

# Utilisation des agrumes dans l'industrie alimentaire et pharmaceutique

par **M. F. COSTE, H. M. GATTEFOSSÉ** et **B. R. GUILLOT**

*Avec la collaboration du laboratoire de Pharmacie galénique de la Faculté de Pharmacie de Nantes  
et de la Faculté de Pharmacie de Grenoble.*

## UTILISATION DES AGRUMES DANS L'INDUSTRIE ALIMENTAIRE ET PHARMACEUTIQUE

par M. F. COSTE, H. M. GATTEFOSSÉ et B. R. GUILLOT.

*Fruits*, vol. 23, n° 10, nov. 1968, p. 531 à 541.

**RÉSUMÉ.** — L'Industrie alimentaire et pharmaceutique utilise, depuis fort longtemps, les agrumes comme aromatisants. Il existe à l'heure actuelle toute une gamme de produits qui en dérivent : huiles essentielles, pluressences, pulvessences, jus, extraits, pâtes, lyophilisats, arômes synthétiques etc...

Ces produits sont soumis à des contrôles physiques, chimiques ou organoleptiques, et lors d'une aromatisation ou d'un masquage, les jurys de dégustation jouent un rôle prépondérant. Le travail d'aromatisation est en effet essentiellement subjectif, bien que des travaux récents tendent à objectiver les phénomènes olfactifs et gustatifs qui y sont liés.

L'industrie pharmaceutique s'efforce à l'heure actuelle de présenter au public des médicaments dont les caractères ou qualités organoleptiques soient suffisamment étudiés pour ne provoquer chez le patient ni un sentiment de répulsion ni une excitation de sa gourmandise.

L'industrie alimentaire dispose par contre d'une gamme plus vaste d'arômes et d'édulcorants car son but est précisément de flatter les besoins « gustatifs » du consommateur.

Mais qu'entend-on précisément par qualités ou propriétés organoleptiques, par arômes et aromatisants ? Si l'on se réfère au vocabulaire technique publié par le C. N. R. S. sous la direction de J. LE MAGNEN, « les propriétés, caractères ou qualités organoleptiques sont définies par l'ensemble des propriétés de l'aliment (et par là même du médicament considéré) qui sont la cause avant, pendant et après l'ingestion orale d'un complexe de sensations, ce complexe formant ce que l'on appelle le goût de l'aliment ou du médicament ».

La flaveur représente selon les auteurs, soit la part olfactogustative du complexe perceptif, soit l'ensemble

des stimuli : stimulation olfactive et gustative, sensations tactiles (âcres, veloutées, piquantes...), thermiques, mécaniques et même sensations auditives (Remington's Pharmaceutical Sciences).

Pour certains auteurs comme TRAISNEL les termes arômes et arômates désignent respectivement « l'odeur » et « toute substance répandant une odeur suave ». D'après TRAISNEL, il faudrait donc parler de « l'aromatisation d'une pommade » et de « flaveur pour une préparation destinée à la voie orale ».

Par contre, dans un récent article à propos de « l'utilisation des arômes dans l'industrie de la confiserie PROFIT oppose nettement arôme et parfum : « Il ne faut pas perdre de vue que les produits aromatiques entrent dans la composition de la confiserie pour leur arôme et non pour leur parfum. » Il ajoute cependant : « Le parfum vient parfois au secours de l'arôme. »

La question reste donc posée : vaut-il mieux parler de l'aromatisation des médicaments destinés à la voie orale ou des aliments, ou de l'amélioration de la flaveur de ce même médicament ou aliment ?

Ajoutons que le problème de l'aromatisation en pharmacie semble à priori plus difficile à résoudre que dans

l'industrie alimentaire : en effet dans ce dernier cas, il s'agit surtout de rendre le plus agréable possible un aliment alors que, pour un médicament, il s'agit de modifier, de masquer, d'améliorer sans tomber dans l'excès inverse, un médicament ayant une odeur, un goût, une texture souvent franchement désagréable. Il intervient ici nettement un facteur de « correction de goût » (TRAISNEL).

Des travaux récents tendent à rendre objectif en s'aidant de la chimie, de la physique et des mathématiques, l'aspect sensoriel et subjectif de l'olfaction, nous pouvons citer par exemple :

- édifice moléculaire et odeur (PEYRON) ;
- efficacité odorante et activité thermodynamique (LAFFORT) ;
- les molécules odorantes agiraient par leur forme et leur taille (GRIVE) ;

et enfin, une méthode pour mesurer l'intensité d'une odeur a été exprimée de façon mathématique (APPELL, 1964).

Cependant, de tous nos sens, l'odorat est certainement le plus subtil et le plus complexe. La muqueuse nasale comporte une région adaptée à la perception des odeurs : la tache jaune olfactive dont la partie

active est formée par les cils et bâtonnets olfactifs qui baignent dans un mucus sécrété par les glandes de BOWMAN. Au niveau du glomérule, le filet olfactif se met en contact avec les dendrites de la cellule mitrale du bulbe olfactif dont le cylindraxe rejoint un centre olfactif.

S'il est difficile d'apporter une simplification logique au chaos des odeurs, par contre, il se trouve qu'on a pu limiter la sensation gustative à 4 qualités primaires ou goûts fondamentaux :

Le sucré, le salé, l'acide et l'amer. Les récepteurs sensibles au goût acide sont en nombre plus important en avant (pointe de la langue) tandis que ceux sensibles au goût amer sont plus développés vers l'arrière (base de la langue). Le sens du goût est probablement sous la dépendance du nerf glossopharyngien et de la corde du tympan.

Mais quels sont les aromatisants à base d'agrumes ou les flaveurs d'agrumes dont nous disposons à l'heure actuelle pour masquer, corriger ou améliorer un ou plusieurs principes actifs dotés d'un goût ou d'une odeur particulièrement désagréable ou pour créer une « saveur » au sein d'un aliment ?

## AROMATISANTS

Les aromatisants à base d'agrumes inscrits à la pharmacopée française sont peu nombreux :

— Zeste du fruit frais de l'oranger à fruit doux (*Citrus aurantium* L. var. *dulcis* PERS., *C. aurantium* RISSO) et son alcoolature.

— L'écorce d'orange amère : Bigaradier (*C. aurantium* var. *amara* LINK., *Citrus vulgaris* RISSO ou *Citrus bigaradia* DUHAMEL) ainsi que la teinture et le sirop correspondants.

— Alcoolature de citron (*Citrus medica* L. pro parte, *C. limonum* RISSO. Rutacées, Aurantiées).

— Essence de citron, essence d'orange.

Si la pharmacopée française ne traite pas spécialement de l'aromatisation, la pharmacopée américaine et le National Formulary attachent une importance particulière à l'aromatisation des médicaments. Nous citerons parmi les produits à base d'agrumes :

— Élixir aromatique à base d'essence d'orange composée avec essences d'orange, de citron, d'anis et de coriandre.

— Du sirop d'orange qui est de la teinture d'orange douce, additionnée d'un peu d'acide citrique.

