

Modélisation du transfert de matière lors d'une extraction solide - liquide

Mehdi LAOUFI et Salah DOUNIT*

*Laboratoire de Génie des Procédés, Faculté des Sciences Appliquées,
Université Kasdi Merbah Ouargla, Ouargla 30000 (Algérie)*

* Email : dounit.sa@univ-ouargla.dz

RESUME : Cette étude est une étude théorique qui concerne la modélisation du transfert de masse au cours d'une opération d'extraction des huiles essentielles à partir d'un solide d'origine végétale. Il s'agit en l'occurrence des graines de coriandre. La démarche consiste dans une première étape à comprendre les mécanismes de diffusion moléculaires qui peuvent se produire au sein des solides végétaux en se basant sur les nombreux modèles établis dans la bibliographie. Ensuite dans une seconde étape, la démarche consiste à l'établissement d'un modèle permettant de simuler la cinétique d'une extraction solide-liquide par modification et amélioration des hypothèses de base des modèles bibliographiques. Le modèle proposé est une combinaison linéaire de deux termes: le premier représente une diffusion moléculaire à partir de cellules à parois cassées situées près de la surface des grains (prépondérant lorsque le temps de l'extraction est faible) et le second représente une génération selon une réaction de premier ordre simulant la résistance supplémentaire induite par la cassure des cellules à parois intactes situées au cœur des particules (prépondérant lorsque le temps de l'extraction est long). La comparaison des résultats des simulations avec les mesures expérimentales reportées dans la littérature indiquent que ce modèle représente de façon satisfaisant l'évolution de l'opération d'extraction et cela pour une plage de temps assez large.

MOTS CLES : Extraction, système solide-liquide, transfert de matière, diffusion moléculaire, Coriander sativum L, Modélisation

ABSTRACT: In this paper, a theoretical study which deals with modeling of mass transfer phenomenon occurring during essential oil extraction from solids of vegetal origin, namely coriander grains (*Coriander sativum L*) is presented. The objective is twofold: the first one is to understand the mechanisms involved during molecular diffusion through solids of vegetal origin based on many models developed in the literature. The second objective is to propose a model which represents kinetics of extraction by modification of some hypothesis retained in bibliographical models. The proposed model is a combination of two terms: the first one represents molecular diffusion of solute present in open cells located near particle's surface (predominant at low extraction times) and the second one represents generation of solute according to a first order reaction to simulate the additional resistance due to cell's break up (predominant at high extraction times). Comparison between simulations and experimental results taken from bibliographical references has shown a good agreement for large range of extraction times.

KEYWORDS: *Coriander sativum L*, Mass transfer coefficient, modeling, solid-liquid systems, extraction, molecular diffusion.

1. Introduction

L'extraction solide liquide est un processus de transfert d'un ou de plusieurs solutés d'un solide vers un fluide adjacent qui correspond au solvant d'extraction. La mise en œuvre de l'extraction nécessite la résolution de problèmes délicats tels que la modélisation et la détermination de certains paramètres souvent inexistantes dans les banques de données.

Les relations classiques utilisées en génie chimique pour le transfert de matière dans les particules solides ne peuvent pas être appliquées pour la description de la plupart des espèces végétales. Leur géométrie n'est généralement pas uniforme, et leur structure interne est loin d'être homogène. La modélisation nécessite ainsi un certain nombre d'hypothèses simplificatrices qui ne sont en général pas complètement justifiables a priori.

De nombreux modèles ont été proposés [1-4] avec succès afin de décrire la diffusion du soluté de l'intérieur du solide vers la masse fluide. Ces modèles, qui sont basés sur des bilans de matière entre les deux phases, passent par l'intégration des équations différentielles moyennant

certaines hypothèses telles que le fait que la quasi-totalité de la résistance soit localisée dans la phase solide ou encore une géométrie simple et homogène des particules solides. Toutefois, ces hypothèses simplificatrices, difficiles à vérifier et ne reflétant pas souvent fidèlement l'expérience, peuvent conduire à des modèles mathématiques imprécis.

Dans le cadre de cette étude, on procède à la modélisation de l'extraction des essences des graines de coriandre par l'éthanol. Etant donné la forme géométrique de celles-ci, on suppose qu'elles sont sphériques.

2. La coriandre

Cette plante pousse dans toutes les régions tempérées. Elle préfère les sols sains, compacts, qu'ils soient sableux ou argileux, mais aussi des sols calcaires, perméables, frais, bien préparés et ensoleillés. On la trouve aussi dans des terrains acides [5]. La culture est influencée principalement par le site de location, précisément la latitude. Il a été rapporté que dans un froid extrême et une courte saison de végétation, on obtient un bon rendement en huile volatile. La figure 1 représente une image de la plante de coriandre et de sa graine.



Figure 1 : Vue d'ensemble de la plante de coriandre et de sa graine

La graine de coriandre contient de l'eau, des protéines, des fibres, de l'amidon, des sucres, des minéraux, des lipides et de l'huile essentielle. Leurs teneurs en pourcentage varient selon la terre et le climat où la plante a été cultivée. Le tableau 1 regroupe la composition de son huile essentielle.

