتر *Origanum glandulosum* وذلك باستعمال محاليل طيارة بحيث تم اختبار ثلاث طرق تتمثل في الاستخلاص المشتت، الاستخلاص بـ Soxhlet إضافة إلى الدوران المتواصل، ولهذا الغرض تم الاعتماد على الدراسة المعيارية لمعرفة مدى تأثير هذه العوامل على مردود الزيت المكثف وحركية الاستخلاص، ونذكر من بين هذه العوامل سرعة الطرد المركزي ونسبة المذيب إلى جانب كتلة المادة النباتية، درجة حرارة الاستخلاص ضف إلى ذلك طبيعة المذيب وسرعة تدفقه، كما تم في الأخير عملية إجراء مقارنة بين طرق الاستخلاص الثلاثة.

ومن جانب آخر تبين بأن استعمال النباتات كمبيد حشري حظي باهتمام بالغ في العديد من المؤلفات، وفي هذا السياق ينزوي هذا العمل بحيث أننا حاولنا إعطاء قيمة للمستخلصات *Origanum glandulosum* وذلك بواسطة تقييم نشاط الحشرات *Callosobruchus maculatu* (F) ومعرفة ما ينجر عن آفات الضارة على البقوليات المخزنة.

الكلمات المفتاحية:

الاستخلاص، *Origanum glandulosum*، الزيت المكثف، محلول طيار، استخلاص مشتت، استخلاص بـ Soxhlet، الدوران المتواصل، حركية الاستخلاص، النشاط الحشري.

Remerciements

Les recherches qui font l'objet de ce mémoire ont été menées au sein du Laboratoire des Phénomènes de Transfert de la Faculté de Génies Mécanique et de Génie des Procédés de l'université des sciences et de la technologie Houari Boumediene. Que je remercie vivement Madame le Professeur F. Bentahar pour m'avoir accueilli au sein de son équipe de recherche. Au terme de ce travail, il m'est agréable de remercier tous ceux qui m'ont aidé dans la réalisation de celui-ci.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance et mes plus sincères remerciements à Mlle C. Boutekedjiret pour avoir proposé et dirigé ce travail, de m'avoir aidé par ces précieux conseils, sa gentillesse, sa rigueur et surtout pour sa patience dans la correction de ce mémoire.

J'exprime mes respectueux remerciement à Mme le Professeur F. Bentahar pour l'honneur qu'il mes fait de présider le jury.

Mes sincères remerciements s'adressent à Mme L. Toumi Maître de conférence à l'USTHB d'avoir accepté d'examiner cette thèse.

Je remercie également Mme O. Khalfi Docteur à l'Institut Nationale d'Agronomie d'El-Harrach d'une part, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire pour la réalisation d'une partie de ce mémoire et pour son aide et d'autre part, pour avoir accepté d'être examinatrice dans ce jury.

Je remercie vivement Mme N. Brahimi Maître Assistante au Département de Génie des Procédés de l'USTHB pour son aide dans tous les moments où j'en avais besoin et pour ses conseils.

Ma plus sincère reconnaissance à tous les membres du laboratoire pour l'atmosphère agréable de travail. Merci également à mes amis Mohamed, Djilali, Mustapha et Salah pour leur amabilité et leur soutien au cours de ce travail.

Mes remerciements vont enfin à tous ceux qui de près ou de loin m'ont aidé à la réalisation de cette étude.

Sommaire

INTRODUCTION GENERALE

CHAPITRE I : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

I. MONOGRAPHIE DE LA MATIERE VEGETALE	4
I.1 Historique	4
I.2 Classification botanique	4
I.3 Description de la plante	5
I.4 Localisation géographique	5
II. LES PRINCIPAUX EXTRAITS DE PLANTES	7
II.1 Les huiles essentielles	7
II.2 Les concrètes	7
II.2.1 L'absolue	8
II.2.2 Les cires	8
II.2.3 Les tannins	8
II.2.4 Les colorants naturels	8
III. LES EXTRAITS D'ORIGAN	10
III.1 Composition chimique	10
III.2 Importance de l'origan	11
III.2.1 Utilisation culinaire	12
III.2.2 Activité fongicide	12
III.2.3 Activité antioxydante	12
III.2.4 Activité insecticide	12
III.2.5 Importance économique	13
IV. LES PROCEDES D'EXTRACTION	13
IV.1 Extraction à la vapeur d'eau	14
IV.1.1 Entraînerend à la vapeur d'eau	14
IV.1.2 Hydrodistillation	14
IV.2 Détente instantanée contrôlée (DIC)	14
IV.3 Extraction au CO ₂	16
IV.4 Extraction par solvant fixe	16
IV.5 Expression	16
IV.6 Extraction assistée par micro onde	16
IV.7 Extraction par solvant volatil	17

IV.7.1 Les solvants	19
IV.7.2 Facteurs mis en jeux lors de l'extraction par solvant	21
V. MONOGRAPHIE DE L'INSECTE	22
V.1 Caractéristique généraux des <i>Bruchidae</i>	23
V.2 <i>Callosobruchus maculatus</i> (F.) : La bruche de pois chiche	23
V.3 Pertes et dégâts	25
V.4 Moyen de lutte	26
V.4.1 Lutte préventive	26
V.4.2 Lutte curative	27
V.4.2.1 Lutte physique	27
V.4.2.2 Lutte chimique	28
V.4.2.3 Lutte biologique	28
 CHAPITRE II : MATERIELS ET METHODES	
I. LES PROCEDES D'EXTRACTION PAR SOLVANT	31
I.1 Extraction en charge dispersée (batch)	31
I.2 Extraction par Soxhlet	31
I.3 Extraction par circulation continue de solvant	31
II. METHODES DE CALCULS ET DE MESURES	35
II.1 Echantillonnage par quartage	35
II.2 Taux d'humidité	35
II.3 Rendement en concrète	36
III. ETUDE DE L'ACTIVITE INSECTICIDE DE LA CONCRETE D'ORIGAN SUR <i>CALLOSOBRUCHUS MACULATUS</i> (F.)	36
III.1 Matériel biologique	36
III.1.1 L'espèce entomologique	36
III.1.2 L'espèce végétale	36
III.2 Evaluation de la toxicité d'origan	37
III.2.1 Effet adulticide	37
III.2.2 Effet ovocide	38
III.3 Correction de la mortalité	39

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSION

I. EXTRACTION EN CHARGE DISPERSSEE	41
I.1 Etude de l'influence du temps d'extraction	43
I.2 Etude de l'influence de la vitesse d'agitation	45
I.2.1 Influence de la vitesse d'agitation sur le rendement en concrète	45
I.2.2 Influence de la vitesse d'agitation sur la cinétique d'extraction	46
I.3 Etude de l'influence du rapport solvant/ masse de matière végétale (h)	47
I.3.1 Influence du rapport solvant/ masse de matière végétale sur le rendement en concrète	47
I.3.2 Influence du rapport solvant/ masse de matière végétale sur la cinétique d'extraction	48
I.4 Etude de l'influence de la température d'extraction	49
I.4.1 Influence de la température sur le rendement en concrète	49
I.4.2 Influence de la température sur la cinétique d'extraction	51
I.5 Etude de l'influence de la nature du solvant	51
I.5.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète	51
I.5.2 Influence de la nature du solvant sur la cinétique d'extraction	53
II. EXTRACTION PAR SOXHLET	53
II.1 Etude de l'influence du temps d'extraction	54
II.2 Etude de l'influence de la nature du solvant	55
II.2.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète	55
II.2.2 Influence de la nature du solvant sur La cinétique d'extraction	57
II.3 Etude de l'influence du nombre de siphonages	57
II.3.1 Influence du nombre de siphonages sur le rendement en concrète	57
II.3.2 Influence du nombre de siphonages sur la cinétique d'extraction	59
III. EXTRACTION PAR CIRCULATION CONTINUE	59
III.1 Etude de l'influence du temps d'extraction	59
III.2 Etude de l'influence du débit de solvant	61

III.2.1 Influence du débit de solvant sur le rendement en concrète	61
III.2.2 Influence du débit de solvant sur la cinétique d'extraction	62
III.3 Etude de l'influence de la nature du solvant	63
III.3.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète	63
III.3.2 Influence de la nature du solvant sur la cinétique d'extraction	64
IV. ETUDE COMPARATIVE DES TROIS PROCEDES	66
V. APPLICATION DE LA CONCRETE D'ORIGAN : ACTIVITE INSECTICIDE	67
V.1 Test d'efficacité par traitement adulticide	67
V.2 Test d'efficacité par traitement ovocide	68
CONCLUSION GENERALE	71
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	73

Liste des Figures

Figure 1 : <i>Origanum glandulosum</i> (Desfontaines).	6
Figure 2 : Principaux procédés d'extraction.	15
Figure 3 : Les différents types d'extraction par solvants volatils.	18
Figure 4 : <i>Callosobruchus maculatus</i> (F.).	24
Figure 5 : Dégâts causés par les larves de <i>Bruchidae</i> sur le niébé et pois chiche.	25
Figure 6 : Dispositif d'extraction en charge dispersée (Batch).	32
Figure 7 : Dispositif d'extraction par Soxhlet.	33
Figure 8 : Dispositif d'extraction par circulation continue de solvant volatil.	34
Figure 9 : Dispositif de Dean et Stark.	35
Figure 10 : Elevage de <i>Callosobruchus maculatus</i> (F.).	37
Figure 11 : Essais réalisés par effet « contact-inhalation ».	38
Figure 12 : Etudes expérimentales.	40
Figure 13 : Reproductibilité des résultats.	42
Figure 14 : Evolution du rendement en concrète au cours du temps.	43
Figure 15 : Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps pour W= 600tr/min.	44
Figure 16 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différentes vitesses d'agitation.	46
Figure 17 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour. différentes valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale.	48
Figure 18 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différentes températures.	50
Figure 19 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.	52

Figure 20 : Evolution du rendement en concrète en fonction du temps pour l'extraction par Soxhlet.	54
Figure 21 : Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps pour l'extraction par Soxhlet.	55
Figure 22 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.	56
Figure 23 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps en fonction du nombre de siphonages.	58
Figure 24 : Evolution du rendement en concrète en fonction du temps.	60
Figure 25 : Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps.	60
Figure 26 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents débits de solvant.	62
Figure 27 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.	64
Figure 28 : Comparaison entre les trois procédés.	66
Figure 29 : Pourcentage de mortalité corrigée par effet adulticide pour chaque extrait.	68
Figure 30 : Pourcentage d'éclosion moyen pour chaque extrait.	70

Liste des Tableaux

Tableau 1 : Localisation géographique des différentes espèces d'origan en Algérie.	7
Tableau 2 : Les principaux composés des huiles essentielles avec leurs propriétés.	9
Tableau 3 : Principaux composés de certaines espèces d'origan.	11
Tableau 4 : Propriétés de quelques solvants usuels (d'après WEAST).	20
Tableau 5 : Conditions opératoires de l'extraction en charge dispersée.	41
Tableau 6 : Reproductibilité des résultats.	42
Tableau 7 : Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différentes vitesses d'agitation.	45
Tableau 8 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes vitesses d'agitation.	46
Tableau 9 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différentes valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale	47
Tableau 10 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale.	49
Tableau 11 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différentes températures.	50
Tableau 12 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes températures.	51
Tableau 13 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différents solvants ($h = 0,01 \text{ m}^3/\text{kg}$).	52
Tableau 14 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différents solvants.	53
Tableau 15 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différents solvants.	56
Tableau 16 : Paramètres de la cinétique d'extraction par Soxhlet de la concrète d'origan.	57
Tableau 17 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du nombre de siphonages.	58

Tableau 18 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan.	59
Tableau 19 : Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différents débits de solvant.	61
Tableau 20 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différents débits.	62
Tableau 21 : Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différents solvants.	63
Tableau 22 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différents solvants.	65
Tableau 23 : Résultats de la mortalité par effet adulticide pour les différents extraits.	67
Tableau 24 : Résultats de l'effet ovocide pour les différents extraits.	69

Glossaire

Analgésique	: Qui supprime la douleur
Allélochimie	: Substance naturelle intervenant dans les relations entre les espèces différentes ou entre une espèce et son environnement
Alambic	: Appareil pour distiller
Antalgique	: Qui calme la douleur
Anti-inflammatoire	: Qui combat l'inflammation
Antispasmodique	: Un produit permettant de lutter contre les spasmes musculaires
Antiseptique	: Qui prévient ou arrête l'infection
Concrète	: Produit solide obtenu après extraction des principes odorants
Déprédateur	: Animal qui commet des dégâts sur une plante ou sur des denrées, le plus souvent dans le but de se nourrir
Ecorce	: Enveloppe des végétaux
Fumigation	: Technique par laquelle on répand la fumée ou la vapeur dégagé d'un corps
Immunostimulant	: Amplificateur non spécifique de la fonction immunitaire
Infusion	: Verser de l'eau bouillante sur des plantes séchées afin qu'il prennent l'odeur et en dissolve les principes actifs
Panicule	: Grande inflorescence en grappes, ramifiée et lâche
Phytothérapie	: Médecine par les plantes
Prédateur	: Organisme vivant qui capture des proies vivantes pour s'en nourrir ou pour alimenter sa progéniture
Pétiole	: Partie rétrécie reliant le limbe d'une feuille à la tige
Thérapeutique	: Qui se rapporte au traitement et à la guérison des maladies

Introduction

Générale

Depuis toujours les plantes ont constitué la source majeure de médicaments grâce à la richesse de ce qu'on appelle le métabolisme secondaire. Cependant, l'homme n'a découvert les vertus bénéfiques des plantes que par une approche progressive, facilitée par l'organisation des rapports sociaux. L'observation liée à l'expérience et la transmission des informations glanées au cours du temps font que certains hommes deviennent capables de poser un diagnostic, de trouver la plante qui soigne et finalement de guérir le malade.

L'histoire des plantes aromatiques est associée, sur tous les continents, à l'évolution des civilisations (Egypte, Chine, Inde, Arabie, Grèce). Au moyen Age, les arabes redécouvrent la technique d'extraction des plantes aromatiques et contribuent largement au perfectionnement de cet art.

Dans la civilisation chinoise, Indienne ou aztèque, on trouve la trace d'utilisation médicinale très ancienne. Le premier livre de matière médicale est le shan nung ben caojing (traité des plantes médicinales de l'empereur shen nung) qui contient la liste de trois cent soixante-cinq remèdes et se divisait en trois parties.

- ❖ 120 drogues inoffensives, toniques, conservant la santé, conférant résistance et longévité.
- ❖ 120 drogues thérapeutiques à donner aux malades, les unes sans danger, les autres douées d'une certaine toxicité.
- ❖ 125 drogues vénéneuses, à n'utiliser qu'avec de grandes précautions.

Les populations babyloniennes et sumériennes utilisaient les plantes pour se soigner : 1000 plantes pour leurs vertus curatives et plus de 800 remèdes sont décrits par les Egyptiens [1].

Le continent africain est un des continents doté d'une biodiversité la plus riche dans le monde avec beaucoup de plantes utilisées comme herbes, aliments naturels et pour des buts thérapeutiques.

L'organisation mondiale de la santé estime qu'un taux de 50% de la population mondiale fait appel à la médecine traditionnelle. Elle encourage des programmes de recherches portant sur l'identification et la culture des plantes médicinales ainsi que l'évaluation de la qualité et de l'efficacité de ces remèdes par des techniques scientifique modernes.

Plusieurs chercheurs s'intéressent de plus en plus aux produits à base d'extraits végétaux pour leur bien être et leur santé. C'est pourquoi, l'extraction solide-liquide est une opération

couramment employée de nos jours dans l'industrie de la pharmacie, cosmétique et agroalimentaire, mais l'obtention d'un bon extrait demande de prendre en considération de nombreux paramètres, tel que : la matière première, le solvant et le procédé.

Le substrat végétal est une matière « vivante » donc évolutive. La qualité des plantes varie selon les origines géographiques, les saisons, le conditionnement et le stockage. Le choix de solvant est primordial pour obtenir une bonne extraction des molécules visées tout en respectant des contraintes de sécurité et de coût économique. Le choix de l'équipement va conditionner le procédé mis en œuvre (fonctionnement continu ou discontinu).

Les recherches sur les bienfaits des plantes sont toujours d'actualité avec pour conséquences de nouvelles découvertes dans différentes applications.

Pendant plusieurs années, l'Homme a eu recours à l'utilisation de produits insecticides de synthèse, ce qui a provoqué de nombreux problèmes sur l'environnement en général et sur les denrées alimentaires stockées en particulier. Pour remédier à cette situation la protection des denrées stockées devient indispensable [2].

Face à ces problèmes, la nécessité de développer de nouvelles stratégies de lutte s'impose. De nombreux chercheurs se sont orientés ces dernières années vers une nouvelle méthode de lutte basée sur l'utilisation des extraits végétaux.

Ces derniers connaissent de nos jours un regain d'intérêt pour leur activité biocide vis-à-vis de nombreux ravageurs de champs et de stocks. Plusieurs plantes sont réputées pour leurs essences qui présentent des propriétés insecticides, fongicides et répulsives [3].

En raison de la diversité de son climat et de la nature de ces sols, l'Algérie recèle d'importantes potentialités en matière des plantes aromatiques et médicinales. Quezel et Santa ont recensé deux espèces d'origan, *Origanum glandulosum* (Desfontaines) et *Origanum floribundum* (Mumby) [4].

Les travaux sur l'origan (*Origanum glandulosum*) étant rares, nous nous sommes proposés de l'étudier. Pour ce faire, nous nous sommes intéressés à l'extraction de la concrète par trois

procédés : l'extraction en charge dispersée, l'extraction par Soxhlet et l'extraction par circulation continue de solvant.

Par ailleurs, nous avons essayé d'évaluer les propriétés insecticides de cette concrète sur un insecte nuisible aux légumineuses stockées : *Callosobruchus maculatus* (F.).

Le travail que nous avons entrepris comporte trois chapitres

- Le premier chapitre est consacré à une recherche bibliographique où nous apportons une monographie générale sur la plante, sur ses extraits et sur son importance, ainsi qu'une illustration des principaux procédés d'extraction et enfin nous exposons la matière biologique animale et les moyens de lutte utilisés pour la protection des légumineuses stockées.
- Le deuxième chapitre rassemble les matériels et méthodes utilisées. Nous présentons les conditions opératoires des procédés employés et les méthodes de calcul et de mesure.
- Enfin, le troisième chapitre présente les résultats obtenus dans cette étude.

Chapitre

I

Revue Bibliographique

CHAPITRE I

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

I. MONOGRAPHIE DE LA MATIERE VEGETALE

I.1 Historique

L'origan, Zâatar en arabe et en berbère, a toujours accompagné la vie quotidienne de l'homme à des fins médicales, cosmétiques et culinaires [5].

Le nom origan vient de la contraction de deux mots grecs oros (montagne ou colline) et ganos (joies). L'origan est donc l'ornement des montagnes, car il est vrai qu'il pousse abondamment sur les altitudes des montagnes sèches.

Dans l'ancienne Egypte, il était dédié à Osiris. Dans l'antiquité, il était considéré comme symbole du bonheur.

En Albanie, l'origan est utilisé comme un symbole de pauvreté et d'héroïsme dans les expressions familières ci-dessous :

«Ce sol ne peut produire que de l'origan» (en se référant à un sol très pauvre)

«Il se tient comme un origan au sommet du rocher» (en désignant une personne très brave).

I.2 Classification botanique

Le genre *Origanum* comporte plusieurs espèces aromatiques de la famille des *Lamiacées*.

Letswart, dans sa révision a décrit 49 espèces appartenant à 10 sections différentes. La classification de ses différentes espèces et variétés a été très délicate [6].

- Règne : plantae
- Embranchement : spermaphyte
- Sous embranchement : angiosperme
- Classe : magnolipsida
- Sous classe : asteridae
- Ordre : lamiales
- Famille : lamiacée
- Sous famille : stachyoideae
- Genre : Origanum
- Espèce : Origanum glandulosum (Desf)

I.3 Description de la plante

La ressemblance entre les diverses espèces d'*Origanum* provoque une confusion des plantes lors de la cueillette. Afin d'effectuer une identification précise, la description de la plante est indispensable (figure 1).

Selon Quezel et Santa [4], le genre *Origanum* dit «Zâateur» est une des plantes herbacées ou sous ligneuses à la base, à inflorescences en épis réunis en inflorescences composées, avec un calice tubuleux à 5 dents courtes, bilabié ou non.

L'origan est une plante vivace de 20 à 60 cm, très odorante quand on la froisse entre les doigts, sa saveur au contraire est amère. La tige dressée, rougeâtre, est couverte de poils noirs. Les feuilles sont ovales, opposées, assez grandes et portées par un pétiole long de 5 à 10 mm et sans dents ou à dent marquées. Dans sa partie supérieure, la tige est ramifiée et chaque ramification se termine par une panicule de fleurs violacées, les fruits sont des tetrakènes. La floraison se prolonge de mai à juillet, la récolte se fait en été [7, 8].

I.4 Localisation géographique

L'origan commun (*Origanum vulgare*) est l'espèce la plus répandue dans ce genre. Elle s'étend des Açores jusqu'à Taiwan. A noter que plus de 70% des espèces d'origan sont endémiques, originaire des régions ensoleillées du bassin méditerranéen ou des climats tropicaux regorgeant de lumière, de chaleur et d'humidité atmosphérique [5].

L'origan est largement répandu en Europe et en Asie centrale notamment en Turquie du sud. Au Liban, il pousse dans les montagnes et sur le littoral, de la région basse à la région subalpine dans des endroits suffisamment humides et non calcaires [9].

Au Maroc, il est répandu dans les forêts, les pâturages rocaillieux, la plaine et les basses montagnes.

En Algérie, Quezel et Santa ont recensé deux espèces d'origan, *Origanum glandulosum* (Desfontaines) et *Origanum floribundum* (Mumby), comme montre le tableau 1.



Figure 1 : Origanum glandulosum (Desfontaines) [4] .

Tableau 1 : Localisation géographique des différentes espèces d'origan en Algérie. [4].

Espèces	Localisation
<p><i>Origanum glandulosum</i> Desfontaines</p>	<p>Commune dans tout le Tell Endémique Algéro-Tunisien Pousse dans les garrigues et broussailles</p>
<p><i>Origanum floribundum</i> Mumby</p>	<p>Pousse en pâturage et surtout en montagne Espèce rare dans le sous secteur du littoral et le secteur de Kabylie Endémique d'Algérie</p>

II. LES PRINCIPAUX EXTRAITS DE PLANTES

II.1 Les huiles essentielles

Les huiles essentielles sont des produits de composition généralement assez complexe qui renferment les principes volatiles contenus dans les végétaux et plus ou moins modifiés au cours de la séparation. Pour extraire ces principes volatiles, il existe divers procédés. Deux seulement sont utilisables pour la récupération des essences officinales : celui par distillation à la vapeur d'eau de plantes à essence ou de certains de leurs organes, et celui par expression. La Norme AFNOR NF T75-006 (Février 1998) a donné la définition suivante d'une huile essentielle «produit obtenu à partir d'une matière première végétale, soit par entraînement à la vapeur, soit par des procédés mécaniques à partir de l'épicarpe des citrus. L'huile essentielle est ensuite séparée de la phase aqueuse par des procédés physiques» [10].

Le tableau 2 présente les principaux composés des huiles essentiels avec leurs caractéristiques [11].

II.2 Les concrètes

Elles sont obtenues à partir de l'extraction des matières végétales par solvant volatiles, à chaud ou à froid. Elles se présentent sous un aspect pâteux et coloré. Elles sont composées de plusieurs sous-produits, dont l'absolue, les cires, les tannins et les colorants [12].

II.2.1 L'absolue

Les concrètes renferment une proportion plus ou moins importante de produits de peu d'importance pour la qualité d'un parfum. On épure les concrètes par extraction à l'éthanol, ce qui donne après filtration des cires et des extraits alcooliques à basse température. Les particules en suspension (les cires) et le filtrat sont alors séparés. Le filtrat, séparé de l'alcool par évaporation sous vide, n'est autre que l'absolue de la concrète [13].