Mais sur le marché nous trouvons à l'heure actuelle

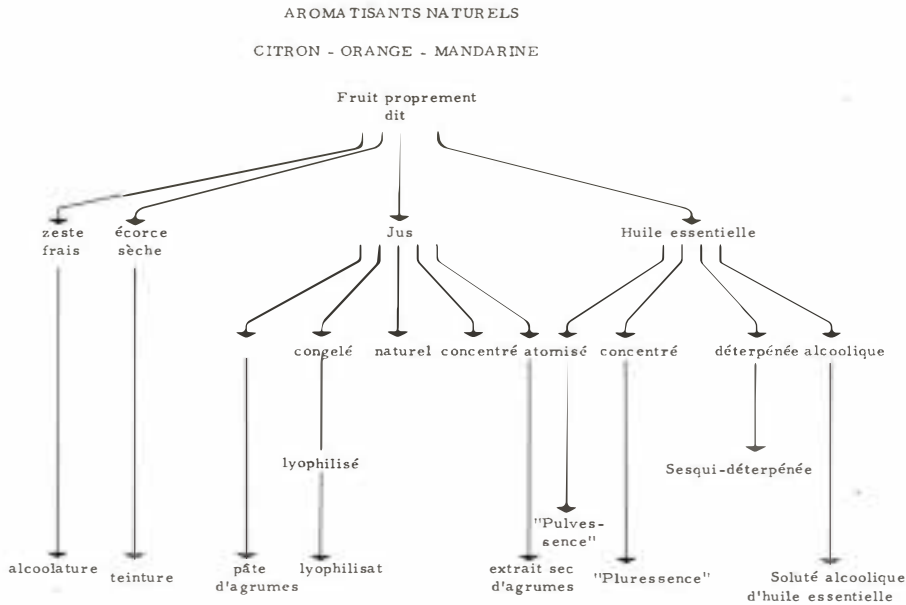
toute une gamme de produits dérivés des agrumes, destinée à l'usage pharmaceutique ou alimentaire, ces formes sont rassemblées dans le tableau ci-contre.

1) **Huiles essentielles** d'orange, citron, mandarine (*Citrus madurensis* LOUR ou *C. nobilis* LOUR) sont obtenues par expression de la partie externe du péricarpe du fruit frais et sont la plupart du temps rectifiées, c'est-à-dire que l'on élimine des impuretés par distillation sous vide.

2) **Huiles essentielles concentrées** : sont obtenues par élimination d'une partie plus ou moins importante des hydrocarbures. Ce sont en fait les *Pluresences* rectifiées et déterpénées par concentration sous vide. Ce sont des huiles essentielles concentrées, dont la teneur en dérivés oxygénés est quatre fois supérieure à celle des huiles essentielles.

3) **Huiles essentielles déterpénées et sesquidéterpénées** : résultent d'une distillation fractionnée sous vide de l'essence ; on élimine ainsi les terpènes (fraction légère oxydable de ces essences) et les sesquiterpènes (fraction lourde peu soluble dans l'alcool). On ne conserve que la fraction « cœur ».

4) **Pulvessences** : sont des essences enrobées dans



un gel déshydraté de polysaccharides naturels. On forme une émulsion d'essence dans la gomme et l'on passe à l'atomiseur (GATTEFOSSÉ).

La concentration en essence varie de 5 à 20 p. cent.

5) **Solution alcoolique d'huile essentielle** : résulte de l'action dissolvante de l'alcool sur l'essence et élimination des parties insolubles après repos.

6) **Jus d'orange et de citron** : se trouvent en alimentation, conservés sous pression de  $\text{CO}_2$  ou par addition de conservateurs autorisés ( $\text{SO}_2$ ) dans les catégories dites courantes (LECOQ).

7) **Jus concentrés d'orange, citron, mandarine** : sont obtenus à partir des fruits mûrs cueillis sur l'arbre à l'exclusion de tout fruit tombé, par pressage, récupération et incorporation d'une partie du péricarpe, pasteurisation, concentration, stérilisation. Ils sont concentrés environ cinq fois, puis pasteurisés. L'industrie utilise des jus beaucoup plus concentrés jusqu'à consistance pâteuse.

8) **Extraits secs d'agrumes** : résulte de l'atomisation de jus pectiques d'agrumes désucriés et désacidifiés, ce qui leur donne un bon pouvoir d'absorption leur permettant de disperser des huiles essentielles en vue de la préparation de concentrés pour boissons.

9) **Pâtes d'agrumes** : représentent une forme soluble d'agrumes : c'est en quelque sorte un jus évaporé dans lequel de la pectine enrobe l'essence. C'est un produit peu connu, peu utilisé et dont les méthodes analytiques sont à mettre au point.

10) **Lyophilisats de jus d'orange aromatisé** :

sont obtenus par congélation et sublimation du jus associé à de la pulpe de péricarpe.

Un très récent exposé de ARTOZOUL sur la lyophilisation et les arômes remet en question les affirmations du professeur REY : « Les produits lyophilisés gardent parfaitement l'ensemble de leurs propriétés organoleptiques : texture, goût et arôme, ceci à cause de l'effet absorbant de la masse inerte lors du dégazage. »

Or, l'expérience industrielle actuelle montre que cela n'est pas toujours valable ; quand on lyophilise, l'air ambiant est parfumé ainsi que l'eau de dégivrage. Les pertes aromatiques ont lieu à la congélation et lors de la mise sous vide. Aussi les industriels, et c'est en particulier valable pour le café en poudre, réaromatisent-ils le produit lyophilisé.

ARTOZOUL a mis au point un système sélectif de récupération des arômes, la grande difficulté étant ensuite de réintroduire des arômes à l'intérieur de la masse lyophilisée. Pour cela deux solutions : soit par flux d'air, soit par pulvérisation ; mais on constate alors un dépôt de l'arôme sur le tissu inerte du lyophilisat, il n'y a pas absorption dans la masse. Le jus d'orange est en particulier très difficile à lyophiliser et à réaromatiser car les arômes réintroduits sont très sensibles à l'oxydation. Il s'agit d'autre part d'une méthode onéreuse.

Il semble que les produits atomisés aient des propriétés organoleptiques plus intéressantes. Cependant, en ce qui concerne la lyophilisation, des recherches pourraient être faites concernant la capacité de réten-

tion d'un jus de fruit vis à vis de matières aromatiques de volatilité croissante ou peut être, faudrait-il par la suite, modifier la structure du lyophilisat.

11) **Jus d'orange congelé au Canada** (MOLDAVAN, 1964).

12) **Tablettes de concentré de jus d'orange et de mandarine aux États-Unis** (P. A. C. I.).

13) En Amérique, mise au point pour l'industrie alimentaire de **capsules** contenant une dose précise d'**arômes liquides**.

14) **arômes synthétiques** utilisés dans l'alimentation qui sont des « préparations de mélanges relativement simples rappelant l'arôme naturel et de parfaite innocuité ».

15) **Édulcorants** : parmi eux, nous citerons les plus utilisés : les sucres, les sirops, les polyalcools (Mannitol-Sorbitol-Glycérine), la saccharine, le cyclamate de Na, enfin, certains pays utilisent la Dulcine et le P 4000.

16) Signalons pour terminer au Japon, la découverte de **renforceurs d'arômes en alimentation** :

ce sont des substances qui sont utilisées à dose infinitésimale pour développer et fixer l'odeur : sel d'histidine et acide inosique : ribose 5' phosphorique.

Tous ces produits ont bien évidemment des caractères et des constantes physico-chimiques définis, constantes qui sont fournies par les pharmacopées, les ouvrages de législation alimentaire, ou les fiches analytiques et de contrôle.

Rappelons que le mode d'obtention d'une essence ou d'un jus de fruit influe sur ses caractères ainsi d'ailleurs que la variété du fruit employé et l'origine de ce fruit.

L'étude de ces caractères et des composés chimiques constitutifs, nous montre que nous n'avons aucune donnée sur les pâtes d'agrumes, ni sur les lyophilisats. Nous constatons par ailleurs, que les essences déterpénées sont plus solubles dans les alcools faibles (60-80°) que les essences naturelles ou pluressences et qu'elles sont de composition plus constante et de meilleure conservation du fait de la diminution de leur indice de peroxyde.