Tableau 1 : Composition de l'huile essentielle de graine de coriandre d'Allemagne en 1995 [6].

Composé	Teneur (%)	Composés minoritaires (<2%)
Linalol	67,7	β-pinène, Camphène, Myrcène, Limoène, p-thymol, Dipentène, α-terpène, Bornéol
α-pinène	10,5	
γ-terpène	9,0	
γ-acétate de géranyle	4,0	
Camphre	3,0	
Géranol	1,9	

3. Extraction des huiles essentielles

L'extraction solide liquide est une opération d'échange ou de transfert d'un ou de plusieurs solutés d'un solide vers un fluide adjacent qui correspond au solvant d'extraction. Ce transfert exige un certain temps pour être complet et il est essentiel, pour toute conception ou dimensionnement d'appareil d'extraction, de déterminer la vitesse globale du phénomène. Cette vitesse est d'autant plus grande que les différences de concentration en soluté des deux phases en contact sont grandes, et que la surface d'échange entre les deux phases est grande. L'agitation du milieu a pour effet d'augmenter la surface de contact entre les phases et de favoriser la diffusion du soluté au sein de chaque phase.

Mise en évidence par Angélidis et Coll [7] dans le cas des graines oléagineuses, la vitesse d'extraction résultante, est régie par trois processus élémentaires de l'échange de matière :

- La dissolution du soluté au sein des particules par le solvant,
- La diffusion de la solution vers l'extérieur de la particule,
- La diffusion du soluté contenu dans la solution au contact du solide vers la masse restante du solvant.

La diffusion du soluté contenu dans la solution au contact du solide vers la masse restante du solvant est généralement considérée comme une simple opération de mélange. L'agitation, dans ce cas, possède le rôle de maintenir une suspension homogène et agit favorablement sur la cinétique du transfert de matière en réduisant l'épaisseur de la couche limite qui entoure la particule solide.

4. Application des modèles de transfert de matière à l'extraction de l'huile essentielle des graines de coriandre

Plusieurs approches ont été adoptées pour modéliser le transfert de matière lors d'une extraction solide – liquide. On peut citer le modèle de Crank [1], le modèle de Sovova [2] et le modèle de Mafarat et Béliard [3].

4.1 Le modèle de Crank

Ce modèle est basé sur la résolution de l'équation de Fick relative au transfert de masse à température et pression constante écrite pour un solide de géométrie sphérique en présence d'une réaction chimique. Lorsque le coefficient de diffusion est constant et le milieu solide est isotrope, cette loi s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + V_r \frac{\partial C}{\partial r} + V_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial \theta} + V_\phi \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial C}{\partial \phi} = \mathcal{D} \left(\frac{1}{r^2} \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial C}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 C}{\partial \phi^2} \right\} \right) + R_A \quad (1)$$

Dans le cas de l'extraction à partir de solide sphérique vers une phase liquide supposée parfaitement agitée en absence de transformation chimique, la solution proposée par Crank donnant la concentration du soluté en phase solide s'écrit :

$$\frac{C_s(r,t)}{C_s(\infty)} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6\alpha(1+\alpha)e^{-\mathcal{D}q_n^2 t/R^2}}{9+9\alpha+q_n^2\alpha^2} \frac{R \sin(q_n r/R)}{r \sin q_n} \quad (2)$$

Si $M_l(t)$ indique la quantité totale de soluté ayant diffusé à un instant t, $M_\infty(t)$ la quantité de soluté qui diffuse dans le liquide après un temps infini et α le rapport entre le volume de la solution et celui du solide pour un coefficient de partage égal à l'unité alors [1]:

$$\frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6\alpha(1+\alpha)e^{-\mathcal{D}q_n^2 t/R^2}}{9+9\alpha+q_n^2\alpha^2} \quad (3)$$

Les q_n représentent les solutions de l'équation caractéristique suivante :

$$\text{Tan}q_n = \frac{3 q_n}{3+\alpha q_n^2} \quad (4)$$

La solution de cette équation périodique (équation 4) pour chaque valeur du paramètre α peut se faire numériquement. Cependant, le calcul de la fraction diffusée à chaque instant t reste délicat à cause du fait que l'équation 3 fait intervenir une somme infinie de termes. Ainsi, on a procédé à une simplification de cette somme en comparant les différents termes entre eux. L'équation (3) peut être écrite :

$$1 - \frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6\alpha(1+\alpha)e^{-\mathcal{D}q_n^2 t/R^2}}{9+9\alpha+q_n^2\alpha^2} = \sum_{n=1}^{\infty} A_n e^{-\mathcal{D}q_n^2 t/R^2} = \sum_{n=1}^{\infty} C_n \quad (5)$$