II.2.2 Les cires

Elles sont composées de substances saponifiables (acides gras à longues chaînes) et insaponifiables (hydrocarbures à nombre impaire de carbones rarement insaturés). Elles représentent la fraction lourde de la concrète.

Les cires sont utilisées dans la savonnerie en raison de leur puissante note odorante et leur pouvoir conservateur [14].

II.2.3 Les tannins

On connaît plusieurs types de tannins, certains sont des esters contenant plusieurs molécules d'acide gallique [15].

II.2.4 Les colorants naturels

Parmi les colorants naturels, figurent les pigments végétaux comme les flavones et les anthocyanidines [16].

Tableau 2 : Les principaux composés des huiles essentielles avec leurs propriétés [11].

Famille Chimique	Propriétés
Les acides	Anti-inflammatoires très puissants Agissent en calmants du système nerveux
Les cétones	Anti-inflammatoires et anti-infectieux Stimulent le système immunitaire à faible dose Anti-coagulantes, cicatrisantes, lipolytiques (fonte des graisses), calmantes
Les éthers	Antispasmodiques Rééquilibrants nerveux Anti-arythmique On utilise souvent car présentent peu de dangers.
Les monoterpènes	Stimulants du système immunitaire Antiseptiques Antalgiques à action percutanée Action révulsive sur la peau donc utiles en cas de douleur localisée.
Les phénols	Anti-infectieux, immunostimulants Action contre les microbes, les champignons, les virus et les bactéries Irritants pour la peau et muqueuses (peuvent entraîner des brûlures) Peuvent (en grande quantité) endommager le foie en détruisant les cellules hépatiques.
Les sesquiterpènes	Anti-inflammatoires Anti-allergiques Emploi important en cosmétologie pour leur bonne tolérance avec la peau et leurs propriétés thérapeutiques.

III. LES EXTRAITS D'ORIGAN

III.1 Composition chimique

Renfermant une teneur de 0.3 à 3.4 % d'huile essentielle, l'origan a été le sujet de recherches de plusieurs auteurs.

Les espèces des contre forts de l'Atlas algérien *Origanum glandulosum* (Desfontaines) et *Origanum florbundum* (Mumby), sont riches en essence et renferment surtout du carvacrol et du thymol, soit 26% à 28% exprimés en thymol.

Le carvacrol est le phénol prédominant dans l'huile essentielle d'origan, il constitue avec le thymol le principal constituant actif. Tous les deux sont des phénols isométriques. Les autres constituants majoritaires (ρ -cymène et γ -terpinène) ne montrent pas une grande activité antibactérienne. Le carvacrol et le thymol agissent en synergie et sont actifs contre divers microorganismes. Le carvacrol exerce une activité plus élevée contre les mycètes tandis que le thymol est plus actif contre les bactéries Gram négatif.

La variation chimique de la composition de l'huile essentielle d'origan est susceptible de modifier les propriétés antimicrobiennes observées [17].

Les caractéristiques du carvacrol et du thymol sont :

- **Carvacrol:** c'est un liquide visqueux, de couleur orange brique, il a l'odeur du thym. Isolé à partir d'huile extraite des plantes des *Lamiacées*, le carvacrol est insoluble dans l'eau mais soluble dans l'alcool et l'éther. Il est utilisé comme désinfectant, antimycosique et antihelminthique.
- **Thymol:** il est sous forme de cristaux incolores ou d'une poudre blanche et a l'odeur caractéristique du thym. Il est isolé par traitement à froid ou par traitement à l'hydroxyde de sodium. Le thymol est reconnu comme agent antimicrobien et antimycosique, il est utilisé dans les solutions désinfectantes, les produits analgésiques et les solutions de gargarisme.

Le tableau 3 résume la composition chimique de plusieurs espèces d'origan.

Tableau 3 : Principaux composés de certaines espèces d'origan.

Principaux composés	Espèces	Auteurs	Réf
Linalool, terpinèn4-ol pinène hydrate	<i>Origanum majorana</i>	Fisher et al. , 1987	[20]
Carvacrol et/ou thymol	<i>Origanum hirtum</i> <i>Origanum onites</i>	Kokkini et Vokou, 1989 Kokkini et al. , 1988 et 1993 Ruberto et al. , 1993	[5] [21] [22]
Thymol, Carvacrol γ -Terpinène p-cymène	<i>Origanum vulgare</i>	Lawrence, 1984 Kokkini et al. , 1997 Daferera et al. , 2000 Marino et al. , 2001	[24] [21] [17] [23]
Carvacrol et thymol	<i>Origanum floridundum</i>	Hoppe, 1958	[27]
Carvacrol et Thymol	<i>Origanum virens</i>	Hohmann, 1986	[25]
Carvacrol, terpinèn 4-ol, α - Terpinéol, γ -terpinène, p-cymène et thymol.	<i>Origanum compactum</i>	Benjilali, 1986	[26]

III.2 Importance de l'origan

La présence de l'origan est essentielle à la protection de l'environnement contre les risques d'érosion en zones susceptible de désertification et sous une précipitation légère, assurant ainsi la couverture végétale demandée. Il peut être exploité par les habitants de ces régions. En effet, les utilisations de l'origan sont larges : culinaires, comme agent fongicide, antioxydant et beaucoup d'autres [18].

III.2.1 Utilisation culinaire

L'origan est une herbe consommée à n'importe quelle période de la journée par les diverses classes sociales. Il est dans beaucoup de préparations culinaires comme aromate : salade, sauces, pizzas. Il est aussi utilisé comme infusion agréable.

III.2.2 Activité fongicide

Des études sur les huiles essentielles d'origan ont montré qu'il est doté d'un pouvoir fongicide. Utilisé comme conservateur, il ne change ni le goût ni l'odeur des aliments stockés. Cette huile volatile est particulièrement active contre *Penicillium spp.*, un champignon affectant les arbres fruitiers [18].

III.2.3 Activité antioxydante

Plusieurs investigations ont signalé l'effet antioxydant de quelques espèces d'origan, dû à la présence de composés phénoliques.

Ce pouvoir antioxydant s'explique par le fait que le carvacrol et le thymol sont capables de se combiner avec le radical peroxyde pour former un complexe stable, inhibant de ce fait le caractère oxydant de ce radical.

D'autres usages sont aussi rapportés dans la bibliographie :

Comme les autres plantes médicinales, *Origanum glandulosum* (Desfontaines) occupe une place importante dans la fabrication de nombreux remèdes pharmaceutiques. Il entre dans la composition de tisanes antitussives du fait de son pouvoir expectorant et antispasmodique, il est efficace en cas d'inappétence, de troubles gastriques ou biliaires. Il est également utilisé dans le traitement du rhumatisme, contre le froid et la fièvre [9].

Certains auteurs (Russo et al) lui attribuent aussi un pouvoir antibactérien. Ceci est dû, en fait, à la résistance du carvacrol aux bactéries Gram [19].

III.2.4 Activité insecticide

Pendant plusieurs années, l'homme a eu recours à l'utilisation de produits insecticides de synthèse, ce qui a provoqué de nombreux problèmes sur l'environnement en général et sur les denrées alimentaires stockées en particulier. De nombreuses recherches ont été menées dans ce sens, afin d'arriver à remplacer ces produits de synthèse par des produits naturels, comme moyen de lutte contre ces prédateurs.

III.2.5 Importance économique

L'origan occupe une place importante au niveau mondial, l'estimation de la production mondiale fait état d'un chiffre de 10000T. Il est largement utilisé pour aromatiser les aliments, il est aussi utilisé en tant que remède à plusieurs maladies en médecine traditionnelle. Selon les dernières statistiques, le Maroc aurait exporté 77 tonnes d'origan pour une valeur total d'environ 1.125.844 de Dirhams. Il est de ce fait loin de la Turquie qui en exporte jusqu'à 7500 tonnes pour une valeur de 16,6 millions de dollars. La Turquie en effet, a développé un savoir faire en matière de production, de processing et de commercialisation la plaçant parmi les plus grands producteurs et exportateurs d'origan.

Au Liban, la production annuelle est de 1500 tonnes, dont le prix unitaire est de 3\$ avec un revenu de 4,5 millions de dollars.

Le zâatar au Liban, est l'un des produits forestiers non ligneux les moins exploités, alors qu'en Palestine il a fait l'objet de plusieurs études aboutissant à son exploitation maximale sous culture intensive. De ce fait, Israël se trouve l'un des exportateurs majeurs aux Etats-Unis [18].

IV. LES PROCEDES D'EXTRACTION

L'extraction solide-liquide est l'opération fondamentale qui a pour but, d'extraire de séparer ou de dissoudre par immersion dans un liquide ou par arrosage par un liquide, un ou plusieurs composants (solide ou liquide) mélangés à un solide. C'est une opération très ancienne, utilisée pour récupérer des plantes de certains organes animaux du produit alimentaire, médicinal, colorant ou odoriférant en vue de la production de breuvage, drogues, teintures ou parfums [28].

Les premières techniques d'extraction de produits aromatiques d'origine végétale ont vu le jour lorsque l'homme a pris conscience de l'intérêt de la nature qui l'entourait et de ses bienfaits. Depuis ces temps très anciens, les diverses civilisations du monde entier ont chacune apporté une pierre à l'édifice dans le domaine de l'extraction. Les Egyptiens utilisaient une technique d'enfleurage ou de diffusion de molécules aromatiques sur divers support gras. En Asie, les décoctions et tisanes étaient préférées.

Grâce à la découverte de la distillation et à la compréhension des phénomènes qui la régissent, la distillation alcoolique était née.

L'hydrodistillation et l'entraînement à la vapeur furent utilisés dès la renaissance pour extraire l'huile essentielle d'une grande partie de végétaux. Beaucoup plus tard l'extraction par

solvants volatils conduit à l'obtention des oléorésines et/ou concrètes, dont la composition diffère d'un solvant à un autre.

La rareté et fragilité de certains végétaux a conduit à l'élaboration de nouvelles techniques d'extraction toujours plus pointues et utilisant les dernières technologies offertes par les avancées du XX^{ième} siècle [29].

L'extraction solide-liquide est régie par des phénomènes très complexes liés aussi bien au processus de transfert de matière lui-même qu'à la nature du solide à extraire.

Les différentes méthodes d'extraction (figure 2) mises en œuvre dépendent de la matière végétale à traiter, de sa richesse en extrait, de la fragilité et la sensibilité de certains constituants aux températures élevées et à l'action de l'eau [30].

IV.1 Extraction à la vapeur d'eau

IV.1.1 Entraînement à la vapeur d'eau

La plante ou la partie de la plante est placée dans un alambic et est traversée par un courant de vapeur d'eau ; les principes volatiles peu solubles dans l'eau sont entraînés et après condensation, séparés du distillat par décantation [31, 32].

IV.1.2 Hydrodistillation

La matière végétale est dans ce cas en contact direct avec de l'eau bouillante. Elle peut, selon sa densité, soit être immergée dans celle-ci, soit flotter. La vapeur formée au sein de l'eau bouillante entraîne l'huile essentielle, qui est recueillie après condensation et décantation [33, 34].

IV.2 Détente instantanée contrôlée (DIC)

C'est une nouvelle technologie appliquée essentiellement dans le domaine du séchage des produits agro-alimentaires (fruits, légumes, céréales, pâtes alimentaires etc.), des produits non alimentaires (tabac, certains produits pharmaceutiques). Ce procédé d'extraction consiste à soumettre le produit considéré à un traitement thermique de courte durée sous haute pression (< 20 bar) et haute température (< 200°C) pendant un petit laps de temps. Ce procédé d'extraction se déroule par détente instantanée contrôlée DIC et se distingue des autres procédés par sa capacité de rallier la haute qualité à un coût énergétique moindre [35].

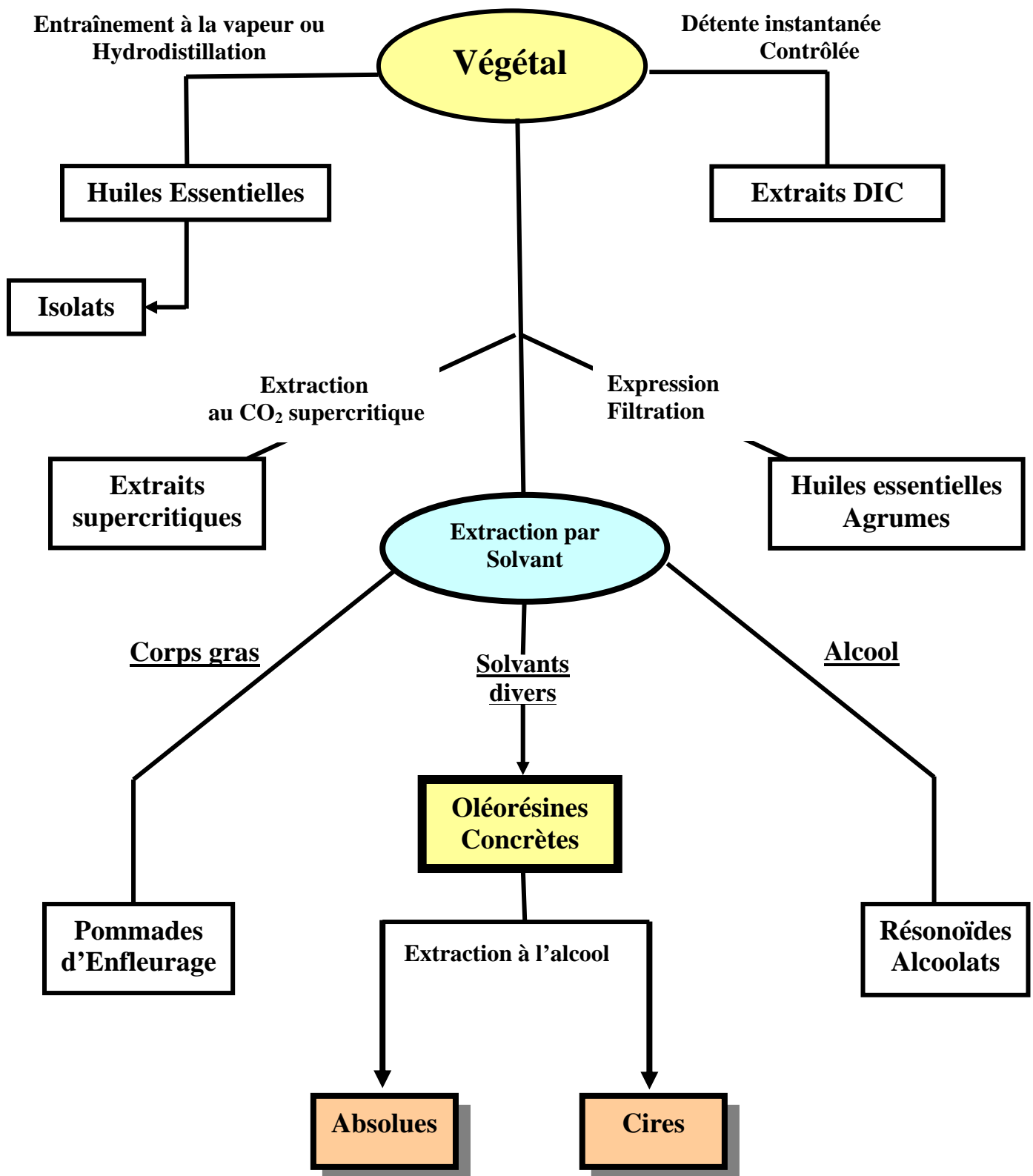


Figure 2: Principaux procédés d'extraction.

IV.3 Extraction au CO₂

C'est une technique récente dans le domaine de l'extraction des produits naturels. Elle utilise de CO₂ soit liquide (cas des substances volatiles), soit supercritique (cas de substances peu volatiles ou de faible stabilité thermique). Le produit obtenu est dépourvu de résidu de solvant. Cette méthode est utilisée dans l'industrie alimentaire telle que l'extraction des produits antioxydants des condiments comme la sauge et le romarin [36].

IV.4 Extraction par solvant fixe

Les solvants fixes utilisés sont principalement des matières grasses. Une extraction peut être réalisée à froid "procédé d'enfleurage" ou à chaud "macération ou digestion". C'est une méthode qui est utilisée pour extraire les essences de fleurs particulièrement délicates telles que le jasmin et la rose. Après que les pétales des fleurs aient séjourné sur des plaques enduites de graisse solide durant 24 à 78 heures, on récupère les essences sous forme de pommade. Ces dernières sont ensuite chauffées, décantées et filtrées.

IV.5 Expression

Ce procédé est appliqué aux écorces fraîches de la plupart des citrus. Elle a pour principe de presser à froid la matière végétale. Les essences ainsi extraites renferment une certaine quantité d'eau qui est séparée par centrifugation.

L'inconvénient majeur de cette méthode est le faible rendement. Néanmoins, elle présente l'avantage de donner des produits de haute qualité [37].

IV.6 Extraction assistée par micro-onde

Depuis 1986 avec les travaux de Ganzler et coll, l'extraction assistée par micro-ondes a connu de profonds changements. A l'heure où « rapidité », « efficacité », et « sélectivité » sont devenus les caractéristiques principales d'une bonne technique d'extraction, les travaux sur l'extraction assistée par micro-ondes ne cessent de croître et les nouvelles techniques de fleurir. La chimie analytique a permis ces dernières années de réduire considérablement les temps d'analyse grâce au développement des techniques chromatographiques en partie. La chimie préparative, telle que l'extraction solide-liquide où les molécules aromatiques volatiles issues de matières végétales, se devait de réduire elle aussi ses durées, tout en conservant son efficacité et sa sélectivité. Les micro-ondes ont apporté une solution de choix. Grâce à un chauffage sélectif, sans inertie, et rapide, les micro-ondes combinées à des

techniques d'extraction classiques ont permis de remédier aux problèmes des temps d'extraction souvent trop longs [38].

L'extraction des matières végétales assistées par micro-ondes a fait l'objet de nombreuses recherches et regroupe différents procédés parmi lesquels :

- « MAE » microwave assisted extraction breveté par Pare [39].
- « VHD » vacuum microwave hydrodistillation ou hydrodistillation par micro-ondes sous vide, breveté par Archimex [40].
- « FMASE » Focused microwave-assisted Soxhlet extraction method. Extraction par Soxhlet assistée par micro onde [41].
- «AOAC 920.39 » reference extraction method [41].

IV.7 Extraction par solvant volatil

L'extraction par solvant volatil est aujourd'hui la méthode la plus usitée, ce procédé est utilisé pour l'extraction des concrètes ou oléorésine de résinoïde et d'absolues, quand une partie de l'arôme ou du parfum n'est pas volatile ou peu entraînable par la vapeur d'eau. Son principe consiste à épuiser la matière végétale de ses constituants odorant généralement à température ambiante par un solvant volatil.

Le mélange solvant-extrait, appelé miscella est ensuite séparé du solvant par évaporation sous vide afin d'éviter la dégradation thermique des molécules odorantes.

Depuis quelques décennies, l'extraction par solvant a connu d'intéressantes améliorations ; l'hydrodistillation-extraction simultanée et l'extraction par Soxhlet en sont les principales (figure3).

L'hydrodistillation-extraction simultanée (Simultaneous Distillation Extraction: SDE) a été décrite en 1964 pour la première fois par Lickens et Nickerson. L'originalité et le principe de cette technique résident dans la rencontre de la vapeur d'eau chargée de molécules aromatiques provenant de l'hydrodistillation et des vapeurs de solvant, entraînant l'extraction des composés aromatiques de la phase aqueuse vers la phase organique.

Le passage des deux phases dans la partie réfrigérante va permettre la condensation et la séparation des deux phases dans la partie en U de l'appareil. La conception du procédé assure le recyclage des deux phases.

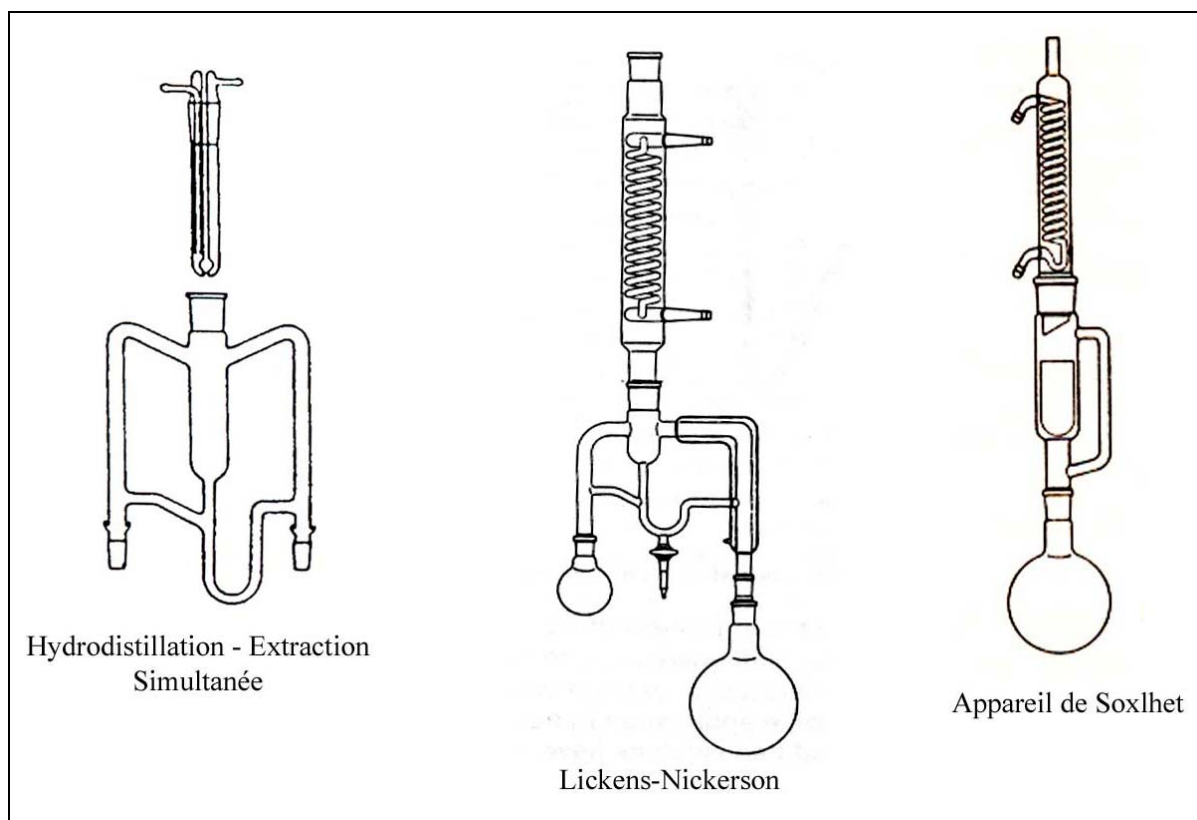


Figure 3 : Les différents types d'extraction par solvants volatils.

La SDE est une technique actuellement très utilisée dans l'extraction de molécules aromatiques d'origines végétales mais aussi dans l'agro-alimentaire pour la détermination qualitative et quantitative de molécules aromatiques présentes dans certains produits alimentaires. Plus récemment, la SDE a été réalisée sous pression réduite [42,43].

L'extraction au Soxhlet consiste à faire passer à travers la matière à traiter contenue dans une cartouche de cellulose, un flux descendant de solvant toujours pur puisque distillé à chaque cycle. Cette technique est loin d'être exclusive aux molécules aromatiques d'origine végétale. Elle est fréquemment utilisée pour l'extraction des lipides, ou de diverses autres catégories de molécules. De plus, cette technique d'extraction a été récemment combinée aux micro-ondes et aux ultrasons [44].

IV.7.1 Les solvants

Un solvant est un composé liquide au sein duquel d'autres substances dites solutés peuvent être dissoutes.

Les alchimistes eux même cherchaient le "solvant universel" mais ont reconnu bientôt, que la dissolution exige entre soluté et solvant une affinité suffisante inséparable des caractères propres à l'un et à l'autre. Cette qualité peut être sélective et rendre alors possible l'extraction de certains constituants d'un mélange [45].