## CONTRÔLES

Ces caractères et ces constantes physiques découlent bien évidemment de la composition chimique du produit étudié, qui est souvent très complexe, les composants n'étant pas encore tous identifiés, d'où la difficulté de reconstitution des arômes. Cependant, une firme française a réussi à reconstituer une essence de citron identique à l'essence naturelle (la comparaison de leurs spectres I. R. le prouverait).

Différentes méthodes physiques ou chimiques ont permis et permettent encore d'identifier les corps entrant dans la composition des aromatisants à base d'agrumes, et permettent aussi de contrôler leur pureté et leur stabilité. Nous rappellerons brièvement ces méthodes qui vont de la mouillette de papier-filtre à l'utilisation d'appareils physiques perfectionnés en passant par des méthodes classiques de dosages chimiques.

1) *Les méthodes chimiques* : en dehors des déterminations classiques de l'extrait sec, des cendres ou de la teneur en eau, etc., certains indices ou dosages, tel l'indice de peroxyde, le dosage chimique du citral ou la détermination de l'acidité et de la teneur en vitamine C d'un jus sont importants.

En ce qui concerne :

2) *Les méthodes physiques*, il faut bien reconnaître

que les méthodes chromatographiques sont les plus utilisées actuellement ; en particulier la chromatographie sur plaque ou sur papier et la chromatographie en phase gazeuse. Cette dernière présente quelques inconvénients : il peut se former des réactions secondaires en cours d'opération dues à la grande sensibilité des constituants terpéniques à différents facteurs tels que température, propriétés catalytiques de certains supports, réactivité de quelques phases stationnaires. On recommande par conséquent d'opérer des séparations préalables par chromatographie d'adsorption liq/liq ou d'utiliser des précolonnes de séparation. Un étalonnage préalable ou en cours d'opération est nécessaire. L'emploi de la spectrophotométrie U. V. ou I. R. complète le plus souvent les résultats obtenus par chromatographie.

Différentes méthodes physiques peuvent être également associées : par exemple, un travail récent sur l'essence d'orange utilise la distillation puis les chromatographies sur colonne et en phase vapeur, la spectrographie de masse, les I. R. et la résonance magnétique nucléaire (PEYRON).

Enfin, les *méthodes physiques et chimiques* sont souvent couplées :

C'est par exemple le cas de la chromatographie sur papier des dérivés mercurisés des essences par GODOX

ou de l'isolement des aldéhydes par conversion en dérivés hydrosolubles à l'aide du réactif GIRARDT, régénération et chromatographie en phase gazeuse par STANLEY et coll.

C'est également le cas de la chromatographie en phase gazeuse de la fraction terpénique et alcools-esters des essences d'agrumes, obtenue par distillation sous vide, après élimination des aldéhydes et des produits solubles dans la lessive alcaline, ce qui a permis

d'identifier l'octylène et le p. cymène entre autres dans l'essence de citron (LA FACE).

Toutes ces méthodes utilisées à bon escient nous permettent de juger de la pureté, de la stabilité d'un aromatisant avant et après son introduction dans un médicament ou un aliment. Mais pouvons-nous dégager dès à présent quelques règles d'utilisation des aromatisants tant sur le plan alimentaire que sur le plan pharmaceutique ?

## UNITÉ DE GOUT

Les Américains ont beaucoup travaillé sur ce sujet : BEEBE CENTER et WADDELL ont défini une unité de goût. Le « gust » qui est l'intensité d'une solution à 1 p. cent en saccharose. Dans ce cas, nous avons le gust sucré ; des gusts amers, salés, acides ont aussi été définis par exemple un gust acide est l'intensité d'une solution d'acide tartrique à 0,0085 g p. cent.

Dans le domaine des mélanges de sapidités différentes, KAMEN, PANGBORN et ANDERSON entre autres, après de nombreux travaux, en prenant comme substances de références la caféine, le saccharose, le ClNa, l'acide citrique respectivement pour les quatre sensations amère, sucrée, salée et acide, sont arrivés aux résultats suivants :

- la caféine augmente la sensation acide ;
- le saccharose diminue l'amertume et l'acidité ;
- le ClNa augmente la sensation sucrée, par contre le Cl<sub>2</sub>Ca diminue cette sensation (il y a là un problème d'interaction ionique) ;
- l'acide citrique augmente les sensations amère, salée, sucrée.

Nous voyons donc que si l'on ajoute du sucre dans une préparation amère, il y aura diminution de l'amertume. Par contre si l'on additionne de la caféine à un produit sucré, on ne constate aucun effet sur la sensation sucrée.

De même, si dans une solution salée, on ajoute du saccharose, il n'y aura aucun effet, alors que si, inversement, on ajoute dans une solution sucrée du ClNa, il y aura augmentation de la sucosité.

Nous allons envisager différents cas simples qui sont à la base des études de correction et d'aromatisation.

### L'amer.

Prenons par exemple le cas d'un *médicament amer et inodore* :

Si l'on élimine d'emblée la modification de la formule chimique, les sirops de cacao, réglisse, framboise et eryodiction semblent recommandés par WRIGHT et PURDUM, sans oublier que les sirops de citron, d'écorce d'orange amère masquent bien le goût amer des sulfamides.

Mais la correction de l'amertume est très délicate car il y a deux sortes d'amertume :

— celle qui se manifeste immédiatement et disparaît rapidement : c'est l'amertume fugace. Dans ce cas, les produits à base d'agrumes sont recommandés ;

— celle qui laisse un arrière-goût tenace, et dans ce cas, on est obligé d'avoir recours au caramel, au café, ou à la réglisse, substances qui ont une saveur persistante.

— *Quant aux substances amères et à odeur désagréables* : il faut corriger à la fois le goût et l'odeur : le mélange anis-menthe peut-être utilisé.

— C'est certainement dans la *correction des substances acides* et dans l'*amélioration des saveurs sucrées* que les produits à base d'agrumes sont les plus utilisés : mélange d'essence naturelle, orange, citron, mandarine et sirop simple, jus de fruits et pluressences...

### Le salé.

— *Correction des substances salées et inodores* : selon WRIGHT et PURDUM, l'ordre de préférence semble être sirop de réglisse, de cannelle, d'orange... On peut cependant diminuer la sensation salée en additionnant des sirops mucilagineux ou, si cela est possible, en changeant le cation ( $\text{NH}_4 > \text{K} > \text{Ca} > \text{Na} > \text{Li} > \text{Mg}$ ) ou l'anion (addition de citrate dans un milieu calcique).

— Il peut arriver qu'un *médicament* soit à la fois *amer* et *salé*. Dans ce cas, les essences solubles d'agrumes (hormis peut-être celle de citron qui conduit dans ce milieu à une odeur de térébenthine) sont recommandées.

— Les substances *insipides et inodores* seront améliorées en modifiant la texture du produit pour faciliter son ingestion, ensuite viendront l'édulcoration et l'aromatisation par une essence ou une pulvéscence d'agrumes.

— Les médicaments *odorants et insipides* dont le meilleur exemple est bien l'huile de foie de morue, verront leur administration facilitée en les émulsionnant par de la gomme et en les édulcorant et aromatisant par l'emploi d'un jus de fruit par exemple.

Nous voyons donc que, si chaque cas est particulier, un certain nombre de critères de base doivent être respectés : il faut que les aromatisants soient définis, efficaces, stables, compatibles, utilisables et contrôlables. D'autre part, c'est le cas en France, il ne faut pas intervenir sur la formule centésimale, ni modifier la forme pharmaceutique du médicament et la technique de fabrication de ce médicament. Il ne faut pas provoquer de colorations indésirables ou de précipités des principes médicamenteux, ni apporter d'éléments nouveaux pharmacologiquement actifs, toxiques ou peroxydables.

