

**ETUDE DE LA VARIATION AU COURS DU SECHAGE  
DE LA TENEUR ET DE LA COMPOSITION CHIMIQUE  
DES HUILES ESSENTIELLES D'*EUCALYPTUS CITRIODORA*  
ACCLIMATE EN COTE D'IVOIRE :  
INTERCONVERSION POSSIBLE ENTRE COMPOSES  
HYDROGENES ET OXYGENES**

**Z. F. TONZIBO\*, Y. L. BONZI-COULIBALY\*\*, J. C. CHALCHAT\*\*\*,  
Y. T. N'GUESSAN\* et F. SIB\*\***

*\*Laboratoire de Chimie Organique Structurale, UFR des Sciences des Structures, de la Matière et de la Technologie, Université de Cocody ; 22 B.P. 582 Abidjan 22 -Côte d'Ivoire.*

*\*\*Laboratoire de Chimie Organique: Structure et Réactivité, Faculté des Sciences et Techniques, Université de Ouagadougou 03 BP 7021 Ouagadougou 03, Burkina Faso.*

*\*\*\*Laboratoire de Chimie des Huiles Essentielles, Université Blaise Pascal de Clermont-Ferrand, Campus des Céseaux, 63177 Aubière Cedex, France*

(Reçu le 25/07/1999 - accepté le 24/03/2000)

---

**Summary :** The aim of this work is to observe the evolution of amount and the variation of the chemical composition of the essential oil of *Eucalyptus citriodora* of Ivory Coast during a dry.

The extraction of the species has been made on a Clevenger type instrument

We notice an increase of the yield fluctuating from 300 g of products.

The analysis on G.C/M S shows a decrease of hydrogenic constituents whereas that of oxygenic constituents increases in critical way: interconversion between Citronellal and Isopulegol during storage is noted.

**Key words :** *Eucalyptus citriodora*, Myrtaceae, Essential oil, interconversion, citronellal, isopulegol, drying effect.

---

## I - INTRODUCTION

L'utilisation des plantes en médecine traditionnelle en Afrique pose le problème de leur conservation, d'où l'intérêt qu'il y aurait à étudier le comportement de ces plantes lors de leur séchage progressif. S'agissant du présent travail, nous allons nous intéresser à l'étude des Huiles Essentielles (H.E.) extraites des feuilles d'*E. citriodora*.

Dans la littérature, de nombreux travaux ont été effectués afin d'étudier les effets du séchage sur la teneur et la composition chimique des H.E.

Guenterl<sup>[1]</sup> signale que les matériaux végétaux frais perdent pendant le séchage, en plus de l'eau, une partie des composés volatils. D'autre part, la perte d'eau causée par l'évaporation entraîne des réactions chimiques en particulier des oxydations et l'apparition de résines.

Abdellatif Djerrari<sup>[2]</sup> avance que l'augmentation de la teneur des composés oxygénés intervenant au cours du séchage ne semble pas liée à la présence de l'oxygène de l'air.

Suite à un stockage en vrac des feuilles de Thym, Tucakov<sup>[3]</sup> note une perte en H.E. de 15 % après 3 mois de stockage, pouvant aller jusqu'à 80 % au bout de 9 ans

Ogzewala et Wills<sup>[4]</sup> étudiant l'effet du stockage dans le cas de la cardamome et du cumin ont remarqué une variation de la teneur, au bout d'un an, de quelques traces à 5%.

Selon Richard<sup>[5]</sup> la qualité des essences est liée d'une part, à l'état de fraîcheur du produit initial, d'autre part à la rapidité d'évaporation des composés les plus volatils.

Dans un travail précédent<sup>[6]</sup>, nous avons constaté que la perte en H.E. n'est pas systématique au cours du séchage des feuilles d'*Ocimum gratissimum* ; on observe même qu'une augmentation importante d'huile essentielle intervient après une quinzaine de jours.

L'*E. citriodora* est une espèce étrangère à la flore ivoirienne, qui à notre connaissance n'a pas encore été étudiée, d'où notre contribution à la maîtrise de quelques facteurs qui pourraient modifier son H.E.

L'objet du présent travail consiste à étudier le comportement pendant les premières semaines de séchage des feuilles d'*E. citriodora*, espèce végétale très prisée dans l'industrie pharmaceutique et dans la parfumerie, en vue de mieux comprendre les variations de la teneur et de la composition chimique de son essence dont le citronellal, est le constituant majeur<sup>(7,8,9)</sup>.

## II - PARTIE EXPERIMENTALE

Les feuilles d'*E. citriodora*, récoltées au cours d'une campagne de quatre mois, dans la station d'Anguédédou près d'Abidjan, dans le sud de la Côte d'Ivoire, ont été divisées en 5 lots de 300 g chacun, et mises à sécher à l'abri du soleil.