Les solvants agissent grâce à un réseau de forces de cohésion intermoléculaires s'exerçant à courte distance. On distingue deux catégories de solvants: [46]

- ❖ Les solvants polaires en raison des groupements électronégatifs que contiennent leurs molécules. Ils se comportent au sein de la phase liquide comme des dipôles électriques susceptibles d'engager des interactions moléculaires sélectives avec certains constituants du mélange, eux même polaires, ioniques ou polarisables en raison de leur insaturation. Ainsi interprète t-on leur sélectivité à l'égard des diverses familles d'hydrocarbures en extraction liquide-liquide, et leur action solvant en chimie.
- ❖ Les solvants apolaires ou faiblement polaires, tels que les hydrocarbures au sein desquels ne s'exercent que des forces de dispersions entre dipôles instantanés, peu aptes à briser les interactions plus spécifiques qui caractérisent les solutés polaires, ils ne manifestent d'affinité que vis-à-vis de leurs semblables.

Tableau 4 : Propriétés de quelques solvants usuels (d'après WEAST) [47].

Solvants	Masse molaire	T Ebullition (°C)	Densité	Constante diélectrique	Miscibilité
Dioxyde de carbone	44	-	-	1,6 à 0 °C	A, AC,B ,C,E
Hexane	86,18	69	0,659	1,890 à 20 °C	A, AC,B,E
Cyclohexane	84,16	80,07	0,779	2,015 à 25 °C	A, AC, B, C, E
Ether isopropylique	102,18	68	-	3,88 à 25°C	A, AC, E
Ether éthylique	74,12	34,5	-	4,335 à 20°C	A, AC, B, C
Chloroforme	119,38	61,7	0,779	4,806 à 20°C	A, AC, B, E
Acétate d'éthyle	88,12	77,06	0,901	6,02 à 25°C	A, AC, B, E, W
Dichlorométhane ou chlorure de Méthylène	84,93	40	1,336	9,08 à 20°C	A, E
Acétone	58,08	56,2	0,818	20,07 à 25°C	A, B, C, E, W
Ethanol	46,07	78,5	0,798	24,3 à 25°C	AC, B, E, W
Méthanol	32,04	65,15	0,796	36,63 à 25°C	A, AC, B, C, E, W
Acétonitrile	-	82	-	37,5	-

A: Alcool éthylique

AC: Acétone

C: Chloroforme

W : Eau

B: Benzène

E : Ether éthylique

IV.7.2 Facteurs mis en jeux lors de l'extraction par solvant

Lorsqu'on met en œuvre un procédé d'extraction, on est souvent contraint à définir les facteurs physico-chimiques intervenant dans le processus lui-même. La mise en œuvre de l'extraction par solvant est affectée par plusieurs facteurs, parmi lesquels, on cite :

1- Nature de la matière végétale

La composition des extraits peut varier en fonction de la partie de la plante utilisée (feuille, fleurs, tiges, racines.....), du lieu, de la période de végétation, des récoltes et du stockage [23].

2- Nature du solvant

Le choix du solvant est très important, car seule sa nature peut conduire, à un résultat bien spécifique. Un bon solvant doit tenir compte des critères suivants:

- ❖ Ininflammable, non toxique et chimiquement inerte vis-à-vis des produits à extraire et de l'appareillage.
- ❖ Une grande sélectivité par rapport aux produits à extraire
- ❖ Un grand pouvoir de dissolution, afin non seulement d'extraire quasi totalement le soluté, mais aussi de minimiser le plus possible la quantité du solvant d'extraction.
- ❖ Une température d'ébullition peu élevée afin d'éviter de dégrader l'extrait.
- ❖ Un prix raisonnable.

Les principaux solvants actuellement utilisés sont l'eau et les alcools (méthanol, éthanol) [48].

3- La température d'extraction

L'élévation de température favorise l'accroissement de la solubilité et de la diffusivité de l'extrait. Cependant, la température opératoire est limitée par la température d'ébullition du solvant, par des risques de dégradation de l'extrait et par des mesures de sécurité [48].

4- Extraction successives

Lors du premier contact entre la matière végétale et le solvant, ce dernier n'arrive pas à extraire la totalité des produits aromatiques d'une part et d'autre part, une partie du solvant

chargé est retenue par la matière végétale. Pour remédier à cela, la charge est traitée à nouveau par du solvant frais et ceci afin d'augmenter le rendement [36].

5- L'agitation du milieu

L'agitation mécanique du milieu assure le maintien des particules solides en suspension dans la solution liquide. Elle contribue à réduire la couche liquide entourant le solide et donc facilite le transfert [49].

6- Hydromodule

Il est défini comme étant le rapport entre le volume de solvant et la masse de matière végétale. Il est noté par h et est exprimé en m^3/Kg .

7- Durée d'extraction

Etant donné que le solvant est en mesure d'extraire non seulement le produit désiré mais d'autre composé, il convient d'arrêter l'extraction à un moment tel que le rendement en produit désiré de meilleure qualité possible soit maximal [50].

V. MONOGRAPHIE DE L'INSECTE

Pour diminuer l'utilisation des produits chimiques dans la lutte contre les déprédateurs et les maladies des végétaux, il est devenu indispensable actuellement de s'orienter vers de nouvelles méthodes de protection qui préservent l'environnement.

Depuis l'aube des temps les plantes sont connues et utilisées pour leurs effets bénéfiques sur la santé humaine et leur action néfaste sur les ravageurs des cultures [51].

L'utilisation des extraits végétaux connaît ces dernières décennies un intérêt particulier dans le domaine agro phytosanitaire. Se basant sur les principes actifs naturels des extraits végétaux de nombreux chercheurs affirment leur double action biocide; à savoir leur action insecticide vis-à-vis des ravageurs et leurs effets inhibiteurs de la reproduction de ces derniers [52]. Ce sont les molécules allelochimiques (monoterpènes et polyphénols) synthétisées par la plante grâce à son métabolisme secondaire qui sont impliquées dans cette toxicité.

L'activité de ces composants peut être considérée comme une méthode complémentaire des insecticides classiques pour combattre les déprédateurs.

Pour cette partie nous exposons le matériel biologique animal en décrivant la famille des *Bruchidae* en général, *Callosobruchus maculatus* (F.) en particulier ainsi que les moyens de lutte pour la protection des légumineuses stockées.

V.1 Caractères généraux des *Bruchidae*

Les différentes espèces de cette famille sont réparties en une soixantaine de genres. Les adultes mesurent de 1,5 à 5 mm, le corps est large pubescent, la tête est bien dégagée et le menton pédonculé. Les antennes insérées près des yeux ne sont pas filiformes. Les élytres recouvrent incomplètement l'abdomen. Les pattes postérieures sont toujours plus développées que les autres pattes avec des fémurs fréquemment dilatés ou renflés [53].

Les ailes sont fonctionnelles chez presque toutes les espèces de cette famille. Les larves ont un régime cléthrophage car elles vivent exclusivement dans les graines.

Le premier stade apode ou pourvu de pattes et de soies aidant aux déplacements pour la bruche d'haricot. *Acanthoscelides obtectus*, permet aux larves après l'éclosion de se diriger à la recherche d'une graine adéquate pour s'y installer [53].

Selon Delobel & Tran, la famille des *Bruchidae* comprend deux groupes [54] :

Le premier renferme les bruches se développant dans les champs, dans les graines encore vertes et ont une seule génération annuelle (espèce univoltine) comme *Bruchus pisorum* (la bruche du pois), *Bruchus rufimanus* (la bruche de la fève) ou *Bruchus lentis* (la bruche des lentilles).

Le deuxième groupe renferme les bruches que se multiplient à l'intérieur des entrepôts, dans les graines sèches. Elles ont plusieurs génération annuelles (espèce polyvoltine) et c'est le cas de *Callosobruchus maculatus* (F.) (la bruche du pois chiche) [53].

V.2 *Callosobruchus maculatus* (F.) : la Bruche de pois chiche

Selon Balachowsky , les bruches sont réparties dans les zones Tropicales et Subtropicales. Les espèces *Callosobruchus. maculatus* et *Callosobruchus. chinensis* (L.) sont considérées comme les ravageurs majeurs des denrées stockées en Afrique et en Asie [55].

La bruche du pois chiche appartient à l'ordre des coléoptères, à la super famille des *phytophagoidea*, à la série *phytophaga* et à la famille des *Bruchidae*. Le genre *Callosobruchus* renferme une vingtaine d'espèces [56, 57].

C'est un genre caractérisé par un prothorax conique, des fémurs postérieurs pourvus d'une dent au bord inféro-externe.

L'espèce *C. maculatus* mesure 3 à 3.8 mm de long (figure 4). Le corps est oblongue, le revêtement rougeâtre, le prothorax est noir et orné à sa base d'une tache blanc-jaunâtre. Les élytres ne recouvrent pas entièrement l'abdomen et possèdent quatre macules noires arrondies placées latéralement, les deux plus grosses vers le milieu, les deux autres vers l'apex. Les antennes sont assez longues, les quatre premiers articles sont roux [58, 60].



Figure 4 : *Callosobruchus maculatus* (F.) [59].

Légende :

a : femelle

b : male

L'étude réalisée par Khalfi a révélé que cette espèce a un développement maximal à une température de 28°C et une humidité de 75,85%. Sous ces deux facteurs abiotiques la fécondité moyenne des femelles est de 82 œufs par femelle et la durée du cycle est de 30 jours, par contre la fertilité est maximale à une température de 30°C et une hygrométrie de 90% [61].

V.3 Pertes et dégâts

Les femelles des *Bruchidae*, pondent sur les gousses dans les cultures et les attaques se poursuivent dans les stocks. Plusieurs générations peuvent se succéder dans les systèmes de stockage provoquant des pertes élevées. Des études réalisées ont montré que les pertes en poids des graines pouvaient être supérieures à 80 % après six ou sept mois de stockage. Selon Shaaya et coll [62], les pertes dues aux insectes sur les légumineuses et les céréales sont de l'ordre de 10 à 40% dans les pays où les techniques modernes de stockage ne sont pas introduites.

Les larves des *Bruchidae* creusent des galeries dans les cotylédons utilisant les réserves contenues à ce niveau (figure 5) et rejettent leurs excréments riches en acide urique dans ces galeries. L'apport d'acide urique et de fragments de chitine rend les lots contaminés inconsommables. *Acanthoscelides obtectus* peut entraîner des réactions allergiques graves aux personnels manipulant des graines de *Phaseolus vulgaris* fortement contaminées.



Figure 5 : Dégâts causés par les larves de *Bruchidae* sur le niébé et pois chiche [63].

Les dégâts perpétrés par les larves sont de deux types :

- une perte quantitative qui peut être de l'ordre de 33% sur niébé après 7 mois de stockage [64, 65].

- une perte qualitative qui se traduit par une diminution de la thiamine, une dénaturation des protéines et une augmentation de l'acidité des graisses des graines [53].

Le pouvoir germinatif des graines attaquées est très fortement diminué. En effet la perforation des grains entraîne des attaques importantes par des germes pathogènes.

Par les déchets qu'ils produisent dans les graines, l'échauffement et le dégagement de vapeur d'eau qu'ils occasionnent par leur respiration, les insectes tendent à créer un milieu favorable au développement des micro-organismes qui vont accélérer le processus de dégradation.

V.4 Moyen de lutte

L'importance des dégâts occasionnés aux cultures et aux denrées stockées par les divers organismes nuisibles ou encore bio agresseurs, contraint l'agriculteur à recourir à des mesures de protection.

Il est donc nécessaire de rechercher des méthodes de contrôle efficace des populations d'insectes ravageurs afin de limiter les pertes, dues aux Coléoptères *Bruchidae*, qui sont parmi les principaux ravageurs des grains.

La lutte contre les *Bruchidae* peut se faire avant que ceux-ci n'attaquent les plantes, on parle alors de protection des cultures ou de lutte préventive. Cette lutte cherche à créer des conditions défavorables aux ravageurs des cultures. En général, ce sont les méthodes de lutte préventive qui sont les plus efficaces et les plus rentables puisqu'elles empêchent l'apparition des dégâts. Parfois il est nécessaire de lutter directement contre la *Bruche*, faute d'avoir pu éviter son développement, on parle de lutte curative elle s'applique alors que la bruche est déjà présente et active.

Labeyrie [66], affirme que les associations culturales entre céréales et légumineuses telles qu'elles sont pratiquées en Amérique du sud et en Afrique peuvent limiter la contamination des gousses de légumineuses par les *Bruchidae*.

Parmi ces moyens de lutte, on trouve :

V.4.1 Lutte préventive

Cette lutte consiste en une hygiène rigoureuse des moyens de transport, des locaux de stockage, des installations de manutention et des machines de récolte. Il est important d'isoler les nouvelles récoltes de celles qui sont anciennes dans l'entrepôt. Comme les locaux de stockage, les alentours des bâtiments doivent être propres et parfaitement dégagés. Pendant le stockage, le produit doit être régulièrement inspecté et les locaux régulièrement nettoyés.

- le produit doit être correctement nettoyé avant la mise en stock, afin d'éviter, tout au moins limiter l'émigration des insectes vers les cultures.

Pour la lutte contre les *Bruchidae* dans les champs, on pratique la culture en mélange. Lorsqu'un champ comporte une seule espèce, les parasites de cette espèce ont toutes les facilités pour s'y développer et pulluler. Par contre s'il y a plusieurs espèces associées, l'extension et la pullulation du déprédateur sont limitées [53].

V.4.2 Lutte curative

V.4.2.1 Lutte physique

➤ Lutte par le froid

Au-dessous de 10° C le développement des insectes est bloqué. Quand on sait que l'activité de la Bruche est nettement ralentie, voire arrêtée lorsque la température descend au dessous de 10°C, on peut éviter le développement de l'insecte en conservant les graines dans un local suffisamment frais. Le maintien des entrepôts à une température de 10°C pendant un mois ou quelques heures à -1 °C, entraîne la mortalité des adultes.

➤ Lutte par la chaleur

Toutes les formes des ravageurs des denrées, se trouvent dans une masse de grains sont éliminées après 10 minutes d'exposition à une température de 60°C sans conséquence sur le pouvoir germinatif des grains.

Selon Khelil le maintien d'une température de 40°C pendant deux jours empêche toute éclosion possible des oeufs d'âge très jeune. Pour les œufs âgés de 96 à 120 heures, la sensibilité ne se manifeste qu'à partir du troisième jour [67].

➤ Modification de l'atmosphère du milieu

Il s'agit d'abaisser le taux d'oxygène de l'atmosphère inter granulaire jusqu'à un taux létal pour les insectes (inférieur à 1 % d'O₂). En effet les insectes des grains stockés ne survivent pas dans une atmosphère riche en gaz carbonique (60%) et en azote (97 à 99%) en raison de la raréfaction de l'oxygène (-1%), ce qui provoque l'asphyxie des insectes.

➤ Irradiation aux rayons gamma

C'est une technique utilisée dans de nombreux pays pour lutter contre les insectes ravageurs, les doses élevées tuent les insectes alors que les faibles doses les stérilisent.

Des dangers certains pèsent cependant sur l'opération, lors de la manipulation et même à long terme sur les consommateurs.

V.4.2.2 Lutte chimique

Le groupe d'insecticides polyvalents le plus utilisé contre les insectes des grains est celui des organophosphorés. La substance la plus employée et la plus efficace est le primiphos-méthyle fréquemment utilisés dans le passé. Ils ne sont quasiment plus employés aujourd'hui à cause de leur toxicité pour l'homme et les animaux domestiques.

Dans le cas des grands lots de stockage, l'usage de fumigation est une technique efficace.

Les fumigants donnent une protection totale liée à leur diffusion à l'intérieur des grains, pouvant atteindre les formes cachées des ravageurs. L'intérêt majeur de la fumigation est la faculté du gaz insecticide de pénétrer à l'intérieur du grain et donc de détruire les oeufs, larves et nymphes qui s'y développent. Malheureusement il présente une incidence défavorable sur l'homme et les animaux domestiques, insectes pollinisateurs, et même la faculté germinative des grains.

La résistance aux fumigants (phosphine et bromure de méthyle) a été observée chez de nombreux insectes ravageurs des grains dans le monde, dont certains pays africains et asiatiques. C'est pour ces raisons la, que les chercheurs s'orientent maintenant vers des luttes par les méthodes biologiques.

V.4.2.3 Lutte biologique

Comme les coûts des pesticides reste élevé et présente un certain nombre d'inconvénients, il est préférable d'appliquer une lutte ou un contrôle biologique pour les *Bruchidae*.

La lutte biologique contre les ravageurs d'une culture est celle qui utilise les parasites ou les prédateurs de ces ravageurs en vue de diminuer leurs dégâts, il y a deux façons de la pratiquer :

- ✦ La lutte biologique directe est celle qu'on réalise en introduisant dans les champs les ennemis du ravageur.
- ✦ La lutte biologique indirecte est celle qui consiste à aménager le milieu de culture de telle sorte qu'il accueille le plus grand nombre possible d'ennemis des principaux ravageurs des plantes cultivées.

L'une des méthodes de lutte dite traditionnelle est la lutte par des produits naturels (extrait de plantes, huiles,...etc.) contrairement à la lutte par produits artificiels (chimiques). Leur toxicité pour l'homme et les animaux est souvent faible sinon nulle, et sans inconvénients sur les grains.

Le mélange d'huile (arachide...) au grain (notamment de légumineuses) dans des proportions de 5 ml/kg est une technique qui a été proposée pour la lutte contre les insectes. Cette pratique empêche l'adhésion des oeufs à la graine, et donc présente une méthode de protection très efficace.

Quelle que soit la forme de lutte, il faut accepter que les ravageurs prennent leur part des récoltes. Le but de ces différentes formes de lutte (préventives et curatives) est de diminuer le taux de parasitisme au dessous d'un seuil acceptable.

Chapitre

III

Matériels et Méthodes

CHAPITRE II

MATERIELS ET METHODES

Parmi les différentes méthodes d'exploitation des plantes aromatiques, nous nous sommes intéressés à l'extraction par solvant volatil qui est un cas particulier de l'extraction solide liquide.

Le thème de cette étude porte sur l'extraction d'une espèce d'origan dite *Origanum glandulosum* provenant de la wilaya de Sétif, cueillie en période de floraison. Cette plante a été choisie en raison de sa disponibilité. Pour ce faire, nous devons tout d'abord définir le procédé à mettre en œuvre, le type de solvant à utiliser et les facteurs affectant le procédé.

- Trois procédés seront étudiés :
 - extraction en charge dispersée (batch)
 - extraction par Soxhlet
 - extraction par circulation continue de solvant
- Le choix du solvant s'est porté sur l'éthanol puisqu'il possède une température d'ébullition peu élevée, une faible viscosité et une grande capacité de dissolution. Ce choix est basé aussi sur les résultats des travaux antérieurs signalant la présence dans l'extrait d'origan de phénols.
- Plusieurs facteurs influençant l'extraction par solvant doivent être pris en considération pour la récupération de la concrète, les paramètres choisis sont :
 - la vitesse d'agitation du milieu « W »
 - la température d'extraction « T »
 - l'hydromodule « h » ; définit comme étant le rapport entre le volume de solvant et la masse de matière végétale, il est exprimé en m^3/Kg
 - la nature du solvant
 - le débit du solvant

I. LES PROCÉDES D'EXTRACTION PAR SOLVANT

I.1 Extraction en charge dispersée (batch)

L'appareillage (figure 6) est constitué d'un ballon thermostaté à deux cols qui repose sur une plaque d'agitation magnétique est surmonté d'un réfrigérant. Un des cols est prévu pour le prélèvement des fractions de la phase liquide (miscella) au cours de l'extraction, la concrète est récupérée après évaporation du solvant.

Suite à des essais préliminaires, la durée d'extraction a été fixée à 7 heures pour l'ensemble des manipulations. Tous les essais ont été réalisés en utilisant une masse de 20 g de matière végétale dont le taux d'humidité est de 6,48 %. Afin de suivre la cinétique d'extraction, des prélèvements ont été réalisés à des intervalles de temps réguliers, la somme des volumes prélevés est de 18ml ; l'erreur due à ces prélèvements ne dépasse pas 4,5%.

I.2 Extraction par Soxhlet

Le Soxhlet est un appareil de laboratoire utilisé pour l'extraction. Son principe est le suivant : le solvant d'extraction est porté à ébullition, les vapeurs de solvant traversent le Soxhlet, se condensent dans le réfrigérant et retombent dans le corps de l'extracteur, faisant ainsi macérer le solide dans le solvant (figure 7) [28].

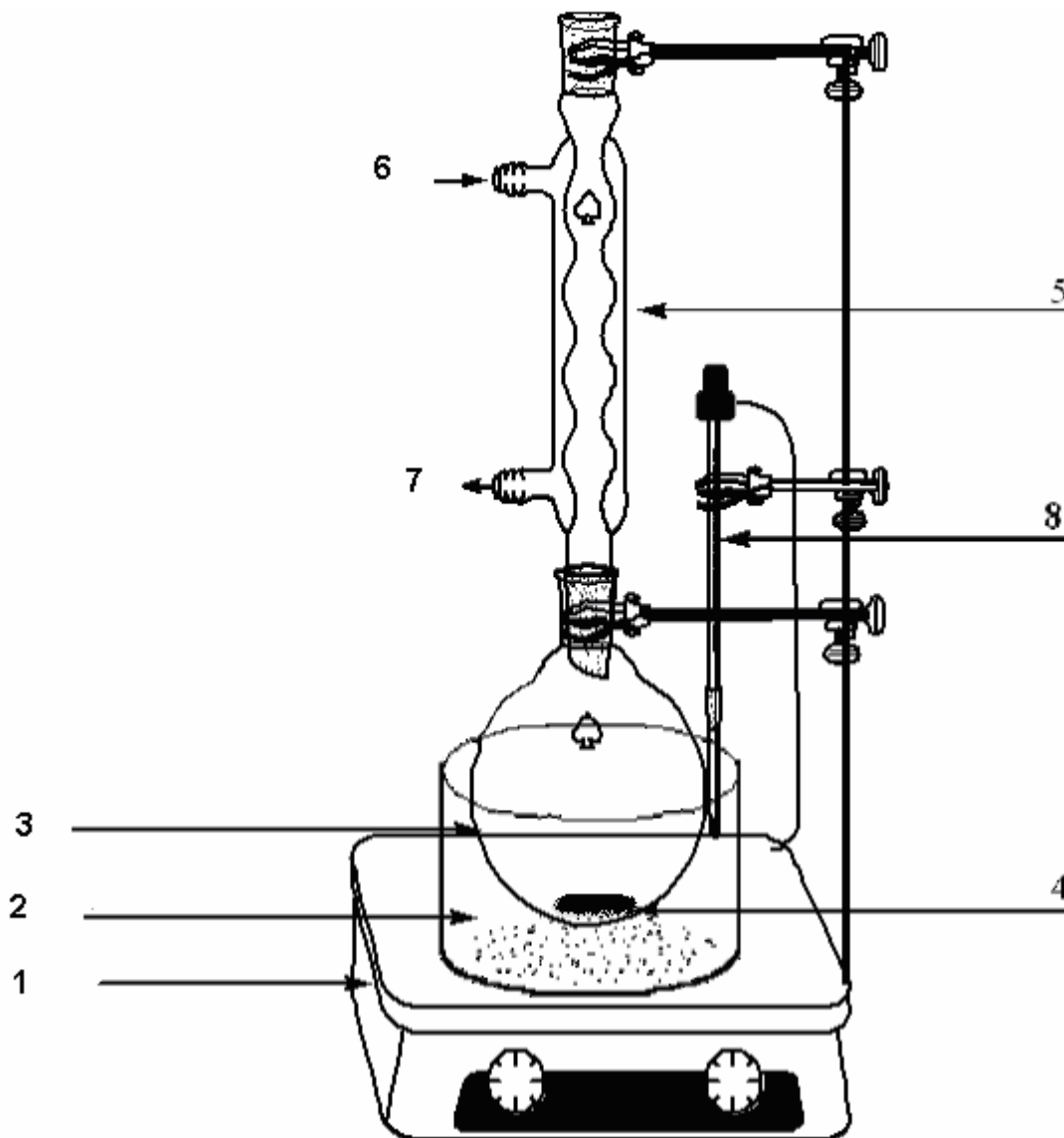
Le solvant condensé s'accumule dans l'extracteur jusqu'à atteindre le sommet du tube-siphon qui provoque alors le retour du liquide dans le ballon, accompagné des substances extraites. Le solvant contenu dans le ballon s'enrichit donc progressivement en composés solubles.