Avec : $A_n = \frac{6\alpha(1+\alpha)}{9+9\alpha+q_n^2\alpha^2} \quad (6)$

Pour deux termes successifs, nous pouvons écrire :

$$C_{n+1} = A_{n+1} e^{-Dq_{n+1}^2 t/R^2} \quad \text{et} \quad C_n = A_n e^{-Dq_n^2 t/R^2} \quad (7)$$

$$\ln \left[\frac{C_{n+1}}{A_{n+1}} \right] = -D \frac{q_{n+1}^2 t}{R^2} \quad \text{et} \quad \ln \left[\frac{C_n}{A_n} \right] = -D \frac{q_n^2 t}{R^2} \quad (8)$$

Le rapport entre ces deux logarithmes donne :

$$\frac{\ln \left[\frac{C_{n+1}}{A_{n+1}} \right]}{\ln \left[\frac{C_n}{A_n} \right]} = \frac{q_{n+1}^2}{q_n^2} \quad (9)$$

Ce rapport est indépendant du temps. Pour évaluer l'écart entre le premier terme et les autres termes de la série, on pose pour $n = 1$, $C_1 = 100$ et on calcule les autres termes (*les C_i*) à partir de l'équation (9). Les valeurs des q_i sont les solutions exactes de l'équation (4) pour une valeur fixée de α . Le tableau 2 regroupe les résultats des calculs effectués.

Tableau 2 : Les valeurs des termes C_i/C_1 en pourcentage

α	$C_2(\%)$	$C_3(\%)$	$C_4(\%)$	$C_5(\%)$	$C_6(\%)$
∞	2,17	0,08	1,75E-03	1,06E-05	3,15E-08
9	1,94	0,06	1,10E-03	5,62E-06	1,26E-08
4	1,74	0,05	6,53E-03	2,86E-06	4,66E-09
1,5	1,18	0,03	1,42E-04	3,90E-07	2,57E-10
1	0,83	1,39E-03	4,54E-05	8,46E-08	2,89E-11
0	2,92E-05	1,20E-08	2,35E-11	7,71E-17	1,16E-23

Ce tableau montre que le terme le plus élevé est le C_2 obtenu pour une valeur de α infinie qui est de 2,17 %. On en conclue alors que quel que soit le temps d'extraction, la somme peut être réduite à son premier terme avec une erreur maximale de 2,17 %. La cinétique d'extraction est alors régie par l'équation (10).

$$\frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = 1 - \frac{6\alpha(1+\alpha)}{9+9\alpha+q_1^2\alpha^2} e^{-Dq_1^2 t/R^2} \quad (10)$$

Sur la figure (2), on compare les prédictions de ce modèle avec les mesures expérimentales tirées de la référence [4]. On voit que la courbe calculée s'écarte considérablement des points expérimentaux, ce qui indique que ce modèle n'est pas apte à représenter l'ensemble du temps d'extraction. Toutefois, Crank propose également une équation qui serait valable uniquement pour les temps courts. Elle s'écrit :

$$\frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = 6 \left(\frac{Dt}{R^2} \right)^{1/2} \left\{ \pi^{-1/2} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \text{ierfc} \frac{nR}{\sqrt{Dt}} \right\} - 3 \frac{Dt}{R^2} \quad (11)$$

$$\text{Avec : } \text{ierfc}(x) = \int_x^{\infty} \text{erfc} \xi d\xi \quad (12)$$

La somme peut être négligée devant le premier terme, ce qui réduit l'équation 11 à :

$$\frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = 6 \left(\frac{Dt}{R^2} \right)^{1/2} \frac{1}{\sqrt{\pi}} - 3 \frac{Dt}{R^2} \quad (13)$$

En effet, en traçant sur le même digramme les équations 11 et 13 (figure 3) à l'aide du logiciel Mathematica, on voit que l'écart entre les deux courbes est très faible. En outre, l'équation 13 simule bien les mesures expérimentales à en juger par la comparaison reportée sur la figure 4.

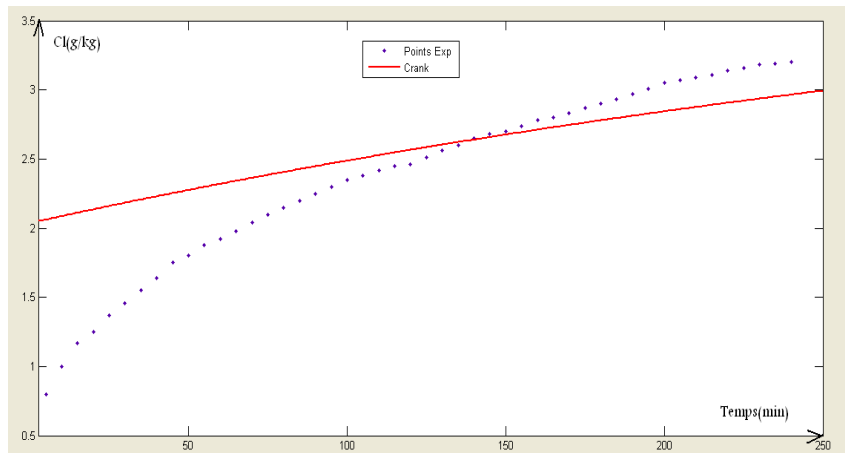


Figure 2 : Comparaison du modèle de Crank (équation 10) avec les mesures expérimentales.