Les H.E. sont extraites par hydrodistillation d'un des lots pendant 2 heures, à l'aide d'un appareil de type Clevenger, suivant un intervalle de cinq jours. Les rendements sont calculés par rapport à la masse des feuilles fraîches.

L'analyse chimique des H.E. est faite à l'aide d'un chromatographe de type Delsi 121C équipé d'une colonne CPWAX 52 CB de 25 m de long et de 0.25 mm de diamètre. La température du four a été programmée à 50°C pendant 5 min, suivie d'une augmentation de 2°C/min jusqu'à 220°C ; les températures de l'injecteur et du détecteur sont maintenues respectivement à 240°C et 225°C, le gaz porteur utilisé est l'azote.

Les constituants ont été identifiés sur la base de la comparaison de leurs spectres de masse avec ceux des substances standards décrits dans la littérature <sup>(10,11)</sup>.

Les spectres de masse ont été enregistrés par CG/SM, dans les mêmes conditions de températures que précédemment, à l'aide d'un chromatographe Sigma 300 équipé d'une colonne CPWAX 51 de 50 m de long et de 0,3 mm de diamètre, le spectromètre de masse utilisé, est un appareil de type HP 5970 300.

### III - RESULTATS ET DISCUSSION

#### - Variation de la teneur

Au bout de 15 jours de séchage, une amélioration très importante du rendement, de 25 % à plus de 100 % est notée (Figure 1) ; il faut signaler qu'une telle augmentation, à notre connaissance, n'a pas encore été signalée dans la littérature. Cependant, les travaux de certains auteurs [12,13,14,15] sur des espèces d'Eucalyptus, mentionnent une fluctuation de l'ordre de 10 à 50 %, résultats qui corroborent les nôtres.

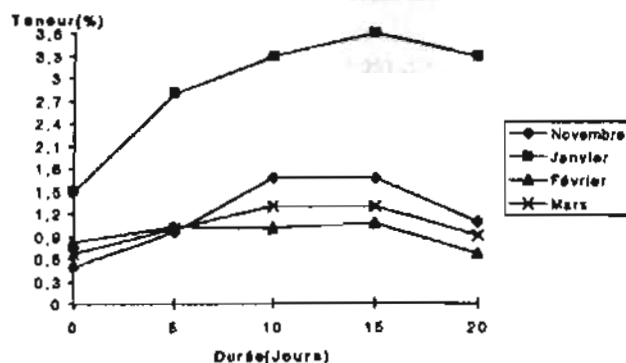


Figure 1 : Evolution de la teneur des H.E. d'*Eucalyptus citriodora* au cours du séchage

L'augmentation du volume d'H.E. constatée pendant les 15 premiers jours pourrait être due à la fragilisation, lors du séchage, des pores qui les renferment.

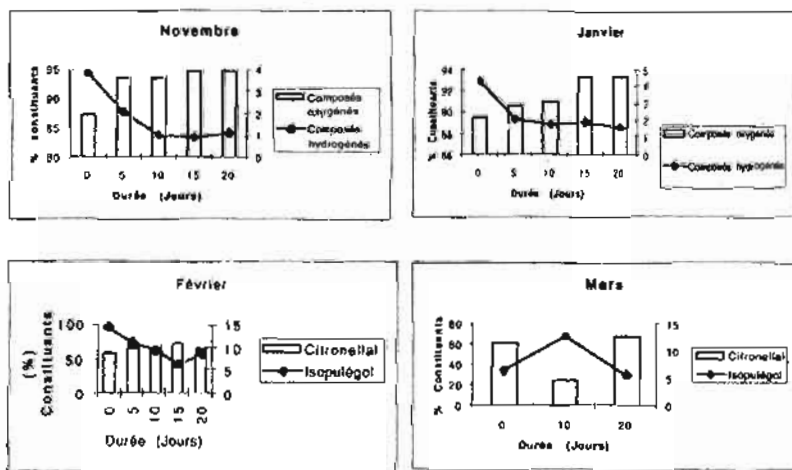
Après quinze jours correspondant au temps de réaction de la feuille à la déshydratation, nous constatons une baisse du volume d'H.E.

Ce phénomène semble aussi être lié à une biosynthèse active qui surviendrait de sorte à adapter la feuille à son état de flétrissement, afin d'éviter une brusque diminution des essences, comme l'a signalé Zrira et al [12] dans le cas d'*E. camaldulensis* du Maroc.