Or, il faudrait pouvoir comme le recommande WES-

LEY dans ses « Flavoring lessons », faire l'aromatisation non pas en dernier lieu, mais en cours d'opération ; autrement dit, placé devant une formule complexe, avoir la possibilité de la critiquer, de modifier ce qui dès la simple lecture paraît inopportun du point de vue organoleptique tout en respectant la partie active.

L'industrie alimentaire a elle aussi ses critères : composition qualitative de l'arôme bien connue, sa qualité gustative et ses possibilités d'utilisation bien définies (il faut par exemple, introduire des arômes en poudre dans un caramel et des huiles essentielles dans un sucre cuit).

Mais on ne peut envisager le problème de l'aromatisation d'un médicament ou d'un aliment sans parler des « Jurys de dégustation » qui ont à comparer, sélectionner et apprécier la qualité des « saveurs » en se basant sur toute une série de tests mis à leur disposition. La méthode dite de PURDUM qui leur permet de sélectionner le correctif ou l'améliorant, la méthode de WRIGHT ou le test triangulaire de DEPLEDT qui lui permet de confirmer le choix précédent, et enfin les tests par paire, le duo-trio de DEPLEDT qui contrôlent la qualité du produit fini.

## JURY DE DÉGUSTATION

Les membres d'un jury de dégustation doivent être placés dans des conditions matérielles, physiologiques et psychologiques bien déterminées, c'est-à-dire que les épreuves de dégustation doivent s'effectuer dans des locaux accueillants où chacun peut être isolé de son voisin, vers 10 heures du matin, les mardis, mercredis et jeudis, les épreuves ne devant pas durer plus de 30 mn. Il est recommandé de ne pas fumer, et le dégustateur doit en principe, être volontaire et être considéré comme un invité à qui on explique les raisons de l'épreuve. Toute une série de cotation est à la disposition des jurys à condition que ceux-ci soient suffisamment entraînés.

### Méthode de PURDUM :

On peut la schématiser de la façon suivante : deux séries de flacons numérotés de 1 à 10 contenant des dilutions de la substance à masquer en progression arithmétique d'ordre 1,5 c'est à dire : 0, 1,5, 3, 4,5, 6, etc.

La 2<sup>e</sup> série de flacons contient en plus le correcteur au taux de 10 p. cent. Dans chaque série, on recherche le goût étudié, note le numéro du flacon et la différence

entre les deux chiffres représente le pouvoir masquant du correcteur. On opère avec un jury de trente dégustateurs, on calcule la moyenne des pouvoirs masquants et l'on cherche si la différence entre plusieurs excipients est significative.

### Méthode de WRIGHT :

Il s'agit de déterminer le mélange (produit actif + correctif) dont l'expression d'ensemble plaît le plus. L'auteur a étudié le pouvoir correctif de sirops de la Pharmacopée américaine vis à vis de substances de référence :

- Chlorure d'ammonium à 1 p. cent
- Sulfate de quinine à 0,1 p. cent
- Bromure de Na à 17 p. cent

WRIGHT ne s'occupe pas du goût propre d'un aromatisant mais recherche la meilleure « saveur » globale.

### Technique de DEPLEDT, qui comprend :

1) *Test par paires* : deux échantillons A et B sont présentés à chaque fois, le test étant répété plusieurs

fois. On demande si A et B sont différents et s'ils le sont, en quoi différent-ils ?

Si A est connu, en quoi B diffère-t-il ? C'est un excellent test de contrôle, de stabilité d'une préparation.

2) *Duo-trio-test* : trois échantillons, X, Y, Z, sont présentés mais l'un d'eux (X) est connu comme témoin et on demande si séparément Y et Z diffèrent de X ou si Y et Z sont semblables ? C'est un excellent test pour des essais de recherche en laboratoire.

3) *Test triangulaire* : soit deux produits à analyser. Le témoin T et l'essai E.

Trois échantillons A, B et C sont présentés parmi lesquels deux identiques doivent être reconnus pour que les autres réponses soient prises en considération.

Plusieurs combinaisons sont possibles ; on a en effet le choix entre A = B, A = C ou B = C, ce qui donne six combinaisons : TEE, ETE, EET, TTE, TET, ETT.

On fait un premier essai et on présente à nouveau les mêmes échantillons dans l'ordre inverse car le premier échantillon dégusté semble toujours le meilleur ou le plus fort ou le plus agréable.

Nous terminons ce paragraphe par un exemple pratique emprunté à WESLEY qui a mis au point aux États-Unis une méthodologie pratique de l'aromatisation des médicaments : il s'agit de l'aromatisation d'un antitussif.

Le travail d'aromatisation a commencé en même temps qu'on établissait le projet de la préparation. Des tests gustatifs furent réalisés pour vérifier que ni les ingrédients actifs, ni le véhicule n'auraient un goût assez mauvais pour rendre le produit inacceptable du point de vue organoleptique et ainsi fut établie la formule préliminaire suivante :

Antihistaminique. . . . .	1	mg pour 5 ml
Décongestionnant. . . . .	7,5	—
Expectorant. . . . .	50	—
Antitussif. . . . .	12	—
Bronchodilatateur. . . . .	4	—
Agent tensio-actif. . . . .	0,5	—
Stabilisant A. . . . .	5	—
Stabilisant B. . . . .	2,5	—

Avec comme véhicule :

Sirop. . . . .	61 p. cent
Sol. de Sorbitol. . . . .	18 —
Glycérine. . . . .	12 —
Eau. . . . .	6 —
Alcool. . . . .	3 —

Chacune des huit substances reçut un traitement d'aromatisation individuel et séparé : par exemple,

l'antihistaminique fut dissous dans le véhicule au 1/10 de la concentration projetée. La solution fut ensuite soumise à une expérimentation avec les arômes de base au dixième de leur concentration courante. Ceci conduisit à l'établissement des premier, deuxième et troisième choix en matière de parfums pour les huit substances.

- Les 8 premiers choix. . . . . Master Flavor X
- Les 8 deuxièmes choix. . . . . Master Flavor Y
- Les 8 troisièmes choix. . . . . Master Flavor Z

Un contrôle final du parfum pour choisir entre le Master Flavor X, Y ou Z, fut une « opération à rebours » où l'on a médicamenté le parfum et non parfumé le médicament. Ceci s'apparente à la méthode vieille comme le monde de prendre les médicaments dans une boisson telle que jus d'orange, soda ou bière.

Remarquons que l'expérimentation a été faite avec des arômes de base mais le travail pourrait peut-être être poursuivi en utilisant un parfum composé à base d'agrumes. De toute façon, cinq nouveaux principes ont été établis :

- aromatisation allant de pair avec la mise au point ;
- dégustation sous forme diluée ;
- constituants parfumés individuellement ;
- arômes de base utilisés ;
- médicament goûté dans le parfum.

Nous avons dit précédemment qu'un aromatisant doit être stable, c'est l'un de ses critères d'utilisation.

Or les produits dérivés des agrumes et en particulier les essences, sont très facilement peroxydables, surtout lorsqu'ils n'ont subi aucun traitement approprié.

La peroxydation est une oxydation qui débute toujours par l'hydroperoxyde d'un hydrocarbure, en l'occurrence, les terpènes. Les autres constituants, notamment les alcools, esters et phénols jouent un rôle de freinateurs de peroxydation.

— RUSSEL estime que l'auto-oxydation des terpènes s'effectue grâce aux radicaux libres et par époxydation. Les époxydes seraient formés par réaction d'une molécule d'hydroperoxyde de limonène par exemple, et d'une molécule de limonène libre à double liaison.