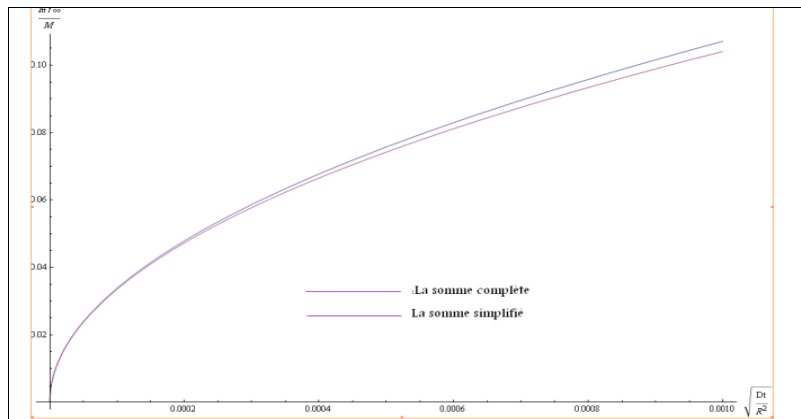


Figure 3 : Tracé des équations 11 et 13 en fonction du nombre adimensionnel $\sqrt{\frac{Dt}{R^2}}$

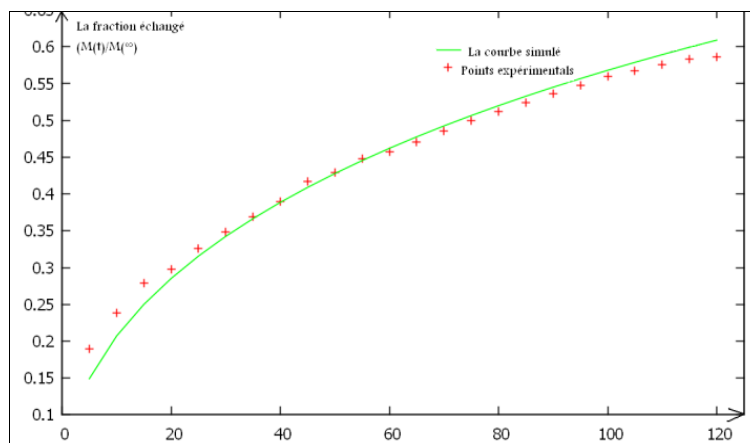


Figure 4 : Comparaison des prédictions de l'équation 13 avec les mesures expérimentales.

4.2. Le modèle de Mafarat et Béliard

Ce modèle repose sur le fait que le transfert de matière est limité par la convection dans le film liquide. Le bilan de matière sur le soluté s'écrit :

$$\dot{m} = \frac{dC_s(t)}{dt} = -KA(C_s(t) - C_l(t)) = -K'(C_s(t) - C_l(t)) \quad (14)$$

\dot{m} : Débit massique de soluté transféré (kg de soluté/kg de matière solide.s)

A : Aire d'échange de la phase solide (m²)

K : Coefficient global de transfert de matière (m⁻².s⁻¹)

C_l (t) : Concentration de la phase liquide en soluté (kg de soluté/kg de liquide)

C_s (t) : Concentration de la phase solide en soluté (kg de soluté/kg de solide)

Dans ce modèle, les hypothèses suivantes sont retenues :

- Le processus limitant est le processus de diffusion et non celui de solubilisation,
- Le coefficient de partage du soluté entre les deux phases est égal à l'unité,
- La perte de masse de la phase solide consécutive à la diffusion de soluté est compensée par un gain de masse équivalent de solvant migrant dans la phase solide.

Par ailleurs, si on note M la masse totale de la suspension (solide plus solvant), s la masse de la phase solide rapportée à la masse totale de la suspension et $C_s(0)$ la teneur initiale du soluté dans la phase solide, alors on peut établir le bilan suivant sur le soluté :

$$sMC_s(0) = sM\overline{C_s}(t) + (1 - s)MC_1(t) \quad (15)$$

La combinaison des équations 14 et 15 donne :

$$C_1(t) = sC_s(0) \left[1 - e^{-\left(\frac{K'}{1-s}\right)t} \right] \quad (16)$$

Cette dernière équation peut s'écrire sous la forme équivalente :

$$C_1(t) = C_1(\infty)(1 - e^{-\lambda t}) \quad (17)$$

Afin de tester la validité de ce modèle, nous avons comparé sur la figure 5 les prédictions de l'équation 17 avec des mesures expérimentales [4] obtenus avec la valeur suivante du paramètre s : $s = 0,296$. On remarque que l'équation optimisée à l'aide du logiciel Matlab s'écarte quelque peu des valeurs expérimentales à en juger par la valeur du coefficient de corrélation qui n'est dans ce cas que de 0,70. Les valeurs des paramètres λ et K' sont ici:

$$\lambda = 0.007601 \text{ min}^{-1}, K' = 0,005351104 \text{ m}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$$

En ressort que bien que ce modèle ait été établi pour des temps d'extraction infinis, il semblerait qu'il soit moins représentatif lorsque l'équilibre est loin d'être atteint.