L'extraction est réalisée durant 7 heures sur 20g de matière végétale avec un volume de solvant de 500 ml. La concrète est récupérée après évaporation du solvant à l'aide d'un évaporateur rotatif.

I.3 Extraction par circulation continue de solvant

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 8. Une circulation continue de solvant à débit constant est assurée par un système de distillation composé d'un ballon tricol rempli de solvant et porté à ébullition. L'ensemble est relié à une colonne vigreux et réfrigérant servant à purifier et à condenser les vapeurs de solvant qui s'écoulent par percolation sur le solide contenu dans une colonne.

La partie inférieure de la colonne d'extraction est munie d'un système de réglage de débit de solvant [68].



- 1- Plaque chauffante avec agitation magnétique.
- 2- Bain thermostaté.
- 3- Ballon + Matière végétale + Solvant.
- 4- Barreau magnétique.
- 5- Réfrigérant.
- 6- Entrée d'eau de refroidissement
- 7- Sortie d'eau de refroidissement.
- 8- Thermomètre.

Figure 6 : Dispositif d'extraction en charge dispersée (Batch).

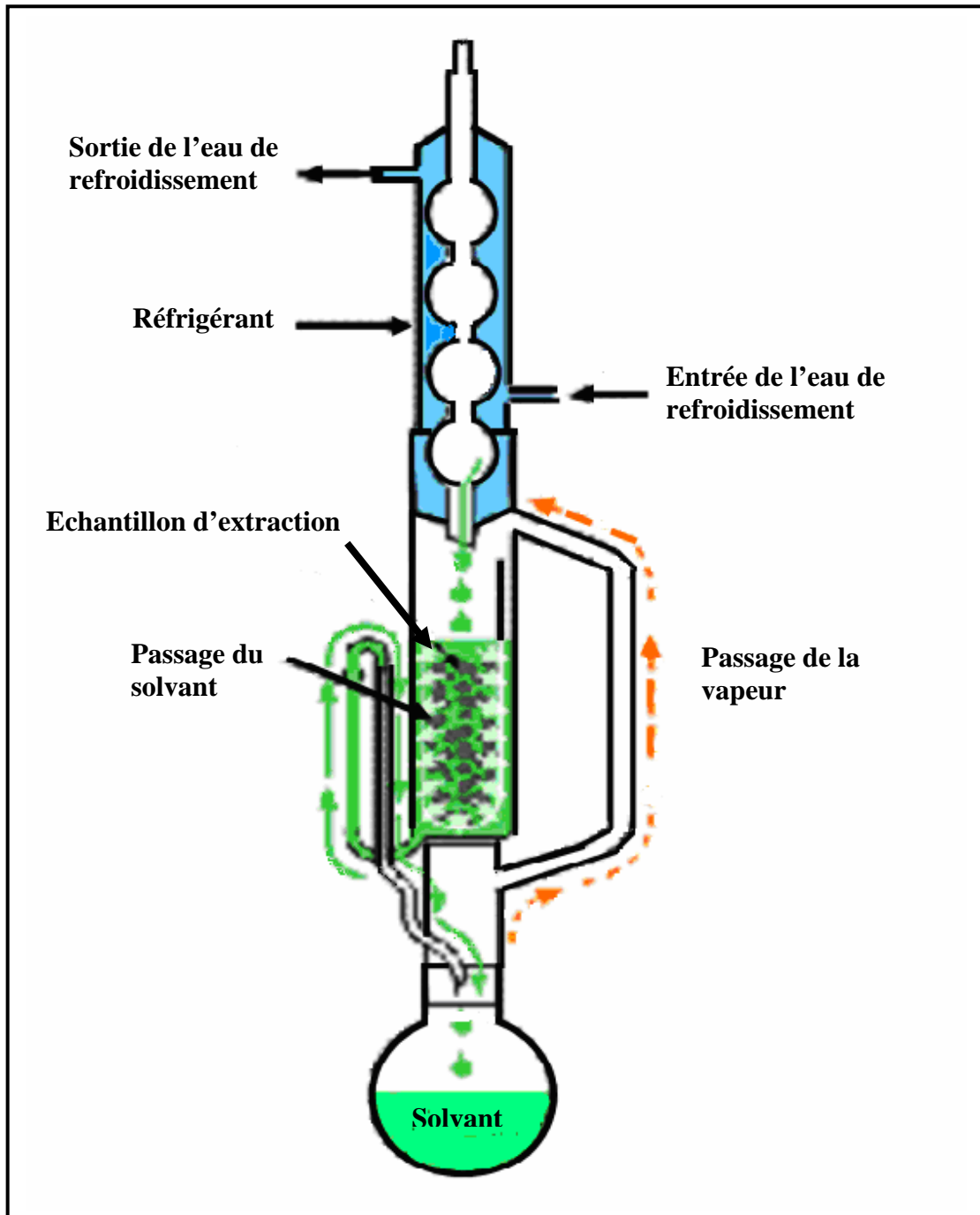


Figure 7 : Dispositif d'extraction par Soxhlet [28].

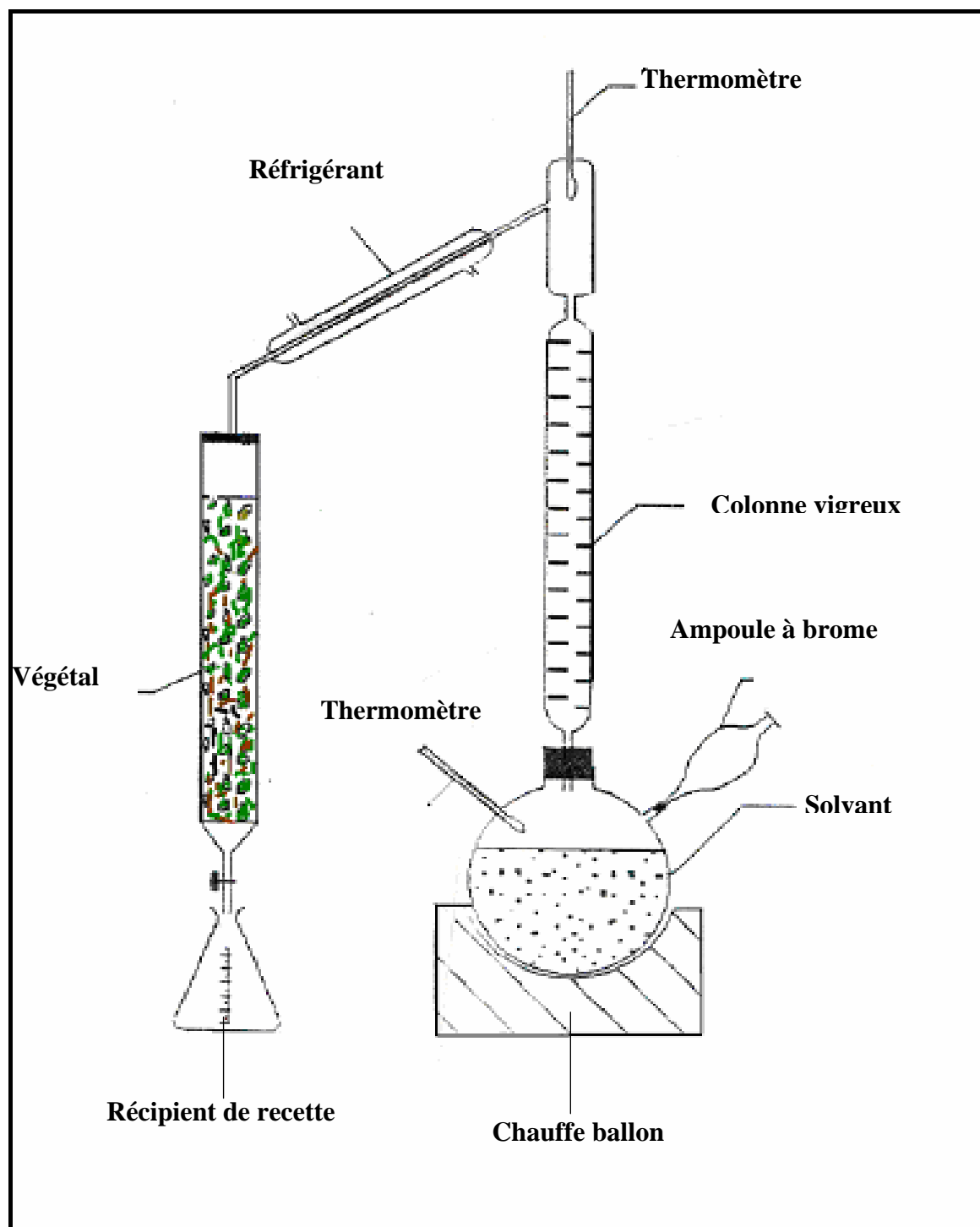


Figure 8 : Dispositif d'extraction par circulation continue de solvant volatil [68]

II METHODES DE CALCULS ET DE MESURES

II.1 Echantillonnage par quartage

Cette méthode manuelle se trouve être la plus ancienne méthode d'échantillonnage des solides morcelés. La méthode de quartage consiste après une homogénéisation des plus sommaires par pelletage du lot sur lui – même de façon à former un cône, à étaler ce dernier en forme de carré que l'on partage en quatre quartiers. Deux quartiers opposés sont retenus pour former un échantillonnage.

II.2 Taux d'humidité

Afin de déterminer le taux d'humidité de la plante, nous avons utilisé la méthode de distillation au xylène à l'aide du dispositif de Dean et Stark (figure 9). La teneur en eau de la matière végétale est calculée par l'équation suivante :

$$H = \frac{V \times d_{H_2O}^{20^\circ C}}{m_H} \times 100$$

Où :

H : taux d'humidité de la plante (%) (g_{eau}/g_{mH})

V : volume d'eau (ml)

m_H : masse de matière végétale humide

$d_{H_2O}^{20^\circ C}$: densité de l'eau égale à 0,998

Le taux d'humidité de la matière végétale utilisé est de 6,48%.

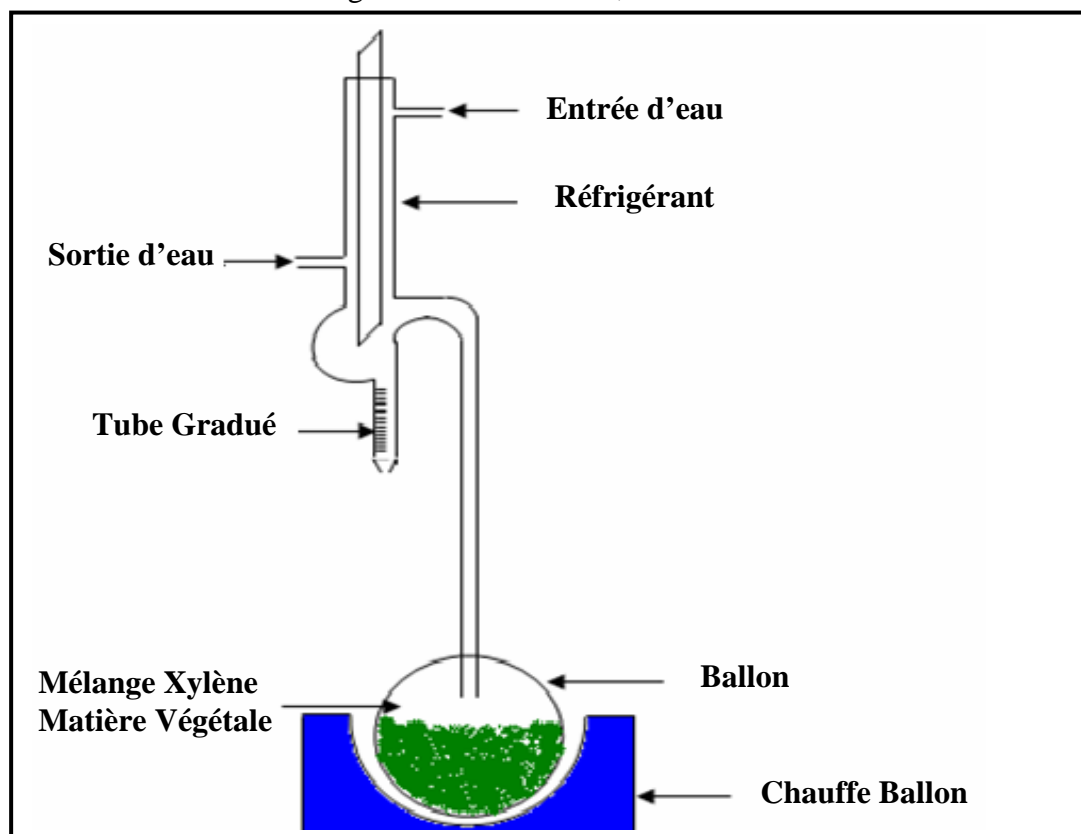


Figure 9 : Dispositif de Dean et Stark.

II.3 Rendement en concrète

Le rendement en concrète à l'instant « t » est donné soit par l'équation suivante :

$$R_c (\%) = \frac{m_c \cdot V_T}{m_s \cdot V_p} \cdot 100 \quad (\text{II.1})$$

Où :

m_c : masse de concrète (g)

m_s : masse de matière végétale sèche (g)

V_T : volume total de solvant introduit dans le ballon (ml)

V_p : volume du prélèvement au cours de l'extraction (ml)

Soit par :

$$R_c (\%) = \frac{m_c}{m_s} \cdot 100 \quad (\text{II.2})$$

Tel que :

$$m_s = (1 - H)m_H \quad (\text{II.3})$$

➤ Propriétés des solvants utilisés :

	ETHANOL	XYLENE	EAU DISTILLEE
1- Masse molaire (g/mol)	46.07	106.16	18
2- Température de fusion (°C)	-117	-48	0
3- Température d'ébullition (°C)	78	139	100
4- Température d'auto-inflammation (°C)	363	527	-
5- Point d'éclaire (°C)	13	27	-
6- Pureté (%)	99	99	99
7- Pression de vapeur à 20°C (Kpa)	5,8	0,8	23,4
8- Masse volumique (g/cm ³)	0,79	0,86	1
9- Apparence	liquide incolore	liquide incolore	liquide incolore

III. ETUDE DE L'ACTIVITE INSECTICIDE DE LA CONCRETE D'ORIGAN SUR *CALLOSBRUCHUS MACULATUS* (F.)

III.1 Matériel biologique

III.1.1 L'espèce entomologique

Callosobruchus maculatus (F.) est l'espèce de bruche sur la quelle nous avons réalisé nos essais. Nous avons utilisé des adultes âgés de 0 à 24h, issus d'un élevage de masse réalisé à l'Institut National Agronomique (I.N.A) au laboratoire de Zoologie dans des bocaux en

verre de 18 cm de hauteur et 11 cm de diamètre, sur des graines de pois chiche (*cicer arietinum*). Les bocaux étaient maintenus à l'obscurité dans une étuve réglée à une température de $28 \pm 1^\circ\text{C}$ et une humidité de $70 \pm 5\%$ (Figure 10).

III.1.2 L'espèce végétale

Deux végétaux sont utilisés pour la réalisation de notre travail à savoir : le pois chiche (*Cicer arietinum*) et l'origan (*Origanum glandulosum*).

- ✦ Le pois chiche nous a permis de réaliser notre élevage de masse et nos essais.
- ✦ L'extrait d'origan récupéré par le procédé d'extraction par Soxhlet a été utilisé comme matière active toxique.



Figure 10 : Elevage de *Callosobruchus maculatus* (F.).

III.2 Evaluation de la toxicité de l'origan

Pour évaluer la toxicité des extraits d'origan, deux effets ont été étudiés : l'effet adulticide et l'effet ovicide.

III.2.1 Effet adulticide

Le principe de la méthode consiste à mettre en contact des adultes de *Callosobruchus maculatus* (F.) avec les différents extraits d'origan et de déterminer la mortalité pour chacun de ces extraits. Pour ce faire nous avons pulvérisé les boîtes de Pétri avec 4 ml d'extrait.

Après séchage à l'air, 15 couples de *Callosobruchus maculatus* (F.) âgés de 0 à 24h sont déposées dans les boîtes pendant 3 heures. Ensuite, on ajoute 50g de pois chiches dans chaque boîte.

Les boîtes sont fermées hermétiquement avec du scotch pour assurer le mode de pénétration des extraits par contact-inhalation, et déposées dans une étuve.

04 jours après le traitement, nous procédons au comptage des morts pour chaque extrait ainsi que pour les témoins.

Quatre répétitions sont réalisées pour chaque extrait ainsi que pour les témoins.

III.2.2 Effet ovocide

Cet essai se propose d'évaluer l'action toxique des différents extraits sur les œufs de *Callosobruchus maculatus* (F.). Pour cela, nous avons mis à pondre des femelles dans des boîtes de pétri pendant 12 heures pour obtenir des œufs de même âge.

Les œufs pondus sont comptés et traités par pulvérisation par les différents extraits. L'essai a été répété quatre fois.

Neufs jours après traitement, les œufs éclos sont comptés, ce qui nous permet de déterminer l'effet ovocide des extraits étudiés.



Figure 11 : Essais réalisés par effet « contact-inhalation ».

III.3 Correction de la mortalité

Le nombre d'individus démontrés morts dans une population traitée par un produit toxique n'est pas le nombre réel d'individus tués par ce toxique. Il existe, en effet, dans toute population une mortalité naturelle qui s'ajoute à la mortalité provoquée par ce toxique.

La formule de Shneider-Orelli permet de corriger la mortalité :

$$M_c(\%) = \frac{M - M_t}{100 - M_t} * 100 \quad (\text{II.4})$$

Tel que :

M_c (%) : pourcentage de mortalité corrigée.

M : pourcentage de mortalité dans la population traitée.

M_t : pourcentage de mortalité dans la population témoin.

Chapitre

III

Résultats et Discussion

CHAPITRE III

RESULTATS ET DISCUSSION

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats obtenus par les essais réalisés pour l'étude des différents procédés d'extraction de la concrète d'origan.

Pour atteindre les conditions optimales permettant d'aboutir aux meilleurs résultats possibles, une optimisation du procédé a été effectuée. La méthode classique est la première étape à entreprendre lors d'une étude d'optimisation dans la mesure où elle donne des informations sur le comportement du système étudié. Son principe consiste à faire varier un des paramètres tout en gardant les autres constants et estimer l'influence de ses variations sur la réponse du système.

Dans notre cas la réponse du système est le rendement en concrète et la cinétique d'extraction. La figure 12 illustre l'ensemble des séries d'expériences entreprises lors de cette étude.

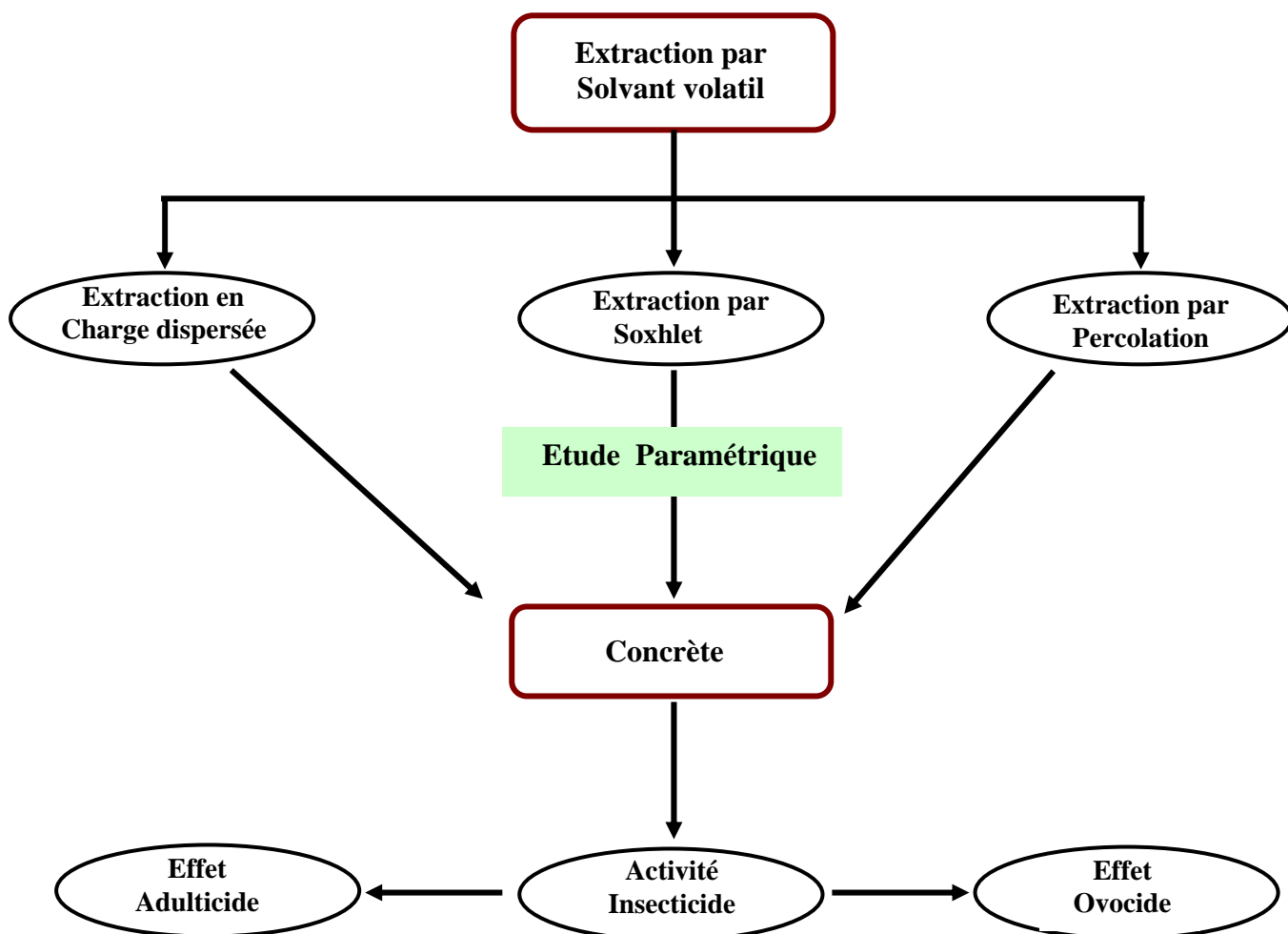


Figure 12 : Etudes expérimentales.

I. EXTRACTION EN CHARGE DISPERSÉE

L'étude paramétrique effectuée pour l'extraction en charge dispersée de la concrète d'origan a porté sur l'évaluation de l'influence du temps d'extraction, la vitesse d'agitation, le rapport volume du solvant / masse de matière végétale, la température et la nature du solvant sur le rendement en concrète et sur la cinétique d'extraction. Des essais préliminaires ont permis de fixer le temps d'extraction à 7heures.