— Selon WSEVOLOD KARNOJITZKI : toute auto-oxydation des hydrocarbures terpéniques est caractérisée par une période d'induction plus ou moins longue.

L'apparition des radicaux correspond à la fin de cette période d'induction. Nous aurions le schéma :

- apparition des radicaux R ;
- oxydation des radicaux R en radicaux ROO ;
- action des radicaux ROO sur RH avec formation d'hydroperoxyde ROOH et libération du R.

$ROO + HR \rightarrow ROOH + R$ . La réaction s'arrête par désactivation des radicaux qui peut se faire, soit par formation d'hydrocarbures  $R + R \rightarrow R - R$  ou de peroxyde stable :  $R + OOR \rightarrow ROOR$ .

— L'indice de peroxyde permet donc de contrôler la stabilité d'une essence : une essence fraîchement extraite présente un indice de peroxyde voisin de 0, alors qu'une essence de citron plus ou moins bien conservée révèle des indices de peroxydes élevés : 150-300.

Différents remèdes sont recommandés pour augmenter la stabilité d'une essence ou d'un jus :

- concentration et déterpénation ;
- solubilisation dans l'alcool ;
- enrobage dans un polysaccharide naturel ;
- conservation au frais, à l'obscurité, à l'abri de l'air et de l'humidité ;

- association avec des substances anti-oxygènes ;
- protection anodique active (méthode physique récente préconisée par ROUGET) ;
- addition d'agents conservateurs.

Quant à la stabilité des boissons gazeuses à l'orange ou au citron, elle est particulièrement améliorée par la pectine présente dans le jus à condition d'avoir inactivé l'estérase de la pectine par chauffage du jus. L'estérase a en effet la propriété de détacher des groupes méthyle de la pectine. Cette pectine déméthylée floconne très rapidement. D'autre part la finesse de dispersion de l'essence aromatique qui entre dans la composition de ces boissons doit être aussi grande que possible.

Nous avons essayé de faire une synthèse de tout ce qui concerne les aromatisants à base d'agrumes et l'aromatization en général, mais il reste encore un point que nous n'avons pas abordé : la législation.

## LÉGISLATION

En alimentation, les industriels ont la possibilité de se référer à l'ouvrage de R. DEHOVE : « Réglementation des produits alimentaires » ou encore à l'ouvrage de R. LECOQ et à des ouvrages ou des textes de législation européenne.

Cependant, la plupart d'entre eux se plaignent de l'imprécision de ces textes et souhaitent que « les réglementations nouvelles, en cours d'élaboration au sein du Marché Commun, soient telles qu'elles ne puissent être interprétées de façons différentes par les uns et par les autres ».

Ils demandent une normalisation des méthodes d'analyse des arômes alimentaires, comme cela a déjà été fait pour les huiles essentielles ou les jus de fruits.

Signalons qu'au sujet de l'aromatization de la margarine, l'Académie nationale de Médecine vient de prendre une décision résolument contre l'addition, en

dehors du diacétyle, « d'autres substances, même s'il s'agit de substances aromatiques naturelles ou de substances synthétiques correspondantes ».

Au point de vue pharmaceutique, la pharmacopée française ni aucune des pharmacopées européennes, hormis la danoise, ne parle d'aromatization et d'aromatizants. La pharmacopée américaine, par contre, s'en préoccupe et l'on trouve dans le Remington's Pharmaceutical Sciences, une liste « non officielle » des « flavoring extracts » ainsi que des véhicules, à côté d'une liste des « official flavoring Agents ».

Jusqu'à présent le contrôle d'un aromatisant dans un produit fini n'est pas exigé en France. Peut-être serait-il bon de mettre au point des méthodes analytiques qui permettraient de juger, tout en s'aidant des propriétés organoleptiques, du comportement de l'aromatizant au sein de la préparation.

## BIBLIOGRAPHIE

- ANGLA (B.). — Solubilisation dans l'eau des huiles essentielles et des principes aromatiques. *La France et ses parfums*, 1965, **8**, n° 45, 323 et suite.
- ANGLA (B.). — Aromatization des produits de la confiserie. *Revue CCCB*, 1966, n° 12, 18-30.
- ANONYME. — New standards proposed for fruit juices and flavours. *Food Manufacture*, 1964, **39**, n° 10, 88 et suite.
- ANONYME. — Citron processing. *Food Technol.*, Chicago, 1965, **19**, n° 8, 71 et suite.
- ANONYME. — New freeze-concentration process for fruit juices. *Food Manuf.*, 1964, **39**, n° 8, 47.

- ANONYME. — Sensory testing guide. *Food Technol.*, 1964, **18**, 25-31.
- ANONYME. — Oil of Lemon. *The perfumery and essential oil record*, 1932, n° 12, 407-409.
- ANONYME. — The use of acetates in Perfumery. *The Pharmaceutical journal and Pharmacist*, 1933, n° 4, 289.
- ANONYME. — Insect appreciation of odour. *The Perfumery and Essential oil record*, 1933, **24**, n° 4, 110.
- ANONYME. — Perfume fixative. *Alcohol News*, 1940, n° 2.
- ANONYME. — Classifying Odours. *Soap perfumery Cosmetics*, 1935, n° 4.