Par ailleurs, et afin d'améliorer ce modèle qui a l'avantage de sa simplicité, on propose de le modifier en introduisant une puissance qui le rend de type pseudo-diffusionnel. L'équation 17 est écrite ainsi :

$$C_1(t) = C_1(\infty)(1 - e^{-\lambda t})^b \quad (18)$$

Les prédictions de cette équation sont comparées avec les résultats expérimentaux sur la figure 6. On voit que le modèle est nettement amélioré car le coefficient de corrélation est dans ce cas $R^2 = 0,9968$. Les paramètres calculés à partir de la simulation sont :

$$\lambda = 0,003065 \text{ min}^{-1}, K' = 0,00215776 \text{ m}^{-2} \cdot \text{min}^{-1} \text{ et } b = 0,4318$$

Ainsi, il apparaît que le modèle de Mafarat et Béliard tel qu'il a été développé par ses auteurs ne représente pas de façon satisfaisante la cinétique de l'extraction lorsque le temps de l'opération est court devant le temps dit infini, c'est à dire lorsqu'on est loin de l'équilibre. Cependant, une modification sous forme pseudo-diffusionnelle permet d'améliorer considérablement sa performance.

4.3. Modèle de Sovova

Dans ce modèle, il est considéré qu'initialement, une fraction e du soluté est localisée dans des cellules à parois cassées, facilement accessible et une fraction $1-e$ dans des cellules à parois intactes. De plus, certaines hypothèses simplificatrices ont été introduites [2, 8] :

- Les particules solides sont assimilées à des sphères dont le diamètre reste constant durant l'extraction ;
- La masse volumique du solide reste constante durant toute l'opération d'extraction
- La température est constante ;
- L'extrait est considéré comme un soluté unique ayant des propriétés physiques et diffusionnelles moyennes [8] ;
- A l'interface, l'équilibre thermodynamique est atteint quasi-instantanément ;

- En prenant en considération la symétrie du problème, la concentration du soluté ne dépend que de la variable spatiale (r) et du temps (t) [8].

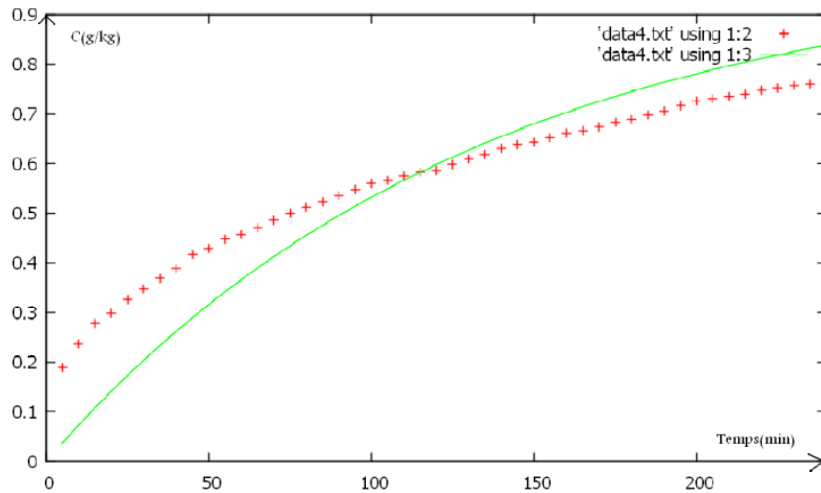


Figure 5 : Comparaison entre le modèle de Mafarat et Béliard et les mesures expérimentales

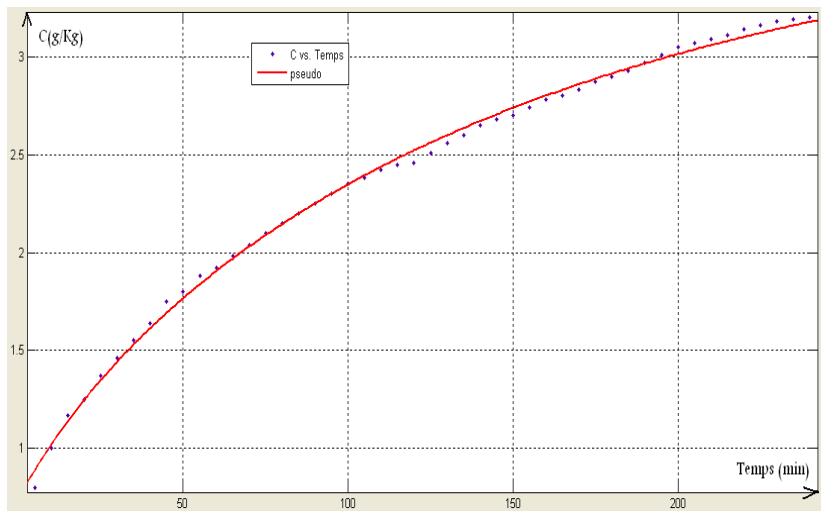


Figure 6 : Comparaison entre le modèle pseudo-diffusionnel et les mesures expérimentales

