

**UN TANNIN ISOLE D'UN EXTRAIT ANTIBACTERIEN
DE *KLAINEDOXA GABONENSIS* PIERRE EX ENGL.⁺**

A. EKOUYA^{*}, G.B. ITOUA, A. OUABONZI, J.M. OUAMBA

Unité de Chimie du Végétal et de la Vie (UC2V)

Faculté des Sciences, Université Marien NGOUABI, B.P 69, BRAZZAVILLE,

Congo

(Reçu le 18/08/2005 – Accepté le 22/10/2005)

Abstract: *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. is one of the main plants used by congolese traditional therapists for the treatment of many diseases, mainly for a disease locally known as "mwandza" dermatites, of which modern physicians treatments are unsuccessful yet. A methanolic extract biological analysis revealed antibacterial activity. The chemical analysis of the extract yielded a tannin, the methyl gallate. We have established its structure on the basis of spectral analyses.

Key-words: *Klainedoxa gabonensis*, traditional therapists, "mwandza" dermatites, chemical analysis, spectral analyses, tannin, methyl gallate.

INTRODUCTION

Klainedoxa gabonensis Pierre ex Engl. appartient à la famille des Irvingiaceae^[1].

La médecine traditionnelle l'utilise dans le traitement de nombreuses maladies^[2-5] telles la hernie, les douleurs intercostales et lombaires, les maladies vénériennes, la stérilité, les affections buccales, la variole, la varicelle, les diarrhées etc., et surtout, au Congo, les dermatoses de type

+ A la mémoire de notre ami, le Professeur ONANGA Maurice, co-initiateur de ce travail, arraché brutalement à notre affection le 18 Mars 1998.

* Corresponding author : Fax (242) 810141; E.mail: alekouya@yahoo.fr.

"mwandza" dont les tentatives de traitement au niveau de la médecine moderne se sont jusqu'ici soldées plutôt par des échecs.

L'analyse biologique d'un extrait méthanolique de la poudre d'écorces de cette plante ayant montré une intéressante activité antibactérienne, nous avons entrepris l'analyse chimique dudit extrait et avons isolé, pour la première fois, un tannin, le gallate de méthyle.

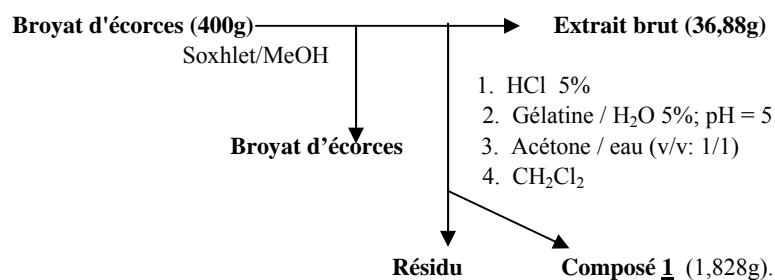
MATERIEL ET METHODES

a) Matériel végétal : Les écorces de tronc de *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. ont été récoltées à Bokouélé, Département de la Cuvette, République du Congo, à 450 km au nord de BRAZZAVILLE. La plante est nommée localement "Yandza". Elle a été identifiée par des botanistes de la Faculté des Sciences de l'Université Marien NGOUABI et ceux du Centre d'Etudes et de Recherche sur les Ressources Végétales (C.E.R.V.E.) et un échantillon est déposé à l'Herbier National sis au C.E.R.V.E. à BRAZZAVILLE.

b) Extraction et isolement

400g de broyat d'écorces de *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. sont extraits en continu dans un Soxhlet avec le méthanol comme solvant. On obtient 36,88g (9,22% de rendement) d'extrait brut.

Les 36,88g d'extrait brut sont traités avec HCl 5% et filtrés. Le résidu est traité avec de la gélatine aqueuse à 5% (pH 5). Après filtration, le résidu final est dissous dans un mélange acétone/eau (v/v : 1/1) et extrait au chlorure de méthylène. On obtient alors 1,828g (0,457% de rendement par rapport au broyat ou 4,96% par rapport à l'extrait brut) d'un composé 1. On a en définitive le diagramme d'isolement suivant :



RESULTATS

Un composé pur, **1**, a été isolé selon le protocole décrit précédemment.