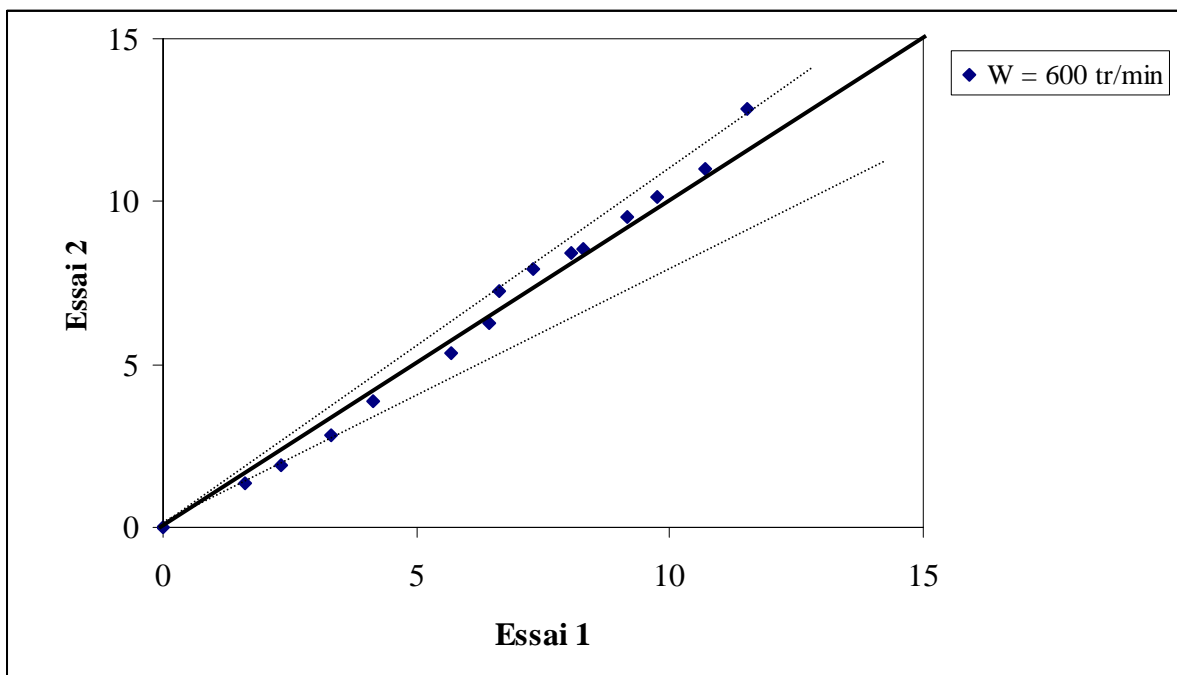
Tableau 5 : Conditions opératoires de l'extraction en charge dispersée.

Durée D'extraction (min)	Masse de la plante(g)	Taux d'humidité de la plante (%)	Type de solvant	Vitesse d'agitation (tr/min)	Température (°C)	Hydromodule (m ³ /kg)
420	20	6,48	Ethanol 100%	0	20	0,01
				400		
				600		
				800		
			Ethanol 100%	600	40	0,01
					20	0,0075
						0,0125
			Ethanol 60%-Eau 40%	600	20	0,01

Afin de vérifier la reproductibilité des résultats, plusieurs expériences ont été effectuées dans les mêmes conditions opératoires. Les résultats sont regroupés dans le tableau 6 et représentés sur la figure 13, l'erreur sur le rendement ne dépasse pas 1%.

Tableau 6 : Reproductibilité des résultats.

Rendement (%) H= 6,48% m=20g h=0,1m ³ /kg T=20°C W= 600tr/min		
Temps (min)	Essai 1	Essai 2
0	0	0
5	1,34	1,63
10	1,90	2,35
20	2,83	3,31
30	3,88	4,15
45	5,32	5,67
60	6,28	6,42
90	7,27	6,63
120	7,93	7,30
150	8,45	8,03
180	8,54	8,27
240	9,50	9,16
300	10,16	9,75
360	11,01	10,69
420	12,83	11,53

**Figure 13** : Reproductibilité des résultats.

I.1 Etude de l'influence du temps d'extraction

Afin d'évaluer l'influence du temps d'extraction sur le rendement en concrète et sur la cinétique d'extraction, des prélèvements ont été effectués à des intervalles de temps réguliers. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 14.

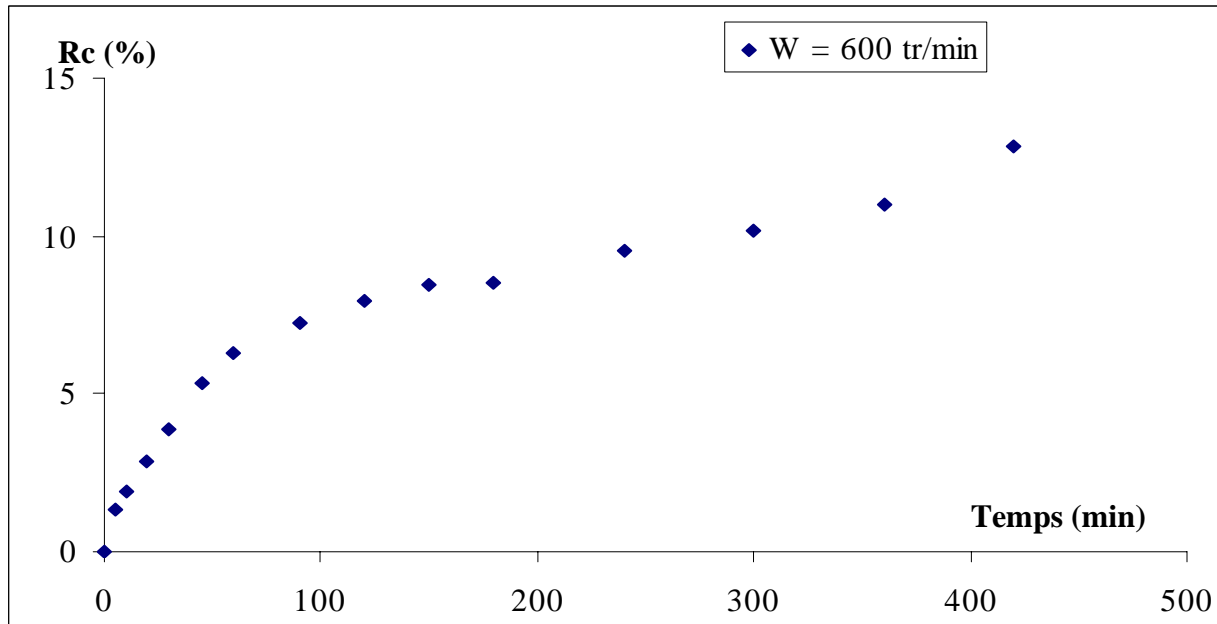


Figure14 : Evolution du rendement en concrète au cours du temps.

Les variations du rendement en concrète, montrent que le rendement augmente rapidement durant les quatre vingt dix premières minutes, son évolution devient plus lente jusqu'à 300 min puis elle augmente ce qui montre que l'extraction n'est pas totale.

Cette évolution du rendement s'expliquerait par l'extraction de la concrète située dans des sites superficiels puis de celle contenu dans des sites endogènes.

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 est donnée par :

$$-\ln \left[1 - \frac{R_C}{R_\infty} \right] = k_E t \quad (\text{III.1})$$

Où

R_C : le rendement en concrète à l'instant t (%).

R_∞ : le rendement au temps infini en concrète (%).

k_E : la constante de vitesse d'extraction (min^{-1}).

La représentation graphique de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps (figure 15) met en évidence deux droites correspondants à deux étapes, montrant que la vitesse d'extraction suit une loi du premier ordre.

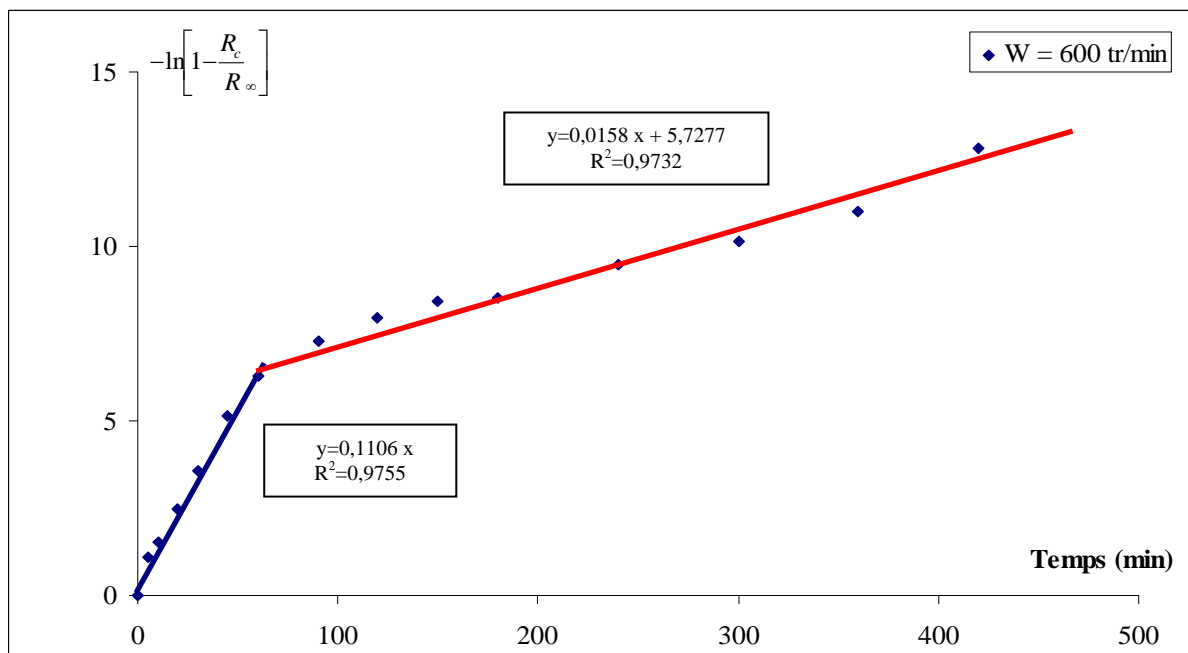


Figure 15: Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps pour $W = 600 \text{ tr/min}$.

La première phase de 0 à 60 min correspond à l'extraction de la concrète située à la surface de la matière végétale. L'étape suivante de 60 à 360 minutes correspondrait à la récupération de la concrète située dans des sites endogènes.

Les constantes de vitesse sont égales à :

$$K_{E1} = 0,1106 \text{ min}^{-1} \quad \text{et} \quad K_{E2} = 0,0158 \text{ min}^{-1}$$

Nous remarquons que la constante de vitesse de la seconde étape est beaucoup plus faible que celle de la première étape. L'extraction est donc plus lente et ferait intervenir des phénomènes de diffusion de la concrète située dans des dépôts internes difficilement accessibles.

Ces résultats sont en accord avec les recherches menées par Spiro et all qui ont permis de constater que la cinétique d'extraction de la concrète de romarin suit une loi du premier ordre [69].

I.2 Etude de l'influence de la vitesse d'agitation

I.2.1 Influence de la vitesse d'agitation sur le rendement en concrète

Pour évaluer l'effet de la vitesse d'agitation nous avons réalisé des essais d'extraction à une température de 20°C, un hydromodule de 0.01m³/kg pour différentes vitesses d'agitation (0-400-600-800) tr/min. Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 7 et illustrés par la figure 16.

Nous constatons que l'augmentation de la vitesse d'agitation à un effet favorable sur le rendement d'extraction. Ceci peut être expliqué par le fait que l'agitation du milieu permet un meilleur contact entre les phases liquide et solide, entraînant une meilleure diffusion du soluté dans le solvant.

Tableau 7 : Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différentes vitesses d'agitation.

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g h=0,1m ³ /kg T=20°C			
	0 tr/min	400 tr/min	600 tr/min	800 tr/min
0	0	0	0	0
5	0,55	1,01	1,34	2,99
10	1,29	1,16	1,90	3,05
20	1,74	1,78	2,83	3,31
30	2,38	2,52	3,88	4,54
45	2,95	3,21	5,32	4,70
60	3,74	4,05	6,28	6,52
90	4,70	5,33	7,27	7,27
120	5,87	7,16	7,93	7,91
150	7,30	8,26	8,45	8,34
180	8,01	8,98	8,54	9,09
240	8,96	10,37	9,50	11,33
300	9,55	11,14	10,16	11,76
360	9,81	11,63	11,01	13,26
420	11,23	12,15	12,83	13,69

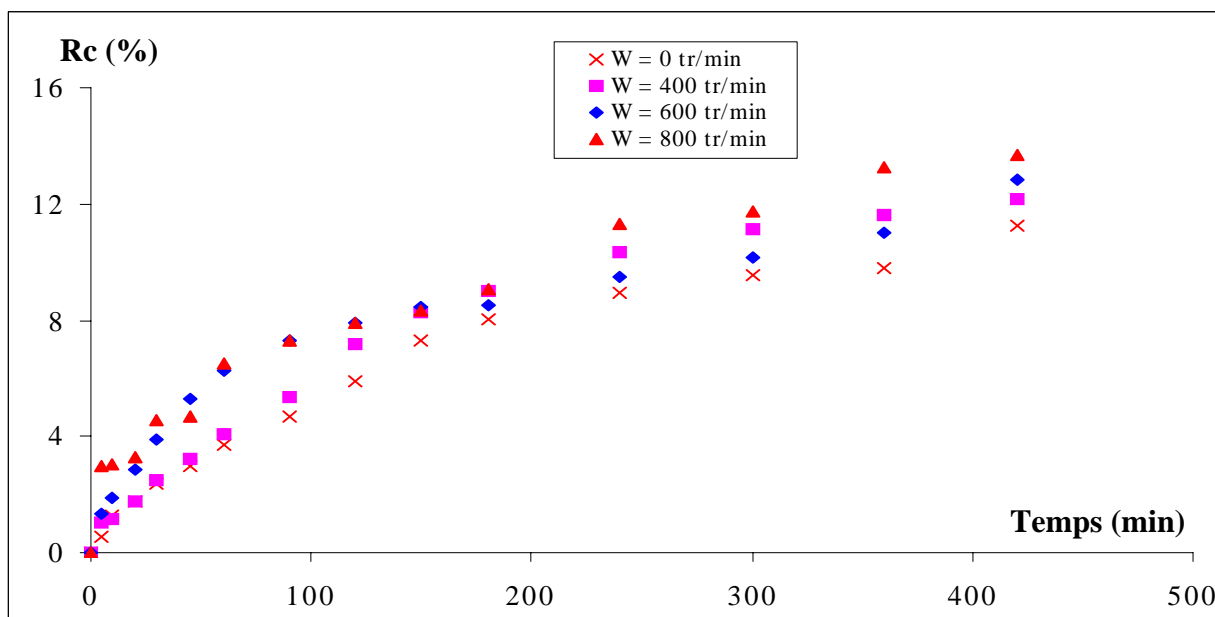


Figure 16 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différentes vitesses d'agitation.

I.2.2 Influence de la vitesse d'agitation sur la cinétique d'extraction

Pour déterminer l'influence de la vitesse d'agitation sur la cinétique d'extraction, nous avons tracé les variations de $-\ln\left[1-\frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps et déterminé les constantes de vitesse. Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 8.

Tableau 8 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes vitesses d'agitation

	Première période		Seconde période		
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2	
0 tr/min		0,0429	0,9813	0,0121	0,9488
400 tr/min		0,0493	0,9841	0,0127	0,9451
600 tr/min		0,1000	0,9743	0,0158	0,9732
800 tr/min		0,1009	0,9378	0,0210	0,9782

L'examen de ce tableau nous a permis de tirer les conclusions suivantes :

Nous remarquons que les constantes de vitesse de la première période sont plus importantes que celle de la deuxième. L'augmentation de la vitesse d'agitation entraîne une augmentation de la constante de vitesse de la première étape. Cependant, au delà de 600 tr/min la différence n'est pas très importante. Ce qui nous a amené à fixer la vitesse d'agitation à 600 tr/min pour les essais suivants.

I.3 Etude de l'influence du rapport solvant/masse de matière végétale

I.3.1 Influence du rapport solvant / masse de matière végétale (h) sur le rendement en Concrète

Les résultats du rendement en fonction du temps pour trois valeurs de h : $0,0075\text{m}^3/\text{kg}$ - $0,01\text{m}^3/\text{kg}$ et $0,0125\text{m}^3/\text{kg}$ sont regroupés dans le tableau 9 et représentés par la figure 17.

Tableau 9 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps
Pour différentes valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale

Temps (min)	Rendement (%) H= 6.48% m=20g W=600 tr/min T=20°C		
	h=0,0075m ³ /kg	h=0,01m ³ /kg	h=0,0125m ³ /kg
0	0	0	0
5	2,04	1,34	1,27
10	3,05	1,90	1,80
20	4,04	2,83	1,87
30	5,25	3,88	3,21
45	6,59	5,32	4,68
60	7,63	6,28	5,75
90	8,42	7,27	6,68
120	8,82	7,93	7,22
150	9,30	8,45	7,89
180	9,38	8,54	8,42
240	10,18	9,50	8,69
300	11,07	10,16	9,23
360	11,23	11,01	9,62
420	13,79	12,83	9,89

De meilleurs rendements sont obtenus pour une faible valeur de h , ceci pourrait s'expliquer par le fait que lorsque h est élevé, la quantité de solvant est plus importante entraînant une faible concentration donc un contact entre les deux phases amoindri d'où des rendements faibles. Par contre pour des quantités plus faibles, nous constatons un meilleur contact entre la plante et le solvant ce qui permet d'obtenir un solvant très concentré, par conséquent la quantité d'extrait est plus importante. Ceci permet de conclure que la diffusion du soluté n'est pas limitée par la saturation de la phase liquide.

Des résultats similaires ont été obtenus pour d'autre type de plantes [70].

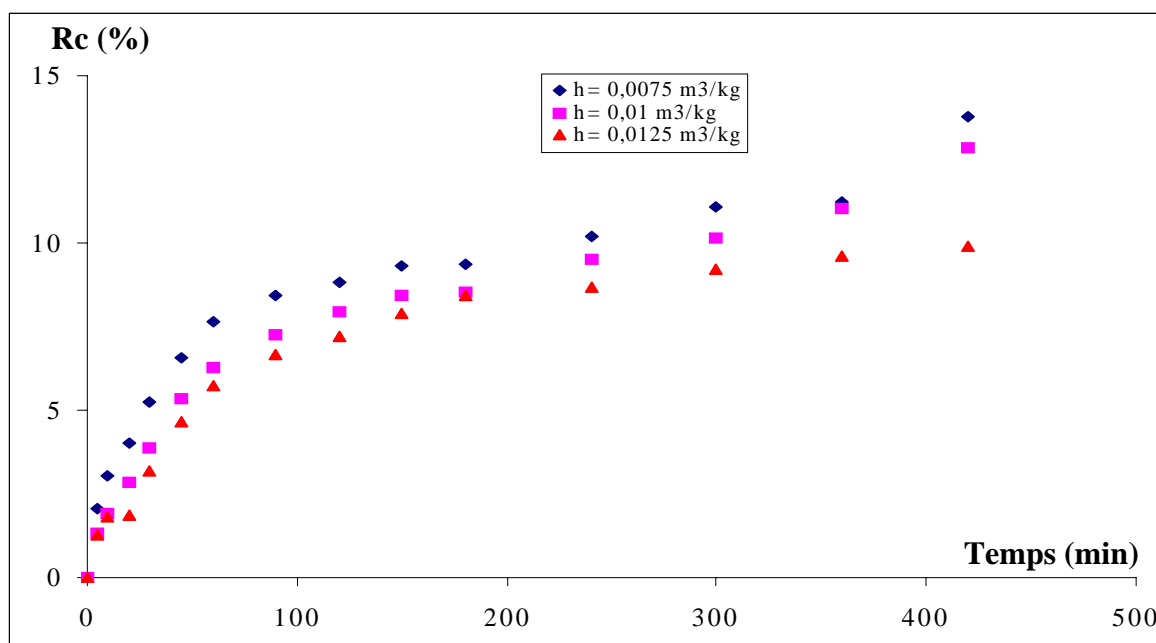


Figure 17 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différentes Valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale.

I.3.2 Influence du rapport solvant / masse de matière végétale (h) sur la cinétique d'extraction

Pour étudier l'influence de ce paramètre sur la cinétique d'extraction, nous avons

représenté les variations de $-\ln\left[1-\frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps.

La représentation a montré l'existence de deux étapes, une qui correspond à la récupération de la concrète contenue dans les sites superficiels, la deuxième étape correspondrait à l'extraction de la concrète emmagasinée dans des dépôts internes. Les courbes obtenues sont des droites, la cinétique est d'ordre 1.

Les paramètres de régression linéaire sont regroupés dans le tableau 10.

Tableau 10 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes valeurs du rapport solvant/masse de matière végétale.

	Première période		Seconde période	
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2
$h= 0,0075m^3/kg$	0,1160	0,9322	0,0144	0,9393
$h= 0,01m^3/kg$	0,1000	0,9743	0,0158	0,9732
$h= 0,0125m^3/kg$	0,0899	0,9701	0,0106	0,9043

Nous remarquons que les constantes de vitesse de la première étape sont plus importantes que celles de la deuxième étape. De plus, elles ne sont pas très influencées par la variation du rapport solvant/masse de matière végétale.

I.4 Etude de l'influence de la température d'extraction

I.4.1 Influence de la température sur le rendement en concrète

La température opératoire est limitée par l'extraction des composés indésirables, la thermodégradation éventuelle de la concrète, la sécurité de l'installation, ainsi que la température d'ébullition du solvant qui est de 78,5°C [12].

Deux températures opératoires ont été étudiées 20°C et 40°C pour une vitesse d'agitation de 600tr/min et un rapport solvant/masse de matière végétale est de 0,01m³/kg. Nous avons obtenus les résultats regroupés dans le tableau 11 et représentés par la figure 18.

Nous remarquons l'effet positif de la température sur le rendement en concrète ; ceci peut aisément s'expliquer par le fait que cette dernière augmente généralement la solubilité du soluté en réduisant la viscosité du solvant, ce qui facilite sa diffusion dans le solvant.

Tableau 11 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différentes températures.

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g W=600 tr/min h= 0,01m ³ /kg	
	T = 20°C	T = 40°C
0	0	0
5	1,34	1,97
10	1,90	2,90
20	2,83	4,60
30	3,88	6,26
45	5,32	7,38
60	6,28	7,91
90	7,27	8,34
120	7,93	9,09
150	8,45	9,73
180	8,54	10,48
240	9,50	11,33
300	10,16	12,19
360	11,01	13,26
420	12,83	14,11

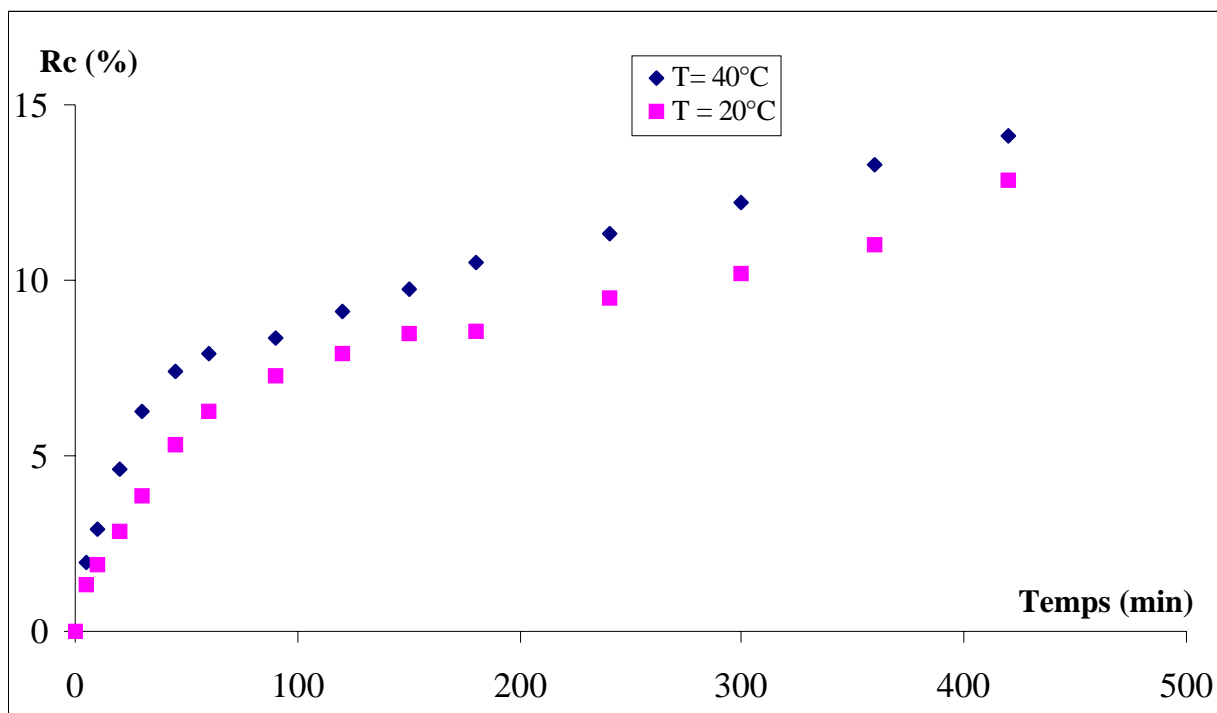


Figure 18 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différentes températures.