La solution proposée est de la forme :

$$C_1(t) = C_1(\infty) \left[1 - f \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) - (1 - f) \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \right] \quad (19)$$

T_1 et T_2 sont les deux constantes de temps caractéristiques des deux phénomènes de diffusion de soluté, à savoir la diffusion à partir de cellules cassées facilement réalisable, et la diffusion à partir des cellules intactes plus difficile et plus lente. " f " est un paramètre fonction de la fraction e de soluté localisée dans des cellules à parois cassées [2].

Afin de tester la validité de ce modèle, on compare sur la solution de l'équation 19 réalisée grâce au logiciel Matlab avec les données expérimentales. Au cours de cette simulation, la valeur de $C_1(\infty)$ a été fixée à $C_1(\infty) = 4,2 \text{ g/kg}$, valeur correspondant aux conditions de l'expérience. Dans ces conditions, le logiciel ne fournit aucune solution. Ceci indique que le modèle de Sovova n'est pas apte à représenter les mesures pratiques. Cependant, en laissant $C_1(\infty)$ comme paramètre optimisé par le logiciel, il est possible d'obtenir une solution. Ceci est montré sur la figure 7.

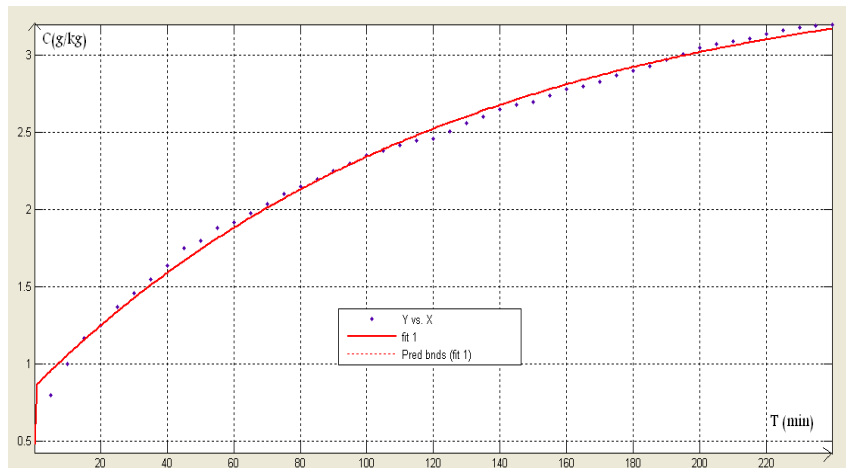


Figure 7 : comparaison de la solution Matlab de l'équation 19 et des valeurs expérimentales pour un $C_1(\infty)$ variable

Tel qu'on peut le voir, dans ces conditions, le modèle de Sovova simule correctement les mesures pratiques de la concentration de solvant dans la phase liquide au cours du temps. Le coefficient de corrélation est $R^2=0.9896$. Les paramètres de ce modèle sont reportés dans le tableau 3.

Tableau 3 : Paramètres du modèle de Sovova

$C_1(\infty)$	$1-f$	$T_1 (min)$	$T_2 (min)$
3.581	0.762	0.1065	126.4

Il apparaît que T_2 est nettement supérieure à T_1 , ce qui indique que l'apport de la première constante de temps est peu significatif. Ces résultats peuvent être expliqués par la présence de deux flux diffusifs distincts qui se produisent simultanément avec des amplitudes différentes, l'un étant beaucoup plus lent que l'autre.

5. Modèle proposé

A partir de l'analyse bibliographique effectuée, il apparaît que le transfert de masse au cours d'une extraction à partir de graines de coriandre soit un phénomène gouverné par deux processus de diffusion intra-particulaire dont les cinétiques dépendent de la nature et de la disposition des sites renfermant le soluté au sein de la particule. Initialement, le soluté contenu dans les cellules à parois cassées proches de la surface est libéré et diffuse à travers le film liquide entourant la particule, ensuite le soluté contenu au cœur du solide dans les cellules intactes est libéré avant de commencer à diffuser vers l'extérieur.