Identification du composé **1**:

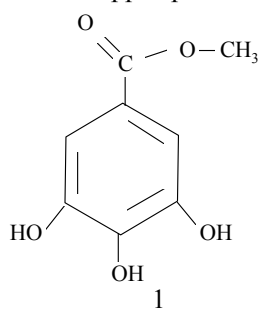
- Microanalyse Eléments :	C	H	O
Calculé % pour C ₈ H ₈ O ₅ :	52,17	4,35	43,48
Mesuré % :	53,36	4,73	41,38

- **SM** (spectrométrie de masse): m/e = 184 (M)⁺, m/e = 153, m/e = 125.

- **RMN ¹H** (résonance magnétique nucléaire du proton) : (CD₃ OD, TMS), δppm: 3,4 (3H, s, HO-Ph); 3,7(3H, s, -CO₂CH₃); 6,8 (2H, s, H - Ph).

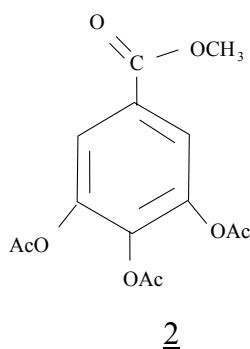
- **RMN ¹³C** (résonance magnétique nucléaire du carbone 13) : (CD₃OD, TMS), δppm: 52,184 (1C, CH₃ - O); 110,025 (2C, CH); 121,225 (1C, C - CO₂ -); 139,288 (1C, C - OH para); 145,907 (2C, C- OH meta); 168,841 (1C, C = O).

Tous ces résultats des analyses physico-chimiques nous ont permis de conclure avec certitude que le composé 1 isolé du *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. est le gallate de méthyle, un tannin simple dont la formule développée plane est donnée ci-dessous :



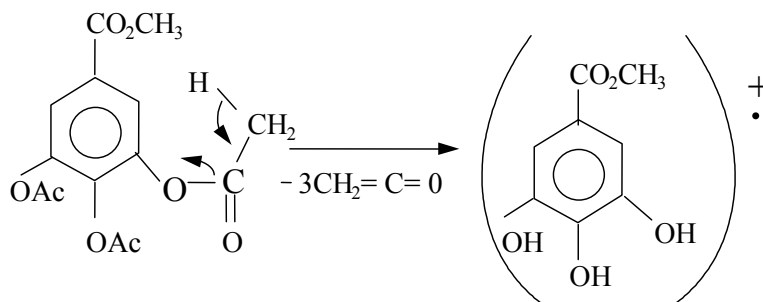
DISCUSSION ET CONCLUSION

Pour des besoins de confirmation de la structure, le composé 1 a été transformé en dérivé triacétylé 2 (CH₃-CO- = Ac) :



- **SM:** le spectre du composé **1** est caractérisé par le pic moléculaire pour $m/e=184$.

La triacétylation du composé lève toute ambiguïté en donnant un spectre de masse caractérisé entre autres par les deux pics suivants: $m/e=310$ correspondant au pic moléculaire du composé triacétylé et $m/e=184$ correspondant à celui du composé triacétylé diminué de 3 molécules de cétène ($\text{CH}_2 = \text{C} = \text{O}$) conformément à la fragmentation classique des acétates de benzyle et de phényle^[6]. On obtient en définitive le composé **1** ou le gallate de méthyle.



- **RMN ¹H:** Le spectre RMN ¹H du composé **1** présente trois signaux caractéristiques dont celui à 3,4 ppm correspondant aux trois hydrogènes phénoliques (HO-Ph), tandis que le spectre du composé triacétylé est caractérisé par la disparition dudit signal et l'apparition d'un nouveau signal (singulet) à 2,2 ppm correspondant aux 3 méthyles CH₃-CO₂-.

- **RMN ¹³C:** Le spectre RMN ¹³C a permis de fixer de manière nette les trois carbones phénoliques dont 2 C-OH en méta et 1 C-OH en para de la fonction ester.

- Un spectre de ¹³C avec inversion des signaux des carbones non couplés avec des protons a permis de situer sans équivoque les 3

carbones phénoliques et le carbone du sommet portant la fonction ester, ce qui a permis en définitive d'établir, sans ambiguïté, la structure du gallate de méthyle isolé de *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl.

Le composé isolé **1**, le gallate de méthyle (ester méthylique de l'acide gallique) a été préparé pour la première fois par W. WILL^[7] en 1888 par estérification de l'acide gallique.

Ayant isolé d'un extrait de la poudre d'écorces de *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. le gallate de méthyle, un tannin simple dont l'hydrolyse conduit à l'acide gallique, squelette ou aglycone de base des tannins en général, nous avons estimé utile de vérifier si des gallates ont été auparavant isolés de cette plante ou d'autres plantes.