I.4.2 Influence de la température sur la cinétique d'extraction

Afin de vérifier que la cinétique d'extraction suit une loi du premier ordre, nous avons tracé les variations de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps.

La représentation de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps pour des températures de 20°C et 40°C met bien en évidence deux droites de pentes K_{E1} et K_{E2} montrant ainsi que la vitesse d'extraction évolue selon l'ordre 1.

Les résultats des paramètres de la cinétique d'extraction sont donnés dans le tableau 12. Nous remarquons que les constantes de vitesse de la première période sont supérieures à celles de la deuxième période et ceci quelque soit la température étudiée. De plus, la température influe positivement sur la constante de vitesse de la première période. En effet, la valeur obtenue pour une température de 40°C est supérieure à celle obtenue à 20°C. L'influence de la température sur la constante de vitesse de la seconde étape n'est pas très importante.

Tableau 12 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différentes températures.

	Première période		Seconde période	
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2
T = 40°C	0,1585	0,9445	0,0177	0,9916
T = 20°C	0,1000	0,9742	0,0158	0,9732

I.5 Etude de l'influence de la nature du solvant

I.5.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète

Afin d'évaluer l'influence de ce paramètre sur le rendement d'extraction de la concrète d'origan des combinaisons de solvants ont été utilisées.

Les essais ont été réalisés en utilisant de l'éthanol pur et un mélange (éthanol - eau) à différentes proportions (60% éthanol / 40% eau) et (80% éthanol / 20% eau) ; pour une valeur de h de $0,01\text{m}^3/\text{kg}$ et une vitesse d'agitation de 600 tr/min.

Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 13 et représentés par la figure 19.

Tableau 13 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différents solvants ($h= 0,01m^3/kg$).

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g W=600 tr/min h=0,01m ³ /kg		
	Ethanol 60%/Eau 40%	Ethanol 80%/Eau 20%	Ethanol 100%
0	0	0	0
5	4,18	3,43	1,34
10	5,18	4,54	1,90
20	6,95	5,35	2,83
30	8,55	6,42	3,88
45	9,62	8,55	5,32
60	10,69	9,62	6,28
90	13,07	10,62	7,27
120	16,04	10,69	7,93
150	17,95	11,76	8,45
180	18,18	12,83	8,54
240	18,65	13,45	9,50
300	19,18	13,78	10,16
360	19,29	13,90	11,01
420	20,32	14,44	12,83

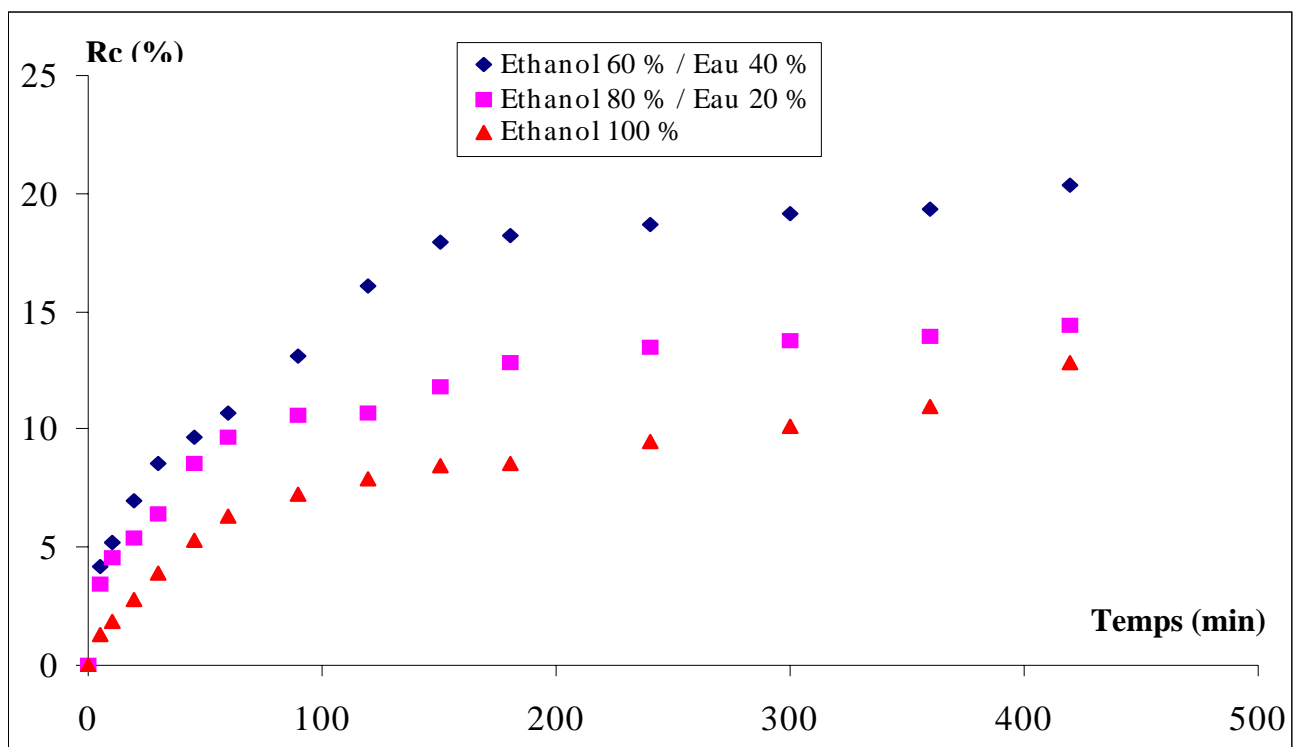


Figure 19 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.

Du point de vue quantitatif, la figure 19 montre que le meilleur rendement est obtenu pour le mélange (60% éthanol-40% eau).

Néanmoins, il est possible que les compositions chimiques des concrètes obtenues soient différentes. Le choix du solvant devra donc tenir compte aussi bien de la qualité de l'extrait que de son rendement.

I.5.2 Influence de la nature du solvant sur la cinétique d'extraction

L'étude de la cinétique d'extraction a été également entreprise pour ce paramètre. L'évolution de la cinétique d'extraction en fonction du temps pour les différents solvants révèlent toujours deux étapes. La cinétique suit donc une loi du premier ordre. Les paramètres cinétiques sont regroupés dans le tableau 14.

Tableau 14 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'organ pour différents solvants.

	Première période		Seconde période		
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2	
Ethanol 60%/Eau 40%		0,1022	0,9189	0,0081	0,9571
Ethanol 80%/Eau 20%		0,1381	0,8909	0,0130	0,8829
Ethanol 100%		0,1000	0,9743	0,0158	0,9732

Dans ce cas également nous remarquons que les constantes de vitesses de la première étape sont plus importantes que celles de la seconde étape. De plus, l'influence de ce paramètre sur la cinétique d'extraction n'est pas très importante.

II. EXTRACTION PAR SOXHLET

Le second procédé étudié est l'extraction par Soxhlet. Trois paramètres ont été étudiés : le temps d'extraction, la nature du solvant et le nombre de siphonages. Le temps a été fixé à 7 heures, la masse de matière végétale est de 20 g et le volume de solvant est de 500 mL.

II.1 Etude de l'influence du temps d'extraction

Afin d'étudier l'influence du temps d'extraction de la concrète d'origan par Soxhlet, nous avons suivi l'évolution du rendement en concrète en fonction du temps. Les résultats obtenus sont représentés à la figure 20.

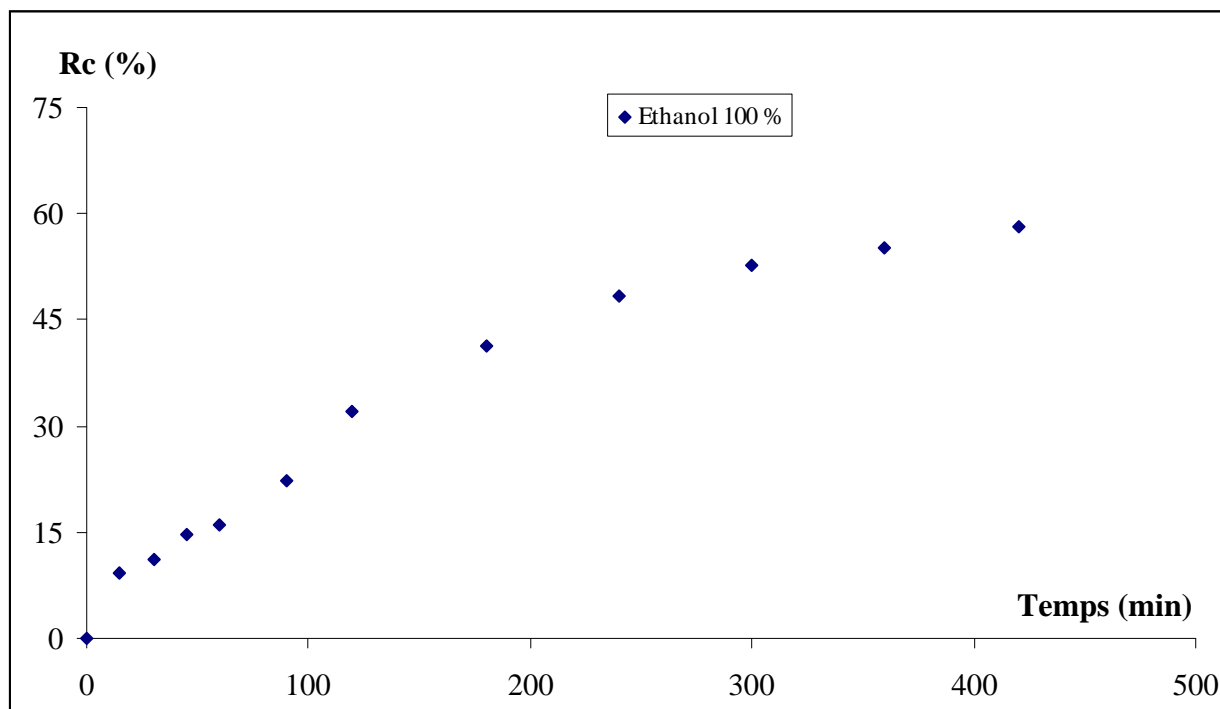


Figure 20 : Evolution du rendement en concrète en fonction du temps pour l'extraction par Soxhlet.

L'examen de la figure 20 montre que le rendement augmente rapidement durant la première demi-heure. Son évolution devient plus lente jusqu'à 60 minutes, puis elle augmente jusqu'à la fin de l'extraction. Nous remarquons qu'après 7 heures d'extraction, le rendement augmente toujours ce qui signifie que l'extraction n'est pas complète.

Par ailleurs et afin de vérifier si la cinétique d'extraction par Soxhlet est d'ordre 1, nous avons représenté les variations de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps, figure 21.

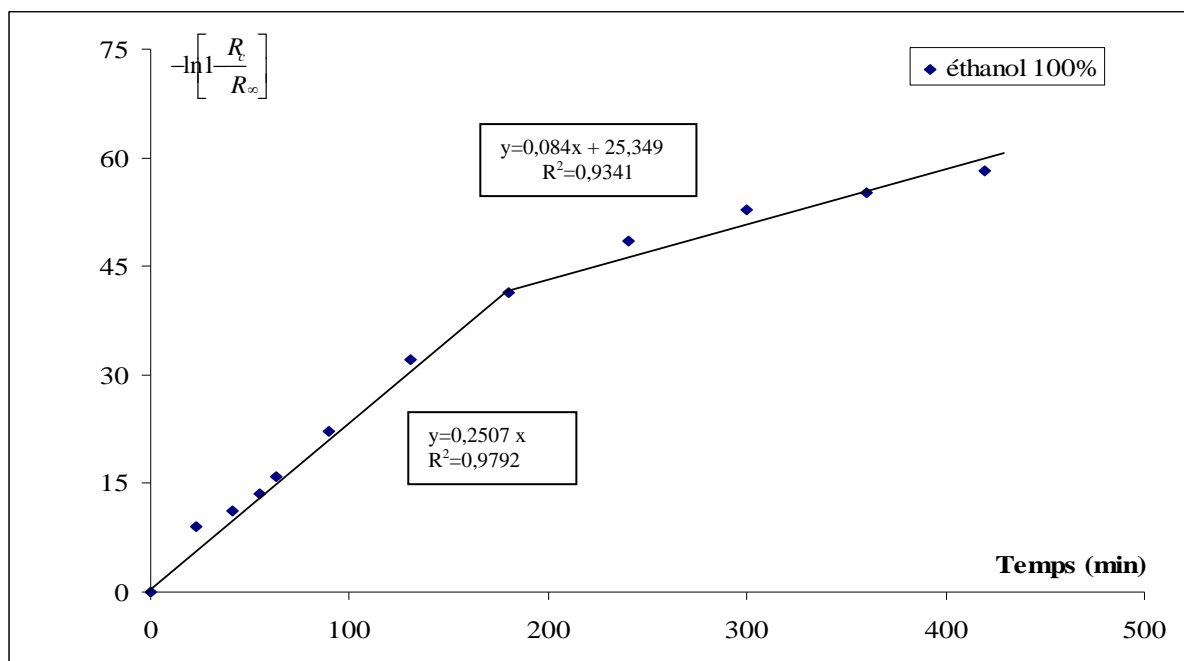


Figure 21 : Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps pour l'extraction par Soxhlet.

La courbe obtenue présente deux droites de pentes

$$K_{E1} = 0,2507 \text{ min}^{-1} \quad \text{et} \quad K_{E2} = 0,084 \text{ min}^{-1}$$

La cinétique d'extraction est bien d'ordre 1. Elle se fait en deux étapes, la première étant plus rapide que la seconde. En effet, la valeur de la constante de vitesse de cette étape est nettement supérieure à celle de la seconde étape. Elle correspondrait à l'extraction de la concrète située à la surface de la plante.

II.2 Etude de l'influence de la nature du solvant

II.2.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète

Les essais ont été réalisés avec les mêmes solvants utilisés pour l'extraction en batch à savoir de l'éthanol pur et les mélanges (éthanol 80% - eau 20%) et (éthanol 60% - eau 40%). Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 15 et représentés à la figure 22.

Nous remarquons que le meilleur rendement est obtenu pour le mélange (éthanol 60%- eau 40%). Les rendements obtenus pour les deux autres solvants sont du même ordre de grandeur. La proportion en eau plus importante (40%) pourrait expliquer l'augmentation du rendement par l'extraction de composés hydrosolubles en plus grandes quantités. L'analyse des extraits doit être entreprise pour confirmer cette hypothèse.

Tableau 15 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du temps pour différents solvants.

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g V= 500ml		
	Ethanol 60%/Eau 40%	Ethanol 80%/Eau 20%	Ethanol 100%
0	0	0	0
15	18,18	5,35	9,11
30	20,05	9,13	11,27
45	24,33	10,42	14,58
60	28,20	12,71	15,96
90	33,75	20,85	22,22
120	40,10	32,88	32,09
180	45,44	41,70	41,43
240	58,01	48,92	48,39
300	63,43	51,59	52,83
360	65,49	54,53	55,07
420	65.76	57.45	58,28

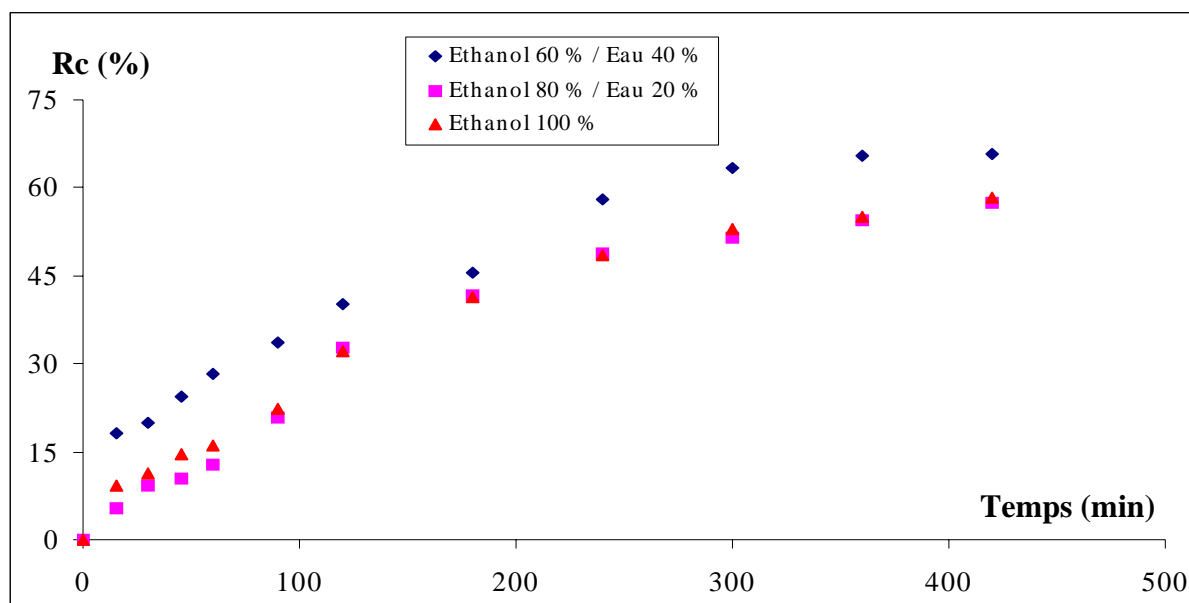


Figure 22 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.

II.1.2 Influence de la nature du solvant sur la cinétique d'extraction

Pour étudier la cinétique d'extraction par Soxhlet de la concrète d'origan, nous avons procédé de la même manière que pour l'extraction en batch.

La représentation graphique de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps a révélé la présence de deux droites. La cinétique d'extraction est donc d'ordre 1. Le tableau 16 résume les constantes de vitesse pour les différents solvants utilisés.

Tableau 16 : Paramètres de la cinétique d'extraction par Soxhlet de la concrète d'origan.

	Première période		Seconde période		
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2	
Ethanol 60%/Eau 40%		0,4695	0,9512	0,1106	0,9267
Ethanol 80%/Eau 20%		0,2525	0,9691	0,0788	0,9325
Ethanol 100%		0,2354	0,9612	0,0840	0,9341

D'après les résultats obtenus dans le tableau 16, nous constatons que les constantes de vitesse augmentent avec l'augmentation du pourcentage en eau dans le mélange éthanol - eau. En effet, les valeurs obtenues pour le mélange (éthanol 60% / eau 40%) sont supérieures à celles obtenues pour les deux autres solvants (80% éthanol / eau 20%) et éthanol pur, qui sont de même ordre de grandeur.

II.3 Etude de l'influence du nombre de siphonages

II.3.1 Influence du nombre de siphonages sur le rendement en concrète

Nous avons essayé de vérifier si le nombre de siphonages avait une influence sur le rendement en concrète. Pour cela, nous avons réalisé des essais d'extraction en récupérant la concrète à des intervalles de siphonages déterminés. Le solvant utilisé est l'éthanol pur et le temps a été fixé à 7heures.

Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 17 et représentés par la figure 23.

A partir de ces résultats nous remarquons que le passage d'un siphonage à 7 fait accroître le rendement d'extraction d'environ 120%. Au delà, le rendement en concrète n'est pas très influencé par l'augmentation du nombre de siphonages, ce qui s'expliquerait par l'épuisement de la matière végétale.

Cela met en évidence l'effet positif de l'augmentation du nombre de siphonage sur le taux d'extraction pendant les deux premières heures.

Tableau 17 : Variation du rendement cumulé en concrète en fonction du nombre de siphonages.

H = 6,48% m = 20g V = 500ml								
Temps cumulé (min)	0	25	60	120	195	315	510	730
Nombre du Siphonages	0	1	3	7	13	21	33	49
Rendement cumulé (%)	0	7,4764	13,6746	16,4800	17,7791	19,0767	21,6734	23,1816

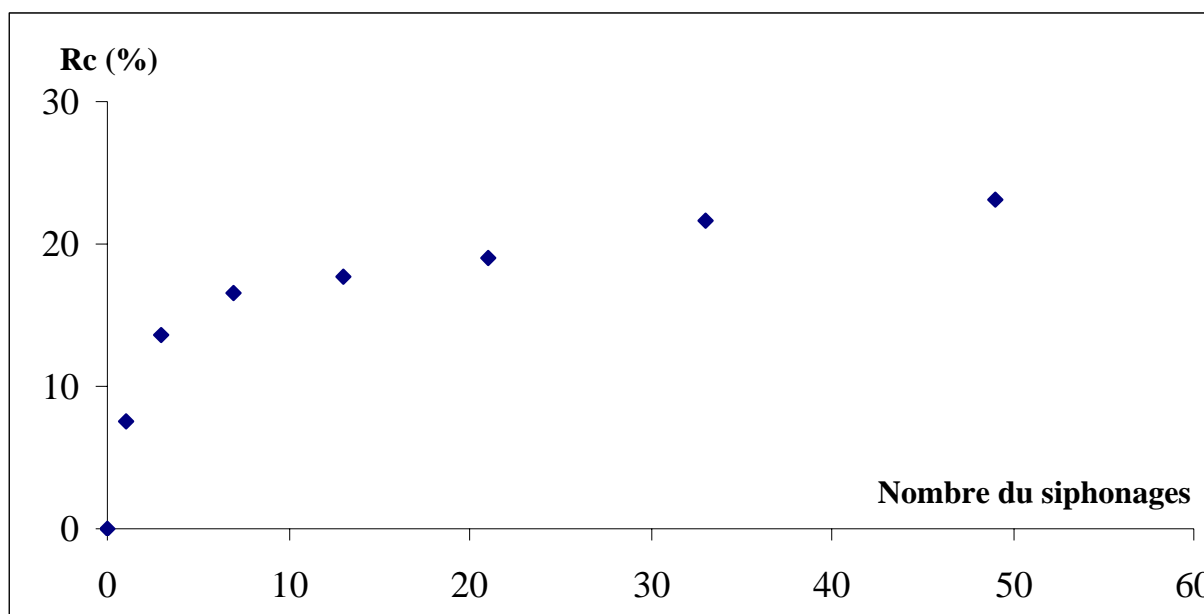


Figure 23 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps en fonction du nombre de siphonages.

II.3.2 Influence du nombre de siphonages sur la cinétique de l'extraction

L'étude de l'influence du nombre de siphonages sur la cinétique d'extraction a donné les résultats regroupés dans le tableau 18.

Tableau 18 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan.

Première période		Seconde période	
K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2
0,2246	0,9777	0,013	0,9254

Nous remarquons que la constante de vitesse de la première étape est nettement plus importante que celle de la seconde étape. Ce qui confirme le résultat précédent à savoir que l'influence du nombre de siphonages est plus important au début d'extraction.

III. EXTRACTION PAR CIRCULATION CONTINUE DE SOLVANT

L'extraction par circulation continue de solvant est le troisième procédé abordé dans ce travail. Trois paramètres ont été étudiés : le temps d'extraction, le débit et la nature du solvant.

III.1 Etude de l'influence du temps d'extraction

Comme pour les deux précédents procédés, nous avons suivi l'évolution du rendement en concrète et déterminé l'ordre de la cinétique d'extraction. Les résultats obtenus sont représentés à la figure 24.

L'examen de la figure 24 montre que le rendement augmente du début de l'extraction jusqu'à 7 heures. Son évolution est plus rapide durant les quatre vingt dix premières minutes.