- ANONYME. — Enquête d'opinion : des goûts et des couleurs. *Labo Pharma*, 1958, n° 49, n° 53.
- ARCTANDER (S.). — Perfume and flavor materials of natural origin. Ed. Elisabeth N. J., 1960, U. S. A.
- ARTOZOUL (J.). — Lyophilisation et arômes. *La France et ses parfums*, 1967, 10, n° 54, 219-20.
- ARTOZOUL (J.). — Lyophilisation et arômes. *La France et ses parfums*, 1967, 10, n° 56, 397.
- BARAIL (C. L.). — Cosmetic Odor Measurement. *The American Perfumer and essential oil review*, 1952, nov., 347-349.
- BASSIRI (T.). — Odorous and Odourless. *Soap Perfumery and Cosmetics*, 1963, oct., 877-879.
- BEDOUKIAN (P. Z.). — Perfumery and Flavoring synthetics. Elsevier Company Ed. 1967.
- BLAIZOT (P.). — Essai de psycho-physiologie de l'Odorat. *Parf. Cosm. Sav.*, 1963, 6, n° 11, 448-453.
- BLAIZOT (P.). — Odours and Memory. *Soap Perfumery and Cosmetics*, 1949, n° 1, 40-42.
- BRAUDEAU (J.). — Dégustateurs de cacao. *Ann. Nutrition*, 1965, 19, A 555.
- BRUN et coll. — Jus de pommes et concentrés de jus. *Aliment. et Vie*, 1963, 51, 10-11-12, 238-255.
- CALVARANO (I.). — Contributo all'indagine analitica strumentale dell'essenza di arancio amaro. *Essenze derivati agrumari*, 1965.
- CALVARANO (I.). — Valutazione del Citral nell'essenza di limone italiana. *Essenze derivati agrumari*, 1960, n° 2, 109-122.
- CALVARANO (I.). — Contributo alla conoscenza del succo di arancio italiano. *Essenze derivati agrumari*, 1960, n° 1, 3-24.
- CHAMBON (J.) et FÉVRIER (F.). — Aromatisation des spécialités pharmaceutiques. *Bulletin technique Gattefossé S. F. P. A.*, 1960-61, n° 58, 15.
- CHAMBON (J.) et FÉVRIER (F.). — Aromatisation des spécialités pharmaceutiques. *Labo. Pharma.*, 1962, 10, n° 102, 29-32.
- CHAPARD (C.), MESNARD (P.), BERTUCAT (M.) et TRARIEUX (R.). — Application de la chromatographie en couche mince au contrôle analytique de médicaments à base d'essences terpéniques oxydées. *Toulouse pharmaceutique*, 1967, 14, n° 1.
- CHARLES (W. F.). — The Sense of Smell and the Transmission of Odour. *The perfumery and Essential oil record*, 1925, July, 230.
- CHIRIS (A.). — La banane et son parfum. *Revue CCCB*, 1967.
- CHIRIS (A.). —  $\alpha$  et  $\gamma$  pyrones dans les cellules oléifères des fruits citrus. *Revue CCCB*, 1967.
- COUVREUR (A.). — Produits aromatiques utilisés en pharmacie. Éd. Vigot Frères, Paris, 1939.
- CROCKER (E. C.) et HENDERSON (L. F.). — Analysis and classification of Odors. *Am. Perfumer and Essential Oil Review*, 1927, août, 325.
- CUENCA (J.). — Nouveau procédé de fabrication des comprimés. *France Pharmacie*, 1967, n° 3, 191-198.
- DEBELMAS (J.) et HERISSET (A.). — Essais de lyophilisation industrielle de la Camomille romaine. *Annales pharmaceutiques françaises*, 1966, 24, n° 9-10, 587-592.
- DEHOVE (R.). — Réglementation des produits alimentaires. Commerce Éditions, Paris, 1964.
- DEPLEDT (F.). — Principes généraux des méthodes d'analyse subjectives des saveurs. Méthodes subjectives et objectives d'appréciation des caractères organoleptiques des denrées alimentaires. C. N. R. S. 1966, 14, A 141.
- DEPLEDT (F.). — Interprétation des résultats d'appréciation d'arômes alimentaires. *La France et ses parfums*, 1966, 9, n° 50, 349-355.
- DE ROECK HOLTZHAUER (Y.). — Aromatisation des spécialités pharmaceutiques. *Bulletin de la Société de Pharmacie de l'Ouest*, 1963, n° 4, 79-90.
- DI GIACOMO (A.), PENNISI (L.) et RISPOLI (G.). — Studio dei componenti ossigenati dell'essenza di limone siciliana mediante l'impiego delle nuove tecniche strumentali. *Essenze derivati agrumari*, 1965, 9-21.
- DILLEMANN (G.) et PLAT. — Notions de législation pharmaceutique. Éd. Sédès, Paris, 1966.
- DITZ (E.). — Problèmes analytiques de l'industrie des arômes alimentaires. *La France et ses parfums*, 1966, 9, n° 47, 55 et suite.
- DITZ (E.) et THIÉBAUT (P. H.). — Les arômes alimentaires. *Chocolaterie et Confiserie de France*, 1967, n° 229, 20-27.
- DONATO (Sam J.). — Absorption and permeability of a Flavor in Plastic Containers as determined by Head space gas chromatography. *J. Pharm. Sciences*, 1967, 56, n° 6, 759-760.
- DUPAIGNE (P.) et SCHVOB. — Arômes de fruits. Méthodes subjectives et objectives d'appréciation des caractères organoleptiques des denrées alimentaires. C. N. R. S., 1966, 14, A 481-A 517.
- EDWARDS (J. A.). — Bitter flavours un orange peel. *Food Manuf.*, 1964, 39, n° 11, 60.
- ENEZIAN (G. M.). — La compression directe des comprimés à l'aide de la cellulose microcristalline. *Prod. et Pb. pharmaceutiques*, 1968, 23, n° 4, 185-205.
- ESTIENNE (J.). — Le miel. *La France et ses parfums*, 1964, 7, n° 41, 383.
- FAUGERAS (G.), LAVENIR (R.) et PARIS (R. R.). — Guide de Travaux pratiques d'essai des drogues végétales. Éd. Vigot, Paris, 1965.
- FENAROLI (G.). — La Macro-gas cromatografia. *Riv. Ital. Essenze*, 1964, 46, n° 9, 417-419.
- FENAROLI (G.). — Essences et dérivés de la rose dans l'aromatisation des produits alimentaires. 3<sup>e</sup> Congrès international des huiles essentielles. 1964, 57.
- FENAROLI (G.). — Sostanze aromatiche naturali. Ed. Ubrico Hoepli, Milan, 1963.
- FRIARD (R.). — L'évolution de la demande et de la production des plantes médicinales. *La France et ses parfums*, 1968, 11, n° 57, 47-50.
- GATTEFOSSÉ (H. M.). — Documentation technique.
- GATTEFOSSÉ (H. M.) et RUCKEBUSCH. — Peroxydation des terpènes des huiles essentielles. Autoformation des peroxydes de terpènes dans des essences de Citron et d'Orange. 3<sup>e</sup> Congrès international des huiles essentielles. 1964, 177-178.
- GENEL (F.). — Arômes de fruits et légumes. Méthodes subjectives et objectives d'appréciation des caractères organoleptiques des denrées alimentaires. C. N. R. S., 1966, 14.
- GIERSCHNER (K.) et BAUMANN (G.). — Aromastoffe in Früchten. Riechstoffe *Aromen Körperpflegemittel*, 1968, Feb., 18, n° 2, 37-42.
- GILDEMEISTER (E.) et HOFFMANN (Fr.). — Les huiles essentielles. Éd. J. B. Baillière et Fils, Paris, 1919.
- GODON (M.). — De la caractérisation des essences officielles par chromatographie en couche mince et sur papier. Éd. Kapp, Paris, 1963.
- GOLSE (J.). — Précis de Matière médicale. Éd. Doin, 1955.
- GOODMAN (H.). — Perception of odour. *Soap, Perfumery and Cosmetics*, 1949, 22, n° 4, 362-363.
- GOUVELLE DE PONTANEL (H.). — Aromatisation de la margarine. *Bulletin de l'Académie de Médecine*, 1967, 151, n° 21-22, 414.
- GUICHARD (C.). — Éléments de technologie pharmaceutique. Pharmacie galénique. Éd. Flammarion, Paris, 1967.
- GUILLOT (M.). — Effect of impurities on odour. *Soap Perfumery and Cosmetics*, 1948, nov. 342.
- GUILLOT (M.). — The relationship of odour and chemical constitution. *Soap, Perfumery and Cosmetics*, 1949, 22, n° 4, 381-382.
- GUILLOT (M.) et BERTON (A.). — Sur les modalités de volatilisation d'un parfum. *Recherches*, 1967, n° 16, 173.
- GUILLOT (M.). — Détection olfactive et physique des vapeurs odorantes. *Recherches*, 1962, n° 12, 30.
- GUINOT (Y.), MENORET (Y.) et GAUTHERET (R. J.). — Le problème des jus de fruits. *Rev. Alcool. Fr.*, 1964, 10, n° 3, 199-220.
- HARPER (R.), BATE SMITH (E. C.), LAND (D. G.) and GRIFFITHS (NERY S. M.). — A glossary of odour stimuli and their qualities. *P. E. O. R.*, 1968, January, 22-37.
- HEINZ and COLL. — Pear aroma. *J. Food Sciences*, 1964, 29, n° 6, 756-761.
- HOMANN. — Flavours in Pharmaceuticals. Drug and Cosmetic Industry, 1951, Feb.