5.1. Le premier terme diffusif (relatif aux cellules intactes)

Ce terme peut être dérivé en considérant que le soluté provenant des cellules intactes est libéré progressivement de sorte que la résistance supplémentaire associée à sa libération est assimilée à une réaction de génération d'ordre 1. Le bilan de matière sur le soluté au sein de la phase solide à tout instant s'écrit :

$$-\frac{dC_s(t)}{dt} = kC_s(t) \quad (20)$$

En considérant que le coefficient de partage entre la phase solide et la phase liquide est égal à l'unité, le bilan de conservation du soluté s'écrit :

$$-\frac{dC_s(t)}{dt} = \frac{dC_l(t)}{dt} \quad (21)$$

Et puisque la quantité de soluté dans le système est constante, alors :

$$C_l(t) + C_s(t) = C_0 \tag{22}$$

Donc l'équation 20 peut se mettre sous la forme :

$$\frac{dC_l(t)}{dt} = k. (C_0 - C_l(t)) \tag{23}$$

Par intégration de cette équation entre l'instant initial (t=0) et un instant quelconque t, on obtient :

$$C_l(t) = C_0. (1 - e^{-kt}) \tag{24}$$

C_0 étant équivalent à la concentration finale de soluté dans la phase liquide après un temps d'extraction infini, l'équation 24 s'écrit finalement :

$$\frac{C_l(t)}{C_l(\infty)} = \frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = (1 - e^{-kt}) \tag{25}$$

5.2. Le second terme diffusif (relatif aux cellules cassées)

Pour des temps d'extraction longs, Crank [1] propose une équation simplifiée dérivée des équations de transport à l'intérieur de particules sphériques plongées dans une solution parfaitement agitée et qui s'écrit

$$\frac{M_l(t)}{M_l(\infty)} = 1 - 6 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2 \pi^2} e^{-n^2 \pi^2 D t / R^2} \tag{26}$$

Afin de simplifier et rendre utilisable cette équation, Laoufi [9] a montré que la somme peut être réduite aux deux premiers termes avec une erreur d'estimation ne dépassant pas 5 %. Ainsi, cette équation s'écrit :

$$\frac{C_l(t)}{C_l(\infty)} = 1 - 6 \left[\frac{1}{\pi^2} \exp\left(-\frac{\pi^2}{R^2} \cdot D \cdot t\right) + \frac{1}{4\pi^2} \exp\left(-\frac{4\pi^2}{R^2} \cdot D \cdot t\right) \right] \tag{27}$$

Dans cette étude, le diamètre des particules retenu est de 3,65 mm, ce qui permet d'écrire l'équation 27 sous la forme :

$$\frac{C_l(t)}{C_l(\infty)} = 1 - 0,61 \exp(-2,96 \cdot D \cdot t) - 0,15 \cdot \exp(-11,85 \cdot D \cdot t) \tag{28}$$

Ainsi, le modèle proposé est une combinaison des deux contributions avec des paramètres de pondération qui prennent en considération l'importance relative des processus de diffusion. L'équation 25 correspond à la fraction de soluté provenant des cellules à parois cassées proches de la surface et l'équation 28 correspond à la fraction de soluté provenant des cellules à parois intactes situées au sein des particules. On propose alors l'équation :

$$\frac{C_l(t)}{C_l(\infty)} = A [1 - 0,61 \exp(-2,96 \cdot D \cdot t) - 0,15 \cdot \exp(-11,85 \cdot D \cdot t)] + (1 - A) [(1 - e^{-kt})] \tag{29}$$

5.3. Validation du modèle proposé

A l'aide du logiciel Matlab, la fonction de l'équation 29 a été tracée et comparée aux mesures expérimentales et les paramètres D , K et A ont été estimés et cela pour deux expériences distinctes. Les résultats sont reportés sur la figure 8 et les valeurs de ces paramètres dans le tableau 4.

Il apparaît que ce modèle représente correctement l'évolution de l'extraction au cours du temps et cela pour une plage de temps assez large (5 et 10 heures respectivement). Par ailleurs, la valeur élevée du paramètre A au cours de l'expérience 1 indique que dans les conditions de cette extraction, il s'agit en grande partie de la diffusion à partir de sites à parois cassées situés près de la surface des particules. Par contre, au cours de la seconde expérience, il s'agit à 66 % d'une génération à partir des cellules internes à parois intactes.