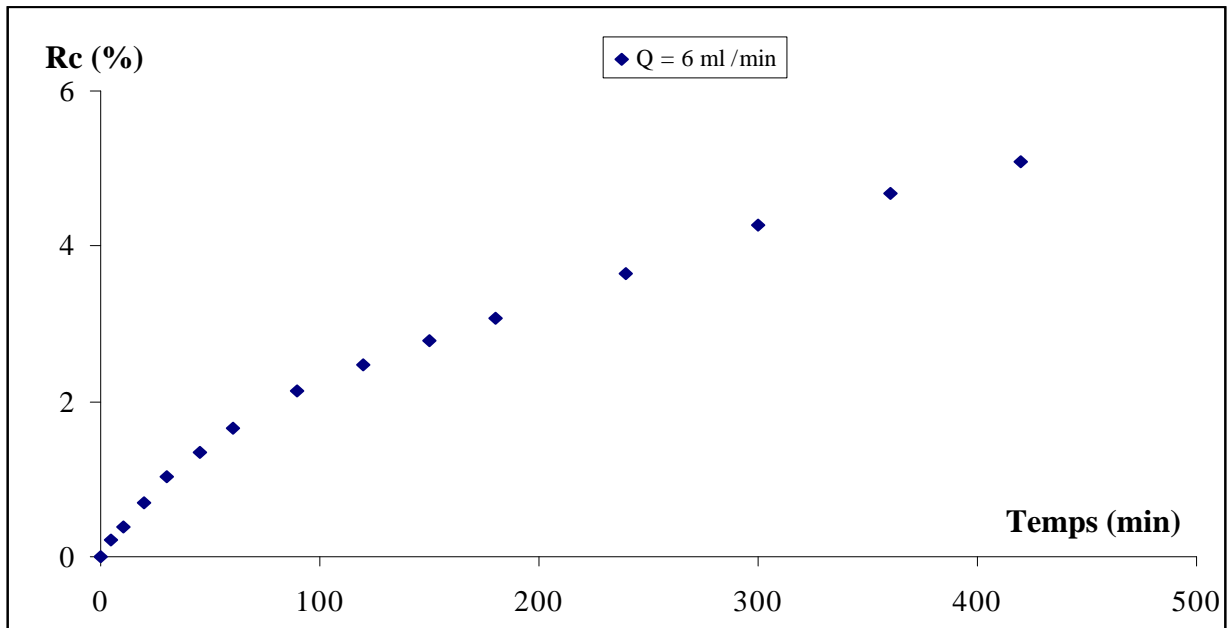


Figure 24 : Evolution du rendement en concrète en fonction du temps.

La représentation graphique de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps (figure 25), a mis en évidence deux droites de pentes :

$$K_{E1} = 0,0297 \text{ min}^{-1} \quad \text{et} \quad K_{E2} = 0,009 \text{ min}^{-1}$$

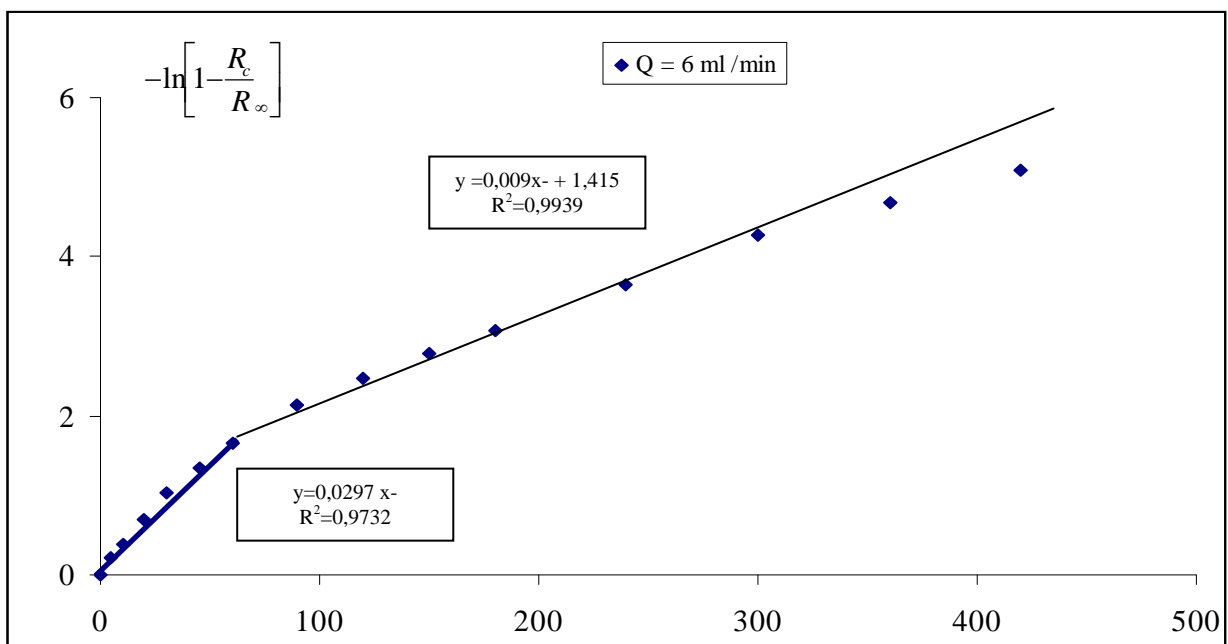


Figure 25: Evolution de $-\ln\left[1 - \frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps.

Comme pour les deux autres procédés étudiés, la cinétique d'extraction est d'ordre 1 avec deux étapes, une première rapide et une seconde beaucoup plus lente.

III.2 Etude de l'influence du débit de solvant

III.2.1 Influence du débit de solvant sur le rendement en concrète

Afin d'évaluer l'influence du débit de solvant sur le rendement d'extraction, les essais ont été menés pour trois débits (2-4-6) ml/min avec de l'éthanol pur. Les résultats sont regroupés dans le tableau 19. L'évolution du rendement d'extraction en fonction du temps est illustrée par la figure 26.

Dans la gamme de débit étudiée (2-6) ml/min, l'augmentation du débit de solvant a un effet positif sur le rendement d'extraction pendant la période de lavage, par contre elle n'a aucune influence sur l'étape diffusionnelle où les courbes sont pratiquement confondues pour les débits 4 et 6 ml/min. Cette augmentation peut être expliquée par le fait que pour un faible débit il n'y a pas assez de solvant pour avoir un bon contact avec la matière végétale donc une partie de la concrète n'est pas extraite. Par contre, lorsque le débit croit la quantité de solvant augmente, le contact matière végétale-solvant est amélioré et par conséquent la quantité de la concrète augmente [71].

Tableau 19 : Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différents débits de solvant.

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g V=500 ml		
	Q = 2 ml/min	Q = 4 ml/min	Q = 6 ml/min
0	0	0	0
5	0,06	0,05	0,20
10	0,12	0,10	0,39
20	0,24	0,22	0,69
30	0,36	0,35	1,04
45	0,58	0,68	1,35
60	0,78	1,03	1,65
90	1,14	1,86	2,15
120	1,54	2,43	2,46
150	1,92	2,87	2,78
180	2,23	3,28	3,08
240	2,61	3,78	3,64
300	2,94	4,47	4,26
360	3,27	4,70	4,69
420	3,68	4,77	5,08

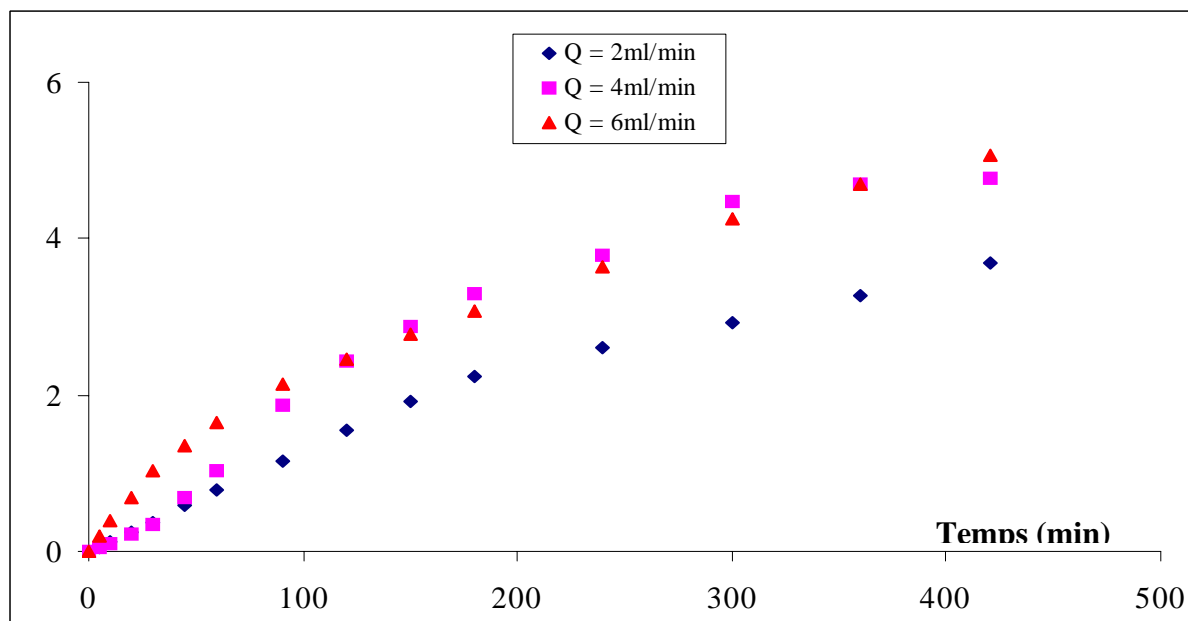


Figure 26 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents débits de Solvant.

III.2.2 Influence du débit de solvant sur la cinétique d'extraction

Pour déterminer l'influence du débit de solvant sur la cinétique d'extraction, nous avons représenté les variations de $-\ln\left[1-\frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps.

L'évolution de la vitesse d'extraction suit toujours une loi cinétique du premier ordre, les constantes de vitesse sont déterminées par la pente de ces deux droites. Les paramètres de la régression linéaire sont regroupés dans le tableau 20.

Tableau 20 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'organ pour différents débits

	Première période		Seconde période		
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2	
Q = 2 ml/min		0,0129	0,9998	0,0062	0,9941
Q = 4 ml/min		0,0210	0,9854	0,0081	0,9363
Q = 6 ml/min		0,0239	0,9738	0,0090	0,9939

Dans ce cas également, les valeurs des constantes de vitesse de la première étape sont supérieures à celle de la seconde étape. L'influence du débit est plus prononcée quand le débit passe de 2 à 4 ml/min.

III.3 Etude de l'influence de la nature du solvant

III.3.1 Influence de la nature du solvant sur le rendement en concrète

Dans le but d'évaluer l'influence de la nature du solvant, les essais ont été menés selon le protocole expérimental précédemment d'écrit, en utilisant les mêmes proportions de solvant citées précédemment pour l'extraction par Soxhlet et en batch pour un débit de 2 ml/min.

Les résultats résumés dans le tableau 21 et présentés par la figure 27 montrent que le meilleur rendement est obtenu pour le mélange (60% éthanol / 40% eau).

Tableau 21: Variation du rendement en concrète en fonction du temps pour différents solvants.

Temps (min)	Rendement (%) H= 6,48% m=20g Q= 2ml/min V= 500ml		
	Ethanol 60%/Eau 40%	Ethanol 80%/Eau 20%	Ethanol 100%
0	0	0	0
5	0,48	0,06	0,06
10	0,97	0,11	0,12
20	1,74	0,20	0,24
30	2,38	0,40	0,36
45	3,06	0,76	0,58
60	3,66	1,11	0,78
90	4,49	1,54	1,14
120	5,05	1,98	1,54
150	5,65	2,43	1,92
180	6,26	3,11	2,23
240	7,86	3,89	2,61
300	9,86	5,11	2,94
360	11,74	6,73	3,27
420	13,56	8,41	3,68

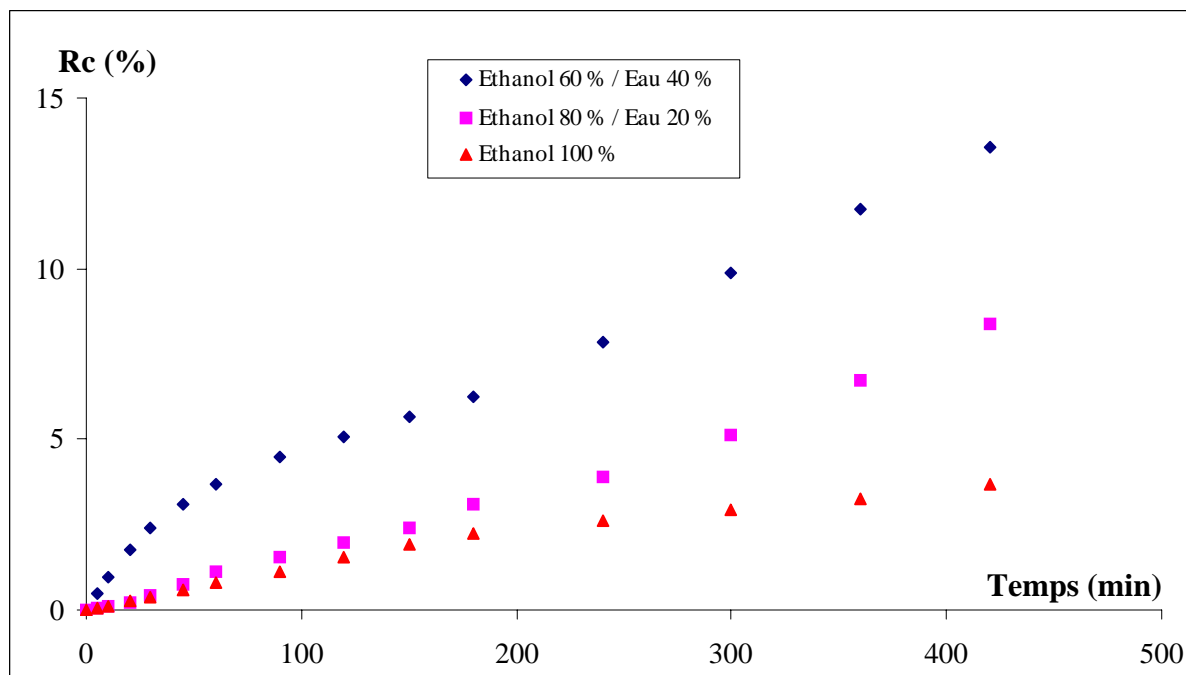


Figure 27 : Evolution du rendement d'extraction au cours du temps pour différents solvants.

L'examen de la figure 27, montre que pour ce solvant le rendement en concrète augmente dès le début de processus. Par contre, pour les autres solvants (éthanol 80%-eau 20% et éthanol 100%) les courbes sont pratiquement confondues jusqu'à deux heures. Au-delà, le solvant (80% éthanol- 20% eau) donne de meilleurs rendements

Cette augmentation du rendement s'expliquerait par l'extraction de composés hydrosolubles. En effet, nous remarquons que l'augmentation de la proportion d'eau dans le solvant entraîne une augmentation du rendement en concrète. Toutefois, l'analyse des extraits est indispensable pour confirmer cela.

III.3.2 Influence de la nature du solvant sur la cinétique d'extraction

La représentation des variations de $-\ln\left[1-\frac{R_c}{R_\infty}\right]$ en fonction du temps nous a permis de déterminer les constantes de vitesse pour les trois solvants utilisés. Les résultats sont donnés dans le tableau 22.

Tableau 22 : Paramètres de la cinétique d'extraction de la concrète d'origan pour différents solvants.

	Première période		Seconde période		
	K_{E1}	R^2	K_{E2}	R^2	
Ethanol 60%/Eau 40%		0.0608	0.9724	0.0275	0.9926
Ethanol 80%/Eau 20%		0.016	0.9934	0.0216	0.9839
Ethanol 100%		0.0129	0.9998	0.0062	0.9941

Comme pour l'extraction par Soxhlet, nous remarquons que l'augmentation de la proportion en eau dans le solvant d'extraction influe positivement sur la cinétique d'extraction.

IV. ETUDE COMPARATIVE DES TROIS PROCÉDES

Ayant étudié trois procédés d'extraction par solvant volatil à savoir : l'extraction en charge dispersée (batch), l'extraction par Soxhlet et l'extraction par circulation continue, il est intéressant de comparer les résultats obtenus. Pour cela nous avons pu mettre en évidence les observations suivantes :

- Le temps de traitement est un paramètre très important, l'étude de l'influence de celui-ci sur le rendement en concrète a montré que la durée d'extraction fixée à 7 heures n'est pas suffisante pour extraire la totalité de la concrète.
- D'un point de vue quantitatif, le procédé Soxhlet donne de meilleurs rendements : 58,3% contre 13,8% pour l'extraction en batch et 5,08% pour l'extraction par circulation continue du solvant. Il est le procédé le mieux approprié pour l'extraction de la concrète d'origan dans le domaine expérimental choisi.
- l'étude de la cinétique d'extraction pour les trois procédés a montré qu'elle se faisait en deux étapes. Une première rapide correspondant à l'extraction par simple lavage de la concrète située à la surface de la plante ; suivi d'une seconde étape plus lente où c'est la concrète située dans des sites endogènes qui est récupérée. Par ailleurs, la cinétique est d'ordre 1 pour les trois procédés.

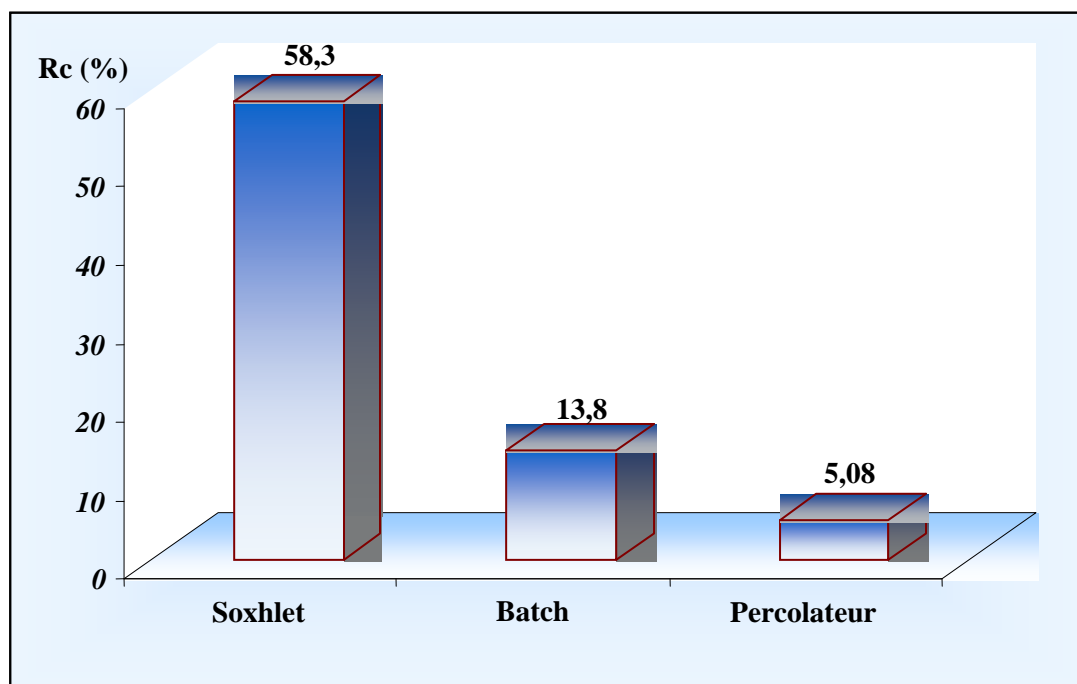


Figure 28 : Comparaison entre les trois procédés.

V. APPLICATION DE LA CONCRÈTE D'ORIGAN : ACTIVITE INSECTICIDE

Comme application de la concrète d'origan, nous nous sommes intéressés à ses propriétés insecticides. Notre étude a été réalisée pour contribuer à la protection des denrées stockées en utilisant des concrète à caractère insecticide sur *Callosobruchus maculatus* (F.). La concrète d'*Origanum glandulosum* est extraite par le procédé d'extraction par Soxhlet. Nous avons évalué la toxicité par traitement adulticide et ovocide de l'extrait sur *Callosobruchus maculatus* (F), selon le mode de pénétration combiné (contact et inhalation).

V.1.1 Test d'efficacité par traitement adulticide

Les expériences effectuées pour évaluer l'effet insecticide d'origan sur les adultes de *Callosobruchus maculatus* (F.) ont conduit aux résultats du tableau 23 :

Tableau 23 : Résultats de la mortalité par effet adulticide pour les différents extraits.

Traitements		Mortalité				Mortalité moyenne	Mortalité moyenne (%)	Mortalité corrigée (%)
		R ₁	R ₂	R ₃	R ₄			
I	Extrait Ethanol 100%	9	10	8	12	9,75	32,5	2,41
	Témoin Ethanol 100%	7	10	10	10	9,25	30,83	
II	Extrait Ethanol 80% Eau 20%	11	13	8	15	11.75	39.16	8,74
	Témoin Ethanol 80% Eau 20%	8	12	8	12	10	33.33	
III	Extrait Ethanol 60% Eau 40%	8	11	8	13	10	33.33	8,04
	Témoin Ethanol 60% Eau 40%	3	10	9	11	8.25	27.5	

Ces résultats mettent en évidence une faible mortalité observée pour *Callosobruchus maculatus* (F.) traité par les différents extraits.

Le plus faible pourcentage de mortalité est obtenu pour l'extrait éthanolique à 100%. Les deux autres extraits donnent des résultats du même ordre de grandeur. Il ressort de cette étude que les extraits testés ne sont pas toxiques par effet adulticide vis-à-vis de *Callosobruchus maculatus* (F.).

La figure 29 représente le pourcentage de mortalité corrigée pour chaque extrait.

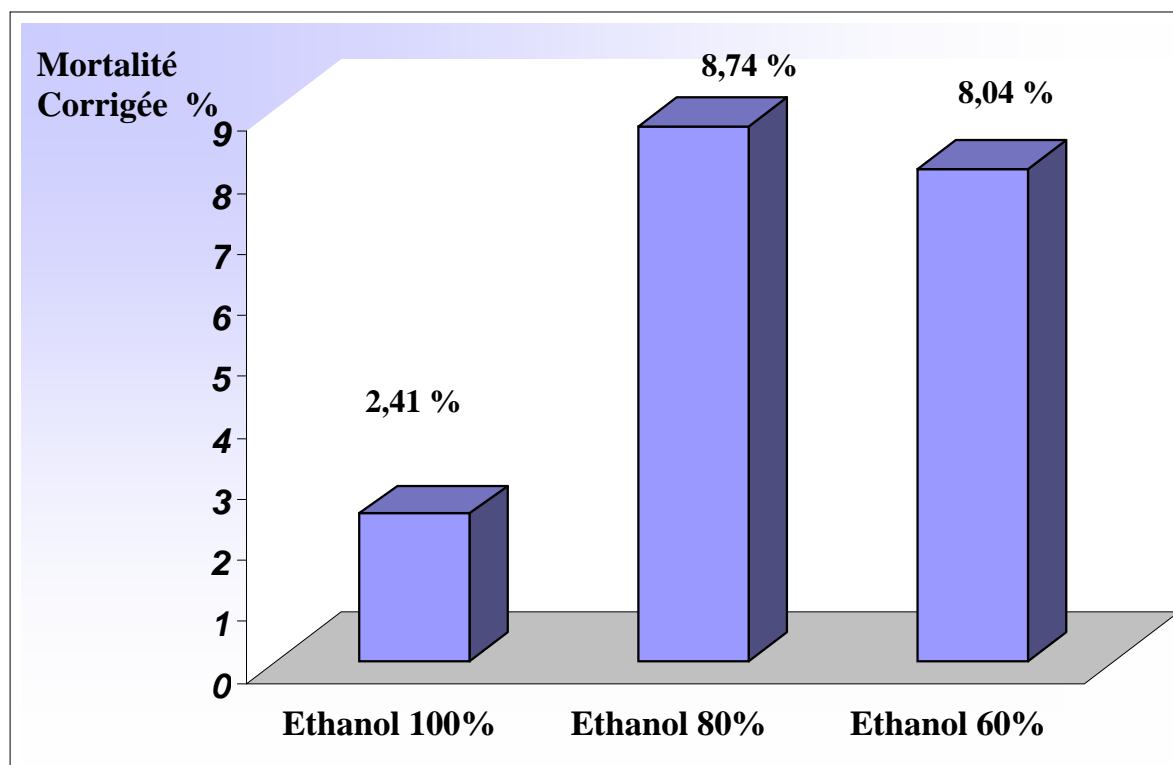


Figure 29: Pourcentage de mortalité corrigée par effet adulticide pour chaque extrait.