- HORNSTEIN (I.) and TERANISHI (R.). — The chemistry of Flavor. Chemical and Engineering News, 1967, n° 3.
- IGOLEN (G.) et SONTAG (D.). — Essence d'orange bigarade de France. 19<sup>e</sup> Congrès de chimie industrielle 1939. Éd. Chimie et Industrie, Paris.
- JACQUÉ (L.) et KERSAINT (G.). — L'arôme à l'époque de Lavoisier. *Recherches*, 1967, déc., n° 16, 39-46.
- JAMINET (Fr.). — Auto-oxydation et antioxydants en pharmacie. Université de Liège.
- JENSEN et LESLIE. — A technique for the identification of volatile flavor components. *Chem. Abstr.*, 1964, **60**, n° 12.
- JOHNSTON. — Instrumentation appliquée à un certain nombre de matières aromatiques et donnant la saveur. *Amer. Perfumer. Cosm.*, 1963, **78**, n° 11, 24 et suite.
- KAPP (I. B.). — Artificial flavors. *P. E. O. R.* 1965, **56**, n° 10, 672-678.
- KEFFORD (J. F.). — Citrus fruits and apples for processing. *F. Pr. Quart.*, 1965, **25**, n° 3, 41-50.
- KERDILES (J.). — Essence de *Thymus vulgaris*. Thèse Faculté de Montpellier, 1967.
- KOSTER (E. P.). — Olfactomètre modifié et automatisé. *Parf. Cosm. Sav.*, 1967, **10**, n° 12, 509-13.
- KRASZNAI. — Dosage de l'acide ascorbique. *Acta Pharmaceutica Hungarica*, 1967, n° 371.
- LA FACE (F.). — Huiles essentielles d'agrumes. *La France et ses parfums*, 1960, **3**, n° 15, 45-51.
- LAFFORT (P.). — Efficacité odorante et activité thermodynamique. *La France et ses parfums*, 1966, **9**, n° 47, 75-86.
- LAUFFER (P. G.). — Odour and olfaction. *Soap. Perfumery and Cosmetics*, 1949, **22**, n° 11, 1213-1214 et 1233-1238.
- LAURENT (J.). — Les huiles essentielles et la normalisation. *La France et ses parfums*, 1967, **X**, n° 52, 59.
- LEA (C. H.). — Recherches sur les saveurs. *Ind. Alim. Agric.*, 1963, **80**, n° 12, 1229.
- LECOQ (R.). — Manuel d'analyses alimentaires et d'expertises usuelles. 1965, Éd. Vigot Frères.
- LE MAGNEN (J.). — Les bases sensorielles de l'analyse des qualités organoleptiques. Méthodes subjectives et objectives d'appréciation des caractères organoleptiques des denrées alimentaires. C. N. R. S., 1966, **14**, A 11 et suite.
- LEROUX (L.). — Les odeurs. *La Revue des Produits chimiques*, 1934, **37**, n° 5, 131-134.
- LEWINSON (A.). — Le essence dei frutti di agrumari come odori di testa. *Rivista Italiana delle Essenze, dei Profumi e delle Piante officinali*, 154.
- LONGUEVALLE. — Chromatographie de partage gaz-liquide. Application aux médicaments. Thèse. Paris, 1960.
- MAC CARTHY et col. — Gaz chromatographic identification of banana fruit volatiles. *J. Sci. Food. Agric.*, 1964, **15**, n° 10, 205.
- MAC CARTNEY (W.). — The insolved mystery of olfaction. *The American Perfumer and Essential oil. Review*, 1950, déc., 473-474.
- MATHIS (C.). — Application de la chromatographie fonctionnelle sur couche mince à l'identification des substances organiques. *Annales pharmaceutiques françaises*, 1965, **23**, n° 5, 331-334.
- MATHIS (C.). — Étude chimio-taxonomique du genre *Hypericum* L. Thèse, Strasbourg, 1963.
- MITCHELL (J. C.) et ARMITAGE (J. S.). — En dehors de la substance active d'un médicament. *Arch. Environ Health*, 1965, **11**, n° 701.
- MONCRIEFF (R. W.). — Ten years of American Research. *P. E. O. R.*, 1965, **56**, n° 9, 582-584.
- MONCRIEFF (R. W.). — Process and Pb in flavors. *Chem. Abstr.*, 1964, **61**, n° 12.
- MONCRIEFF (R. W.). — The mechanism of Odour. *Soap, Perfumery and Cosmetics*, 1963 oct. 880-881.
- MONCRIEFF (R. W.). — Odour, Odorant and Olfaction. Symposium sur l'Odorat, Cannes, 1965.
- MONCRIEFF (R. W.). — European Odeur Conference. American Perfumer and Cosmetics. 1965, **80**, may.
- MÜLLER (A.). — Sur une nouvelle théorie du phénomène olfactif. *La parfumerie moderne*, 1936, n° 4, 145-151.
- NAVELLIER (P.). — Arôme de café. *Café, cacao, thé*, 1966, **21**, n° 6, 272.
- NAVES (Y. R.). — The Aldehyde Fraction of essential oil of sweet orange. *P. E. O. R.*, 1947, Sept., 295-298.
- NICHOLLS (J. J.). — Flavour of essential oil of orange. *Palestinian P. E. O. R.*, 1947, July, 240-242.
- OGAWA (H.). — Flavor improvement. *Food Technol.*, 1965, **19**, n° 8, 72.
- PAILLARD (N.). — Analyse des produits volatils émis par les pommes. *Fruits*, 1965, **20**, n° 5, 189.
- PELLERIN (J.), GAUTIER (J. A.) et KIGER (J. G.). — Identification et dosage des colorants organiques de synthèse à usage pharmaceutique actuellement autorisés. *Annales pharmaceutiques françaises*, 1963, **21**, n° 5, 355-374.
- PEYRON (L.). — Évolution des méthodes analytiques dans l'étude et le contrôle des huiles essentielles. 3<sup>e</sup> Congrès international des huiles essentielles, 1964, 115.
- PEYRON (L.). — Composition des essences d'agrumes. 3<sup>e</sup> Congrès international des huiles essentielles, 1964, 114-117-118.
- PEYRON (L.). — La mémoire olfactive. *La France et ses parfums*, 1967, **10**, n° 55, 299.
- PEYRON (L.). — Édifices moléculaires et odeurs. *La France et ses parfums*, 1964, **7**, n° 41, 397.
- PIERON (H.). — La sensation, guide de vie. Collection d'avenir de la Science. Éd. Gallimard, 1943.
- PLANCHON (L.), BRETIN (P.) et MANCEAU (P.). — Précis de Matière médicale. Librairie Maloine, Paris, 1946.
- POCHET (G.). — Package or Packaging? *Prod. et Prob. pharmaceutiques*, 1968, **23**, n° 2.
- PROFFIT (R.). — Les arômes dans la confiserie. *La France et ses parfums*, 1966, **9**, n° 47, 39.
- PURNELL (J. H.). — Mesure des constantes physiques par chromatographie, phase gazeuse. *Endeavour*, éd. française, 1964, **23**, n° 90, 142.
- RAYMOND (G. M.). — Méthode de détermination des constituants carbonylés contenus dans les huiles essentielles de Citrus et les arômes de fruits (pomme). *Perf. Cosm. Sav.*, 1968, **11**, n° 1-2.
- REES (D. I.). — Détermination of vanillin in good products. *Chem. Industry*, 1965, **1**, n° 2, 16-17.
- REVOL (L.). — Valorisation des préparations galéniques au goût et à la vue du malade. Lyon, *Pharmaceutique*, 1966, **17**, n° 3, 83-118.
- REY (L.). — Traité de Lyophilisation. Éd. Hermann, 1960.
- RISTOLI (G.). — Di GIACOMO (A.) et TRACUZZI (M. L.). — Controllo dell'invecchiamento dell'essenza di limone mediante spettrofotometria nell'infrarosso. *Rivista Italiana Essenze. Profumi. Piante off. Aromi Saponi. Cosmetidi*, 1964, 118-122.
- ROGERS. — Essences d'agrumes. Chromatographie, phase gazeuse et I. R. *Amer. Perfumer. Cism.*, 1963, **78**, n° 11, 17-23.
- ROLLET (M.), MONGHAL (M. A.) et CUISINAUD. — Contribution à l'étude de l'eau de rose par chromatographie phase gazeuse. *Annales pharmaceutiques françaises*, 1967, **25**, n° 11, 705-716.
- ROUGET (J.). — Stabilisation des huiles essentielles aromatiques. Suppression des phénomènes de vieillissement dans le temps. *La France et ses parfums*, 1962, **5**, n° 27, 114 et suite.
- RUCKEBUSCH et GATTEFOSSE (H. M.). — Peroxydation des terpènes des huiles essentielles. Caractères généraux des huiles essentielles. 3<sup>e</sup> Congrès international des huiles essentielles, 1964, 177-178.
- RUYS (A. H.). — Matières premières pour arômes alimentaires. *La France et ses parfums*, 1966, **9**, n° 47, 31-36.
- SCHIMMEL et col. — Perception of Odour. *Soap. Perfumery and Cosmetics*, 1949, sept., 987.
- SCHWOB (R.) et DUPAIGNE (P.). — Dégustateurs d'orange en Californie. *Ann. Nutrition*, 1965, **19**, A 481.
- SCHULTZ (Th.) et col. — Volatiles from oranges. *J. Food. Sciences*, 1964, **29**, n° 6, 790-795.