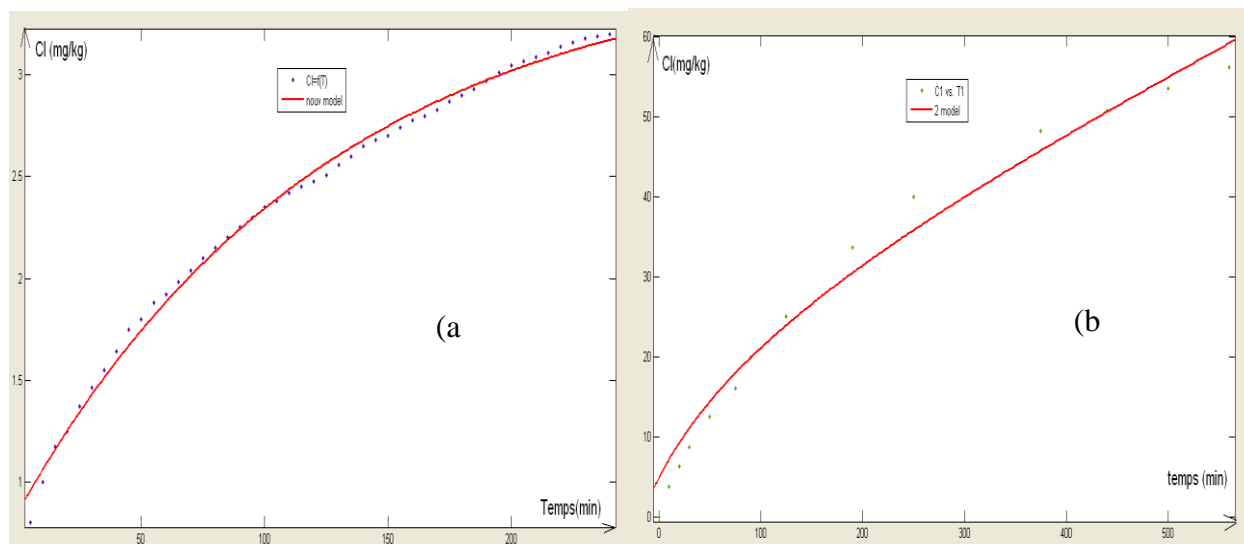


Figure 8 : Résultats de simulation par le modèle proposé (a) : expérience 1, (b) : expérience 2.

Tableau 4 : Paramètres du modèle proposé.

	A	D (mm² /min)	K (min⁻¹)
Expérience 1	0,9342	0,001627	$4,25 \cdot 10^{-5}$
Expérience 2	0,34	0,002364	$5,785 \cdot 10^{-5}$

6. Conclusion

Les résultats des simulations entreprises au cours de cette étude ont permis de mettre en évidence le mécanisme selon lequel le transfert de soluté d'une phase solide d'origine végétale (graines de coriandre) vers un solvant liquide (éthanol). Il s'agit d'une diffusion moléculaire qui se produit à l'intérieur des particules selon deux mécanismes parallèles possédant des temps caractéristiques différents : une diffusion rapide provenant des cellules à parois cassées proches de la surface externe des particules et une diffusion plus lente provenant des cellules à parois intactes situées au centre de la particule. Les simulations effectuées en employant les modèles bibliographiques ont montré qu'ils ne sont pas aptes à représenter correctement la cinétique d'extraction à partir des graines de coriandre sur un large domaine de temps. Toutefois, avec certaines modifications, ceux-ci permettent d'avoir une assez bonne approximation qui reste limitée dans le temps.

Par ailleurs, et sur la base des constatations concernant les mécanismes de transfert, un modèle a été proposé. Il s'agit d'une combinaison d'une variété du modèle de Crank valable uniquement pour des temps d'extraction longs et d'un modèle qui prend en compte la génération du soluté à partir des cellules intactes. Un bon accord entre les prédictions de ce modèle et les mesures expérimentales a été observé. De plus, ce modèle permet de distinguer le mécanisme prédominant, qui est dans le cadre de ce travail la diffusion moléculaire du cœur des particules vers la surface externe (suite à la réaction de génération de soluté) lorsque le temps d'extraction est de dix heures et la diffusion moléculaire à partir des cellules cassées près de la surface lorsque le temps d'extraction est de cinq heures. Ceci indique clairement que dans les graines de coriandre, la majeure partie du soluté se trouve emprisonnée dans les cellules à parois intactes.

Références :

- [1] J. Crank ; "The Mathematics of Diffusion". 2nd Ed, Clarendon Press, Oxford, London, pp 44-96, (1975).
- [2] H. Sovova et A. S. Aleksovski ; "Modèle mathématique pour l'hydrodistillation des huiles essentielles", Flavour et Fragrance journal, volume 21, N°6, pp 881-889, (2006).
- [3] P. Mafarat et E. Beliard ; "Génie Industriel Alimentaire", Tome 1, Ed. Tech. et doc., Lavoisier, Paris,(1992).

- [4] E. A Kouadri Boudjelthia ; "Développement de Modèle de transfert de matière avec deux constantes de temps", Projet de fin d'études, Ecole Nationale Polytechnique d'Alger (2008).
- [5] A. Skiredj et H. Elattir ; "Transfert de technologie en agriculture Institut agronomique et vétérinaire", Rabat, N°96 Septembre (2002).
- [6] A. Diederichsen ; "Coriander (*Coriandrum sativum* L.)", Promoting the conservation and use of underutilized and neglected crops. 3. Institute of Plant Genetics and Crop Plant Research, Gatersleben/ International Plant Genetic Resources Institute, Rome, (1996).
- [7] O. M. Angélides ; "Revue des oléagineux", N°8 et 9, (1968).
- [8] E-H Benyoussef, S. Hasni, R. Belabbes et J. M. Bessiere ; "Modélisation du transfert de matière lors de l'extraction de l'huile essentielle des fruits de coriandre", Chem. Eng. J. N° 85, pp 1-5, (2002).
- [9] M. Laoufi ; "Modélisation du transfert de matière lors d'une extraction solide-liquide", Mémoire de Magister, Université Kasdi Merbah Ouargla, (2013).