V.1.2 Test d'efficacité par traitement ovicide

Les expériences effectuées pour évaluer l'effet insecticide d'*Origanum glandulosum* sur les œufs de *Callosobruchus maculatus* (F), ont conduit aux résultats regroupés dans le tableau 24.

Tableau 24 : Résultats de l'effet ovocide pour les différents extraits.

Traitements		Œufs éclos								Moyenne		% Moyen éclosion
		R ₁		R ₂		R ₃		R ₄				
		OT	OE	OT	OE	OT	OE	OT	OE	OT	OE	
I	Extrait Ethanol 100%	98	03	118	2	67	2	76	2	89,5	2,25	2,5
	Témoin Ethanol 100%	34	15	120	86	91	30	276	130	130,25	65,75	50,09
II	Extrait Ethanol 80% Eau 20%	100	7	119	9	145	8	211	17	143,75	10,25	7,13
	Témoin Ethanol 80% Eau 20%	140	68	86	25	159	88	78	52	115,75	58,25	50,32
III	Extrait Ethanol 60% Eau 40%	138	17	80	15	43	5	210	13	117,75	12,5	10.16
	Témoin Ethanol 60% Eau 40%	115	75	62	45	32	15	43	8	63	35,75	56,74

OT : œufs traités

OE : œufs éclos

Nous remarquons que tous les extraits ont une activité insecticide sur les œufs de bruche avec des degrés différents. La figure 30 montre que l'extrait éthanolique à 100% donne le pourcentage d'éclosion le plus faible, de l'ordre de 2%, donc il s'est avéré le plus efficace sur les œufs de l'insecte.

Les deux autres extraits donnent des pourcentages d'éclosion plus importants. Nous remarquons que le pourcentage d'éclosion diminue quand la proportion d'éthanol augmente dans le solvant utilisé. Il est donc possible que l'activité insecticide des extraits testés soit due à des composés solubles dans l'éthanol. Des tests supplémentaires doivent être entrepris pour vérifier ces suppositions.

Des résultats similaires ont été obtenus par l'extrait éthanolique de *Peganum harmala* qui s'est avéré le plus efficace sur les œufs du ravageur par rapport à d'autres types de solvants (hexane, eau) [72].

Nos résultats ont montré que vis-à-vis de *Callosobruchus maculatus* (F), les différents extraits éthanoliques ne manifestent pas d'une bonne toxicité par traitement adulticide. Par contre, ils se sont avérés plus toxiques sur les œufs à des degrés différents. Nous pouvons conclure que la concrète récupérée par l'extraction par l'éthanol à 100% peut être utilisée en lieu de stockage de légumineuses (pois chiche) de façon à empêcher l'éclosion des œufs.

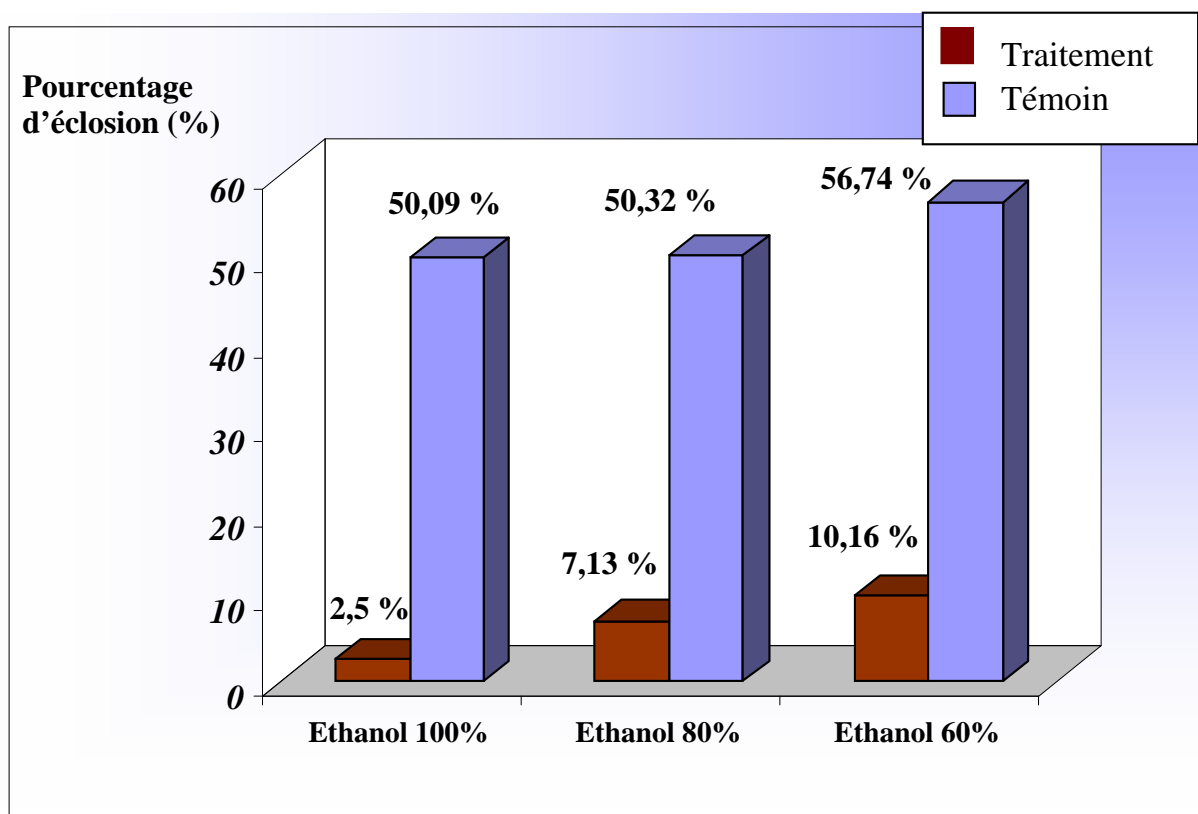


Figure 30: Pourcentage d'éclosion moyen pour chaque extrait.

Conclusion

Générale

Le travail que nous avons entrepris a porté sur deux points : le premier point a été consacré à l'étude de trois procédés d'extraction par solvant volatil de la concrète d'origan à savoir : l'extraction en charge dispersée (batch), l'extraction par Soxhlet et l'extraction par circulation continue de solvant. Le second point s'est intéressé à l'évaluation des propriétés insecticides de la concrète d'origan.

A l'issue de cette étude nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- l'étude paramétrique réalisée pour l'extraction en charge dispersée, par Soxhlet et par circulation continue a montré que :

- Malgré la durée d'extraction fixée à 7 heures pour les trois procédés d'extraction, on remarque que la courbe n'a pas encore atteint son pallier, ce qui se traduit par le fait que la totalité de la concrète n'est pas extraite.
- L'augmentation de la vitesse d'agitation a un effet favorable sur le rendement d'extraction. Ceci pourrait être expliqué par le fait que l'agitation du milieu permet un meilleur contact entre les phases liquide et solide.
- L'augmentation du rapport solvant/ masse de matière végétale a un effet négatif sur le rendement en concrète.
- L'augmentation de la température d'extraction a un effet favorable sur le rendement en concrète ce qui pourrait être dû à l'augmentation de la solubilité du soluté dans le solvant et l'augmentation des propriétés diffusionnelles du soluté et du solvant.
- Les combinaisons de solvant (éthanol / eau) à différentes proportions pour les trois procédés d'extraction nous a permis d'obtenir un meilleur rendement pour une proportion des solvants : 60 % éthanol – 40 % eau. L'augmentation de la proportion d'eau augmente le rendement d'extraction ce qui laisse croire qu'on a extrait des composés hydrosolubles. L'analyse des extraits est indispensable pour confirmer ces suppositions.

- La comparaison des trois dispositifs d'extraction à savoir le batch, le Soxhlet et le percolateur, nous a permis d'obtenir un meilleur rendement pour le procédé d'extraction par Soxhlet.
- L'étude des cinétiques d'extraction pour les trois procédés nous a permis de constater que :
- La cinétique d'extraction a révélé la présence de deux droites montrant que la vitesse d'extraction suit une loi du premier ordre. La première période correspond à l'extraction de la concrète située dans les sites superficiels et la deuxième période correspond à la récupération de la concrète emmagasinée dans des sites endogènes.
 - Les constantes de vitesse de la première période sont plus importantes que celles de la deuxième période. Par ailleurs, l'étude de l'influence des différents paramètres étudiés sur la cinétique d'extraction a montré que leur influence est plus importante sur la première étape du processus d'extraction que sur la seconde.
- L'étude de l'action insecticide de la concrète d'origan sur *Callosobruchus macullatus* (F.) , nous a permis de remarquer qu'elle peut constituer une source intéressante à exploiter pour diminuer l'utilisation massive des insecticides de synthèse et établir de nouvelles méthodes de lutte non polluantes pour l'homme et l'environnement.

Les résultats obtenus révèlent une faible mortalité par effet adulticide ce qui montre que ces extraits ne sont pas toxiques vis-à-vis des insectes adultes de *Callosobruchus macullatus* (F.). Par contre, nous remarquons que les différents extraits manifestent une bonne toxicité par traitement ovocide.

Ce travail mérite d'être poursuivi et approfondi, pour cela nous proposons :

- D'analyser les extraits obtenus par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse pour une éventuelle étude qualitative afin de confirmer les hypothèses de cette étude.
- D'approfondir l'étude des propriétés insecticides de la concrète d'origan et de ses constituants majoritaires.
- D'étudier l'activité antioxydante et antibactérienne des extraits d'origan et de leurs constituants majoritaires.

Références

Bibliographiques

Références Bibliographiques

- [1] **Fouché. J.G, Marquet. A, Hambuchers. A**
« Les plantes médicinales, de la plante au médicament »
Observatoire des plantes. Exposition temporaire.Sart – Tilman, B77.B-4000 Liège (2000).
- [2] **Aous. W.**
« Extraction des huiles essentielles du *Laurus nobilis* L. et d'*Origanum glondulosum* Desf et évaluation de leur bioactivité sur *Rhyzoperta dominica* (F.)(*Coleoptera Bostrychiadae*) ». Mémoire de Magister I.N.A. Alger (2006).
- [3] **Khalfi. O, Benyoussef. E-H, Yahiaoui. N.**
« Extraction, analysis and insecticidal of spearmint essential oil from Algeria against *Rhyzoperta dominica* (F.) ». Journal of essential oil Bearing plant, 9- 1, (2006).
- [4] **Santa. S, Quezel. P.**
« Nouvelles flores d'Algérie et des régions désertiques méridionales ». Tome II. Ed. C.N.R.S. Paris (1963).
- [5] **Vokou. D, Kokkini. S, bessiere. J.M.**
« Geographic variation of Greek Oregano (*origanum vulgare* spp. *Hirtum*) essential oils Biochem». Syst, Ecol., 21, 287-295 (1993).
- [6] **Letswaart. J.H.**
« A taxonomic revision of the genus *Origanum* (*labiatae*) ». Thèse de Doctorat Leiden Botanical . Series 4. Leiden University press. The Hague (1980).
- [7] **Hamamouch. J.M**
« Plantes alimentaires, aromatiques, condimentaires médicinales et toxiques au Maroc ». Université Mohamed V, Faculté de Médecine et Pharmacie, Unité de Recherche : Plante Médicinales et Aromatiques. Rabat CIHEAM. Maroc (2004).
- [8] **Fourment. M, Roques. M.**
« Répertoire des plantes médicinales et aromatiques d'Algérie ». Édition le patronage du comité de contrôle de la production, de la répartition et de la vente des plantes médicinales et aromatiques d'Algérie. Bulletin N° 61. Alger (1942).
- [9] **Marzi. V, Morone Fortunato. I, Circella. G, Picci. V, Melegari. M.**
« Oregano (*Origanum vulgare* spp.*hirtum*) essential oils» . Biochem Syst. Ecol., .21. Agricultura et Ricerca, 132, 71-89 (1992).
- [10] **AFNOR (Association Française de Normalisation)**
Recueil des normes Françaises, huiles essentielles, 5émé Edition. T2, p4 (1996).
- [11] **Willem. J.P.**
« Les huiles essentielles», médecine d'avenir. Ed. Dauphin. Paris (2004).

- [12] **Naves . Y.R.**
« Technologie et chimie des parfums naturels ».
Ed .Masson, Paris. (1974) .
- [13] **Allinger. N.L , Carre, Johnson , Dejevogh, Lebel , Sievens .**
« Chimie organique : Application ».
Vol 3 ,Ed Mc Graw. Hill. Paris (1987).
- [14] **Grandery. L.**
« Dictionnaire de chimie ».
Ed. Dunod. Paris (1974).
- [15] **Gattefosse. I.N.**
« Parfum, cosmétiques et savons ».
Ed. Paris, N°4,
- [16] **Gautier. J.A , Kiger. J.G, Kiger .J.L, Pellerin. F.**
« Les colorants naturels et de synthèse à l'usage pharmaceutique et alimentaire ».
Mise au point de chimie analytique 13^{ème} série. Technique et documentation. Paris (1992).
- [17] **Daferera. D.J, Ziogas. B.N, Polissiou. M.G.**
« GC-MS analysis of essential oils from some Greek aromatic plants and their fungioxicity on penicillium digitatum».
Journal of Agricultural and Food chemistry 48, 2576-2581, (2000).
- [18] **Lara. H.**
«Optimisation des conditions de séchage pour la maitrise de la qualité de l'*Origanum syriacum*».
Projet de Fin d'Etude, Grignon Institut National Agronomique, INA-PG. Paris (2002).
- [19] **Russo. M, Galletti. G.C, Bocchini. P, Carnacini.**
«A. essential oil chemical composition of wild populations of Italian oregano spice (*Origanum vulgare* ssp. *Hirtum* (Link) Ietswaart) ». A preliminary evaluation of their use in chemotaxonomy by cluster analysis: 1. Inflorescences.
Journal of Agricultural and Food Chemistry, 46, 3741-3746, (1998).
- [20] **Fisher. N, Nitz. S, Drawert. F.**
« Original flavour compounds and the essential oil composition of marjoram (*Marjoram hortensis* Moench) ».
F flavour Fragrance Journal, 2, 55-61, (1987).
- [21] **Kokkini. S, Karousou. R, Dardioti. A, Krigas. N, Lanaras. T.**
« Aunumn essential oils of greek oregano ».
Phytochmistry ,44 (5), 883-886 (1993).
- [22] **Ruberto. G, Biondi. D, Cianci. P, Geraci. C.**
« Antimicrobial activity and chemical composition of essential oils from Sicilian aromatic plants».
Flavour and Flagrance Journal, 17, 251-254, (1993).

[23] **Marino. M, Bersani. C, Comi. G.**

« Impedance measurements to study the antimicrobial activity of essential oils from *Lamiacea and compositatae* ».

International journal of Food Microbiology 67, 187-195, (2001).

[24] **Lawrence. B.M , Reynolds. R.J.**

« The botanical and chemical aspects of oregano »

Perfumer&Flavorist, 9, 41-51, (1984).

[25] **Hohmann.B.**

« Zwei weniger bekannte gew uerzkraeur *origanum virens* and *coridothymus capitatus*.Z.Lebensum».

Untersund Forschung. 138? 4, 212-216, (1986).

[26] **Benjlali. B, Richard. H.M.J, Bartaux. O .**

« Study of essentials oils of two species of Moroccan oregano *Origanum Compactum* and *Origanum elangatum* ».

Lebensmittel wissens chaft and technologie, 19,1, 22-26 (1986).

[27] **Hoppe. H.A.**

« Drogenkunde 7 de Gruyter et Co ».

Hamburg, 622-624 (1958).

[28] **Leybros. J, Frémeaux. P.**

« Extraction solide-liquide ».

Technique de l'Ingénieur. Aspect théorique. J2780-2782, 1-21. Paris (1990).

[29] **Lucchesi. E.M.**

« Extraction sans solvant assistée par micro ondes conception et application à l'extraction des huiles essentielles ».

Thèse de Doctorat en Science, Université de la Réunion, (2005).

[30] **Richard. H, Multon. J.L.**

«Les aromes alimentaires».

Edition Lavoisier, Tec & Doc (science et technique agroalimentaires). Paris (1992).

[31] **Guenther. E.**

« The essential oil »

3^{ème} Edition, Robert Krieger publishing CO; Hun Tengton. New-York (1972).

[32] **Bernard. T, Perineau. F.**

« Parfum, cosmétique et arôme ».

Edition. Paris, 48, (1984).

[33] **Peyron. L.**

« Techniques classiques actuelles de fabrication des matières naturelles aromatiques ».

Edition Lavoisier, Tec & Doc, 220-231. Paris (1982).

[34] **Renneau. F, Bravo. R, Delmas. M, Gaser. A.**

« Extraction des huiles essentielles ».

Information Chimie, 298, (1982).

[35] Allaf. K, Louka, N, Bouvier. J.M, Parent. F, Forget. M.

« Définition d'un nouveau procédé de traitements thermomécanique par détente instantanée contrôlée TTMDIC».

Brevet, 92 04940 du 14 Avril, (1992).

[36] Meyer & Warnod .

Perfumer & Flavorist. 9, 93, (1984).

[37] Caree. P.

« Précis de technologie et chimie industriel».

T III, Ed, J. Bailler et fils (1953).

[38] Ganzler. K, Salgo. A, Valko. K.

« A novel sample preparation method for chromatography».

Journal of Chromatography A, 371, 299-306, (1986).

[39] Pare. R.J.

« Microwave assisted process for extraction and apparatus therefore ».

Brevet canadien, CA 2055390, (1992).

[40] Mengal. P, Mompon. B

« Procédé et installation d'extraction sans solvant de produits naturels par micro ondes ».

Brevet international, W094/26853, (1994).

[41] Priego. Capot. F, Luque de Castro. M.D.

« Focused microwave-assisted Soxhlet extraction a convincing alternative for total fat isolation from bakery products».

Analytical chemistry division, Annex C-3, campus of rebanales, University of Cordoba, 14071 Cordoba, Spain (2004).

[42] Siano. F, Ghizzonu. C, Giofriddo. F, Colambo. E.

« Determination of estragole, safrole and eugenol methyl ether in food products».

Food chemistry, 81. 469-475, (2003).

[43] Maignal. L, Pibarot. P, Bonetti. G, Chaintreau. A, Marion. J.P.

« Simultaneous distillation-extraction under static vacuum : isolation of volatile compounds at room temperature».

Journal of chromatography A, 606, 87-94. (1992).

[44] Zarnowski. R, Suzuki. Y.

« Expedient Soxhlet extraction of resorcinolic lipids from wheat grains».

Journal of Food composition and analysis 17, 649-663. (2004).

[45] Durrans. T, Charman. H.

« Les solvants » Londre (1975).

[46] Regbal. R.E.

« Liquid extraction » Mac Graw Hill.

[47] **Weast. R.C.**

« CRC Chund book of chemistry and physics CRC».
Press INC,B bocaraton Florida, 65 TH. 21-82, (1984).

[48] **Glu. R.**

« Les techniques d'extraction par fluide supercritique appliquées à l'industrie aromatique ».
Revue de l'industrie agroalimentaire, CAL/PFIZER, 106, 9. 766-767, Paris (1989).

[49] **Guernet. M, HamOn. M**

« Chimie des solutions » Abrégés de chimie analytique.
Tome 2nd Ed, Masson, Paris (1981).

[50] **Guergiev. E.**

« Technologie de la production des huiles essentielles »
Ed. De l'Institut supérieur de l'industrie alimentaire. PLOVDIV, Bulgarie (1988).

[51] **Sanon. A, Gabra. M, Auger. J, Huignard. J.**

« Analysis of insecticidal activity of methylisothiocyanate on *Callosobruchus maculatus* and its parasitoid *Dinarnus basalis* » .
J. Stored prod. Res.,38 ,129-138, (2002).

[52] **Auger. J, Cadoux. F, Thibout. E**

« Thiosulfates as substitute fumigants for methyl bromide ».
Pestic.Sci., 55, 200-202, (1999).

[53] **Bouchikchi Tazani. Z**

« Bioefficacité de la substance des feuilles de deux variétés de haricot *Phaseolus vulgaris* sur les différents états et stades de développement de la bruche du haricot *Acanthoscelides obtectus*, (Coleoptera, Bruchidae) ».
Magister en Biologie, option : Ecologie animale. Université Aboubekr Belkaid- Tlemcen. (2006).

[54] **Delobel. A, Tran . M.**

« Coléoptères des denrées alimentaires entreposées dans les régions chaudes »
Paris. (1993)

[55] **Balachowsky. A. S**

« Entomologie appliquée à l'agriculteur ».
Ed. Masson et Cie, Tome 1, Vol 1 paris. (1962).

[56] **Warui. M**

« Bruchid infestation of cowpea varieties in the field. Insect science and its Application»
Vol. 5, 283-286 (1948).

[57] **Dharmasena. C. M. D, Subasinghe. S. M. C**

« Resistance of mung bean *vigna radiata spp* ».
Tropical Agricultural, Vol. 142, 1-6 (1986).

[58] **Hoffman. A, Balachowsky A.S, Labeyrie**

« In Entomologie appliqué à l'agriculture»

Ed. Masson et Cie, Paris, T. 1, T.1, 564 (1962).

[59] <http://agspsrv34.agric.wa.gov.au/Ento/pestweb/Images/cowpealrees.jpg> (2008)

[60] **Hoffman. A.**

« Coléoptères Bruchidae et anthribides ».

Ed. Lechevalier. Faune de France, 184. Paris (1945).

[61] **Khalfi. O.**

« Biologie de la reproduction de *Callosobruchus maculatus* (F) (Coleoptera:Bostrychidae). Effet de trois insecticides de synthèse sur la reproduction ».

Thèse de Magister. Option: phytotechnie, INA, El-Harrach, Alger (1983).

[62] **Shaaya. E, Kostjukovski. M, Ellberg. J, Sukprakarn. C.**

«Plant oils as fumigants and contact insecticides for the control of stored-product insects ».

J. Stored Prod. Res. 33, 7–15, (1997).

[63] <http://www.springhalen.dk/snudebiller.JPG> (2008).

[64] **Southgate B.J.**

« Pests of grain legumes »

Ecology and control. Ed. S.R. Singh, H. F. Van Emdem, and T.A. Taylor, Academic press, New York, 454, (1970).

[65] **Ouedraogo. A. P, Sou. S, Sanon. A, Monge. J.P, Huignard. J, Tran. M. D, Credland. P.F.**

« Influence of temperature and humidity on populations of *Callosobruchus maculatus* (Coleoptera : *Bruchidae*) and its parasitoid *Dinarmus basalis* (Hymenoptera: Pteromalidae) in two zones of Burkina Faso».

Bulletin of Entomological Research, Vol. 86, 695-702, (1996).

[66] **Khelil. M. A.**

« Influence de la chaleur utilisée comme moyen de lutte contre la bruche du haricot *Acanthoscelides obtectus* Say (Coleoptera Bruchidae) sur les différents états et stades de développement ».

Projet de Fin d'Etude, INA, Alger (1977).

[67] **Anonyme**

« Les insectes et les acariens des céréales stockées »

Institut technique des céréales et des fourrages . Coed. A.F.N.O.P, I.T.C.F, Paris (1978).

[68] **Krim. S.**

« Extraction de la concrète de romarin par circulation continue de solvant ».

Thèse de Magister, Département de Génie des Procédés USTHB. Alger (2001).

[69] **Spiro. M, Chen. S.S**

« Kinetics of solvent extraction of essential oil from Rosemary Leaves ».

Flavour and Fragrance Journal.9, 187-200, (1994).

[70] Amokrane. F

« Modélisation du transfert de matière lors de l'extraction de l'essence des graines de coriandre par le méthanol ».

Thèse de Magister. Ecole Nationale Polytechnique, Département de Génie Chimique. Alger (2002).

[71] Satterfield. C.N.

« Mass transfert in heterogenous catalysis»

Ed. Krieger, Satterfield CN, New York (1981).

[72] Rahmouni. S, Lahmar. F.

« Extraction et évaluation de l'effet insecticide des essences de *Peganum Harmala* (L.) ».

Projet de Fin d'Etude. Ecole Nationale Polytechnique, Département de Génie Chimique. Alger (2008).