- SERVIÈRE. — Nouvelles conceptions en matière de jus de fruits. *Aliment. et Vie*, 1963, **51**, n° 10-11-12, 304-312.
- SFIRAS (J.) et DEMEILLIERS (A.). — Application de la chromatographie en phase gazeuse à des recherches olfactométriques. *Recherches*, 1967, n° 16, 67.
- SHULGIN (A. T.). — The separation and identification of the components of the aromatic ether fraction of essential oils by gas-liquid chromatography. *J. Chromatog.*, 1967, **30**, n° 1, 54-61.
- SLATER (C. A.) and WATKINS (W. T.). — Citrus essential oils. *J. Sci. Food. Agric.*, 1964, **15**, n° 10, 657-664.
- SOURDILLE (A.). — Au temps des médecines parfumées. *La France et ses parfums*, 1967, **10**, n° 52, 27.
- STAHL (E.). — Thin layer chromatography. Ed. Academic Press. New York, 1965.
- STEWART (I.) et WHEATON (T. A.). — L'octopamine in citrus. Isolation and identification. *Sciences*, 1964, **18**, n° 145, 60-61.
- STONE (H.) and PANGBORN (R. M.). — Techniques for sensory evaluation of food odors. *Advances in Food Research*, 1965, **14**, 1-32.
- TEISSEIRE (P.) et col. — Synthèses modernes de quelques terpénoïdes et de leurs dérivés. *La France et ses parfums*, 1965, **8**, n° 44, 233-250.
- TEISSEIRE (P.). — Application de la chromatographie en phase gazeuse à la parfumerie. *Recherches*, 1962, n° 12, 54.
- TERANISHI (R.) and HORNSTEIN (I.). — The chemistry of flavor. *Chemical and Engineering News*, 1967, n° 3.
- THIERS (H.) et MOULIN (G.). — Les problèmes que suscitent les odeurs et leur perception. 90<sup>e</sup> Congrès des Sociétés savantes, Nice, 1965, **2**.
- THOMSSON (E. G.) and DONER (M. H.). — Our amazing sense of smell. *American Perfumer and Essential Oil Review*, 1941, sept., 33.
- TILGNER. — How to improve sensory quality scoring procedures by objective weighting. *Food manufacture*, 1964, 39, n° 8, 34-39-46.
- TRAINEL (M.). — Odeur, saveur, flaveur d'un médicament. *Prod. et Prob. pharmaceutiques*, 1967, **22**, n° 9, 677-688.
- TRANCHANT (J.) et col. — Manuel pratique de chromatographie en phase gazeuse. Éd. Masson, 1964.
- VANDERCOOK (C. E.) et STEPHENSON (R. G.). — Composizione del succo di limone. *Essenze derivati agrumari*, 1966, 256-266.
- VERAIN (A.), JEANNIN (C.) et ROCHAT (J.). — Du miel en tant qu'excipient pharmaceutique. Critères de qualité. *Journal de Pharmacie de Belgique*, 1967, **49**, n° 11-12, 403-413.
- VERDERIO (E.) et VENTURINI (D.). — Chromatografia su strato sottile dell'essenza di mandarino. *Bolletino Chimico Farmaceutico*, 1965, **104**, n° 3, 170-176.
- VERNIN (G.). — Applications récentes de la C. P. L. V. à l'étude de la composition des huiles essentielles. *La France et ses parfums*, 1967, **10**, n° 55, 281-293.
- VERNIN (G.). — Applications de la spectroscopie. I. R. à l'étude des huiles essentielles et de leurs constituants terpéniques et aromatiques. *La France et ses parfums*, 1967, **10**, n° 52, 35-49.
- VIGNERON (M.). — Auto-oxydation Anti-oxydants. Ed. Soc. d'éd. Pharm. et Scient.
- VINCENT (D.) et SCHWALL (H.). — Étude analytique de quelques essences végétales par la réaction à l'hydroxylamine. *Cl<sub>3</sub>Fe. Toulouse, Pharmaceutique*, 1959, **6**, n° 2, 36-37-38.
- VLAŠSAK (W. H.). — Identification d'acides aminés par chromatographie en couche mince. *Journal de Pharmacie de Belgique*, 1967, **22**, n° 11-12, 425 et suite.
- VOCK (M. H.). — Flavour legislation in european countries. *P. E. O. R.*, 1965, **56**, n° 12, 805-809.
- VODOZ (Ch. A.). — Some aspects of the toxicity of flavouring substances. *P. E. O. R.*, 1966, Déc. 787-793.
- WESLEY (F.). — Aromatisation des antitussifs. *Pharmaceutist.*, 1965, **11**, n° 2, 8-10.
- WILLIAM. — Recherche sur les arômes. Arôme de fraise fraîche. *Helv. Ch. Act.* 1966, **49**, n° 9-10, 65-67.
- WOLFORD (R. W.) and ATTAWAY (J. A.). — Analysis of recovered natural orange flavor enhancement materials using gas chromatography. *J. Agr. Food. Chem.*, 1967, **15**, n° 3, 369-377.
- WOOD (L.). — Personal characteristic odours. *Soap, Perfumery, Cosmetics trade review*, 1934, sept., 26-27.
- WRIGHT (R. H.). — Odour and molecular vibration. *Nature*, 1966, **209**, n° 5023, 571, 573.
- WUCHERPFENNIG (K.). — Étude de la production américaine des jus de fruits. *Flüssiges Obst.*, 1964, **31**, n° 12, 595-601.
- WULLEN (H.) et THIELEMANS (H.). — Analyse des préparations pharmaceutiques à base de diphésatine et de phénolphtaléine après séparation chromatographique. *Journal de Pharmacie de Belgique*, 1967, **49**, n° 11-12-22, 431.
- YOKOYAMA (F.), LEVI (L.), LAUGHTON (P. M.) and STANLEY (W. L.). — Détermination of citral in citrus extracts and citrus oils by conventional and modern chemical methods of analysis. *J. of the A. O. A. C.*, 1961, **44**, n° 3, 535-541.
- YOKOYAMA (F.). — Collaborative studies on the characterization of lemon juice. *J. of Assoc. of off. Agric. Chemists*, 1965, **48**, n° 3, 530.