Nous avons recensé plusieurs études antérieures relatives au gallate de méthyle. On peut signaler que ce composé a été trouvé en 1905 dans les fruits de *Caesalpinia brevifolia*^[8]. Une activité bactéricide de ce composé a été signalée en 1931^[9]. Il a été par la suite isolé des feuilles de *Koelerenteria paniculata*^[10].

La bibliographie plus récente nous a montré plusieurs travaux sur les plantes à gallates dont quelques-uns sont cités ci-après. En 1984, Namwar et al. ont extrait des feuilles du *Tamarix Nlotica* des constituants polyphénoliques dont le digalloglucose^[11]. Tanaka et al. ont isolé et caractérisé six gallates de méthyle et de glucosyle à partir de *Sanguisorba officinalis* L^[12]. Nonaka et al. ont obtenu du thé vert, une nouvelle classe de gallates, des flavan-3 ol qu'ils ont nommés "Theasinensins A et B" et un autre composé, le gallate de proanthocyanidine^[13]. En 2000, Kawase et al. ont isolé du thé frais le (-)-gallate d'épigallocatechine-3 (3"-O-méthyle) et les résultats préliminaires d'activité biologique ont montré qu'ils possèdent une activité anti-oxydante^[14].

De cette revue bibliographique, il ressort qu'aucun autre scientifique n'a isolé de gallates à partir du *Klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. et

il n'existe par ailleurs aucune donnée relative à la pharmacopée et à la chimie de cette plante.

Nous ajoutons ainsi, par le résultat de nos travaux, le *klainedoxa gabonensis* Pierre ex Engl. sur la liste des plantes à gallates, en définitive, sur la liste des plantes à tannins.

REMERCIEMENTS

Nous exprimons nos sincères remerciements à Madame Françoise Khuong-Huu, (Directeur de Recherche, Institut de Chimie des Substances Naturelles, ICSN/CNRS, Gif-sur-Yvette, France) pour l'enregistrement des spectres.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] - GILBERT G., MIMOSACEA, IRVINGIACEA, Flore du Congo Belge, du Rwanda et du Burundi, Bruxelles, (1958), vol.7.
- [2] - ADJANOHOON E.J., AHYI A.M.R., AKE, ASSI et al., Médecine traditionnelle et pharmacopée : contribution aux études ethnobotaniques et floristiques en République Populaire du Congo : Rapport présenté à l'ACCT, Paris, (1988), 605p.
- [3] - BOUQUET A., Féticheurs et médecines traditionnelles du Congo, Mémoire ORSTOM, n°36, Brazzaville, (1969), 282 p.
- [4] - BOUQUET A., Plantes médicinales du Congo Brazzaville, Travaux et documents ORSTOM, n°13, Paris, (1972), 112 p.
- [5] - ONANGA M., EKOUYA A., OUABONZI A., ITOUA G. B., Ethnobotanical, pharmacological and chemical studies of plants used in the treatment of 'Mwandza' dermatites, *Fitoterapia*, (1999), 70, 579-585.
- [6] - SILVERSTEIN R.M., BASSLER G.C., MORRIL T.C., Spectrometric Identification of Organic compounds, *J. Wiley and Sons, Inc.*, New-York, London, Sydney, Toronto, 3rd edition, (1974), 30.
- [7] - WILL W., *Chem. Ber.*, (1888), 21, 2020.
- [8] - NIERESTEIN M., *Chem. Zentr.*, *II*, (1905), 527.
- [9] - SABALITSCHKA TH., *Arch. Pharmaz*, (1931), 269.
- [10] - Dictionary of organic compounds, revised edition (Cf article sur Gallic acid et références citées), (1965), 1494.
- [11] - NAMWAR M.A.M., SOULEMAN A.M.A., BUDDRUS, BAUER H., SINSCHIED M., *Tetrahedron Lett.*, (1984), 25, 49-52.
- [12] - TANAKA T., NONAKA GEN-ICHIRO, NISHIOKA I., *Chem. Pharm. Bull.*, (1984), 32, 117-121.

- [13] - NONAKA GEN-ICHIRO, KAWAHARA O., NISHIOKA I., *Chem. Pharm. Bull.*, (1983), 31, 3900- 3914.
- [14] - KAWASE M., WARY R., SHIAMI T., SALJO R., YAYI K., *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, (2000), 64, 2218-2220.