La plus grande augmentation du rendement est observée avec la cueillette de janvier. Ceci avait été observé dans le cas de nos travaux sur *O. Gratissimum*[6]

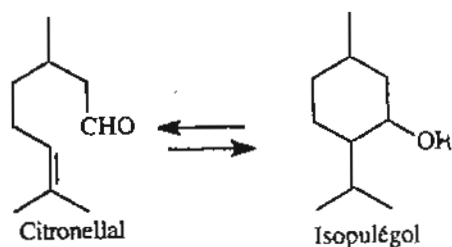
### - Variation de la Composition Chimique

L'analyse des pourcentages des différents composés de l' H.E. au cours du séchage des feuilles, consignés dans le Tableau de comparaison, permet de noter une diminution quasi générale des constituants hydrogénés, au profit de certains monoterpènes oxygénés (citronellal, isopulégol, citronellol) à l'exception du  $\beta$ -caryophyllène qui est une molécule sesquiterpénique hydrogénée. S'agissant des composés oxygénés, il faut noter le comportement particulier du 1,8-cinéole dont on observe une nette diminution des proportions en novembre (9,5-3,8 %), en janvier (1,64-0,34 %) et mars (1,4-0,51 %). Après 20 jours de séchage, on constate cependant une légère augmentation de pourcentage pour le mois de février (0,3-1,2 %). Le linalol par contre reste invariable au cours du séchage, à l'exception du mois de mars ; où une importante augmentation intervient passant de 6,57 à 12,67 % au bout de 10 jours. La Figure 2 illustre ces variations avec une baisse souvent remarquable des composés oxygénés notamment en mars, il faut cependant observer qu'une nette augmentation intervient après 20 jours de séchage, ce qui pourrait vraisemblablement s'expliquer par la transformation de certains composés en d'autres.



**Figure 2 : Evolution des pourcentages des constituants oxygénés et hydrogénés**

Ainsi, l'analyse de l'évolution des teneurs en citronnellal et en isopulégol dans les H.E. d'*E. citriodora*, comme le montre la figure 3, est marquée pendant toute la campagne de cueillette par l'évolution en sens inverse de leurs proportions, ce qui indique une interconversion citronnellal/isopulégol au cours du séchage.



En effet, comme le signalent certains auteurs [16,17], on peut par synthèse obtenir le menthol à partir du citronnellal en passant par les isomères isopulégoliques (isopulégol, néo-isopulégol, néoiso-isopulégol et iso-isopulégol), avec comme composé majoritaire l'isopulégol.

Il apparaît donc que l'interconversion citronnellal/isopulégol est fortement probable. Ceci est illustré par les résultats concernant l'évolution de ces composés en fonction du temps de séchage (Figure 3).

Ainsi, en novembre en dehors du cinquième jour, on observe une augmentation progressive des proportions en isopulégol pendant que celles du citronnellal baissent. Pour les mois de janvier, on observe une fluctuation en sens opposé des pourcentages de la paire moléculaire est notée et ceci en dents de scie. Quant aux mois de février et mars, on note également la même évolution, mais plus régulière.

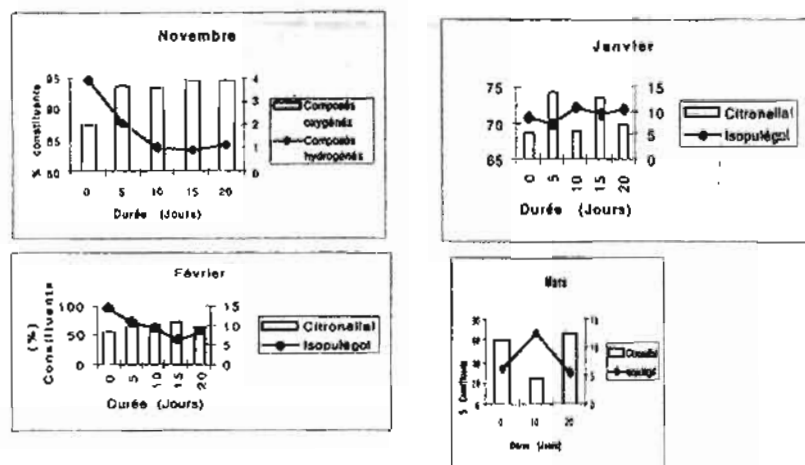
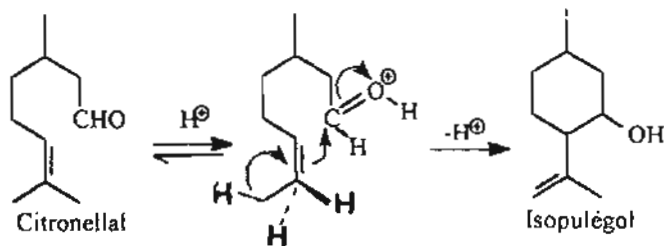


Figure 3 : Evolution des pourcentages de citronellal et d'isopulégol dans les H.E. d'*Eucalyptus citriodora* au cours du séchage

Nous remarquons que les H.E. riches en citronellal, signalées dans la littérature<sup>[18,19]</sup>, mentionnent la présence de l'isopulégol, nous pensons que cette dernière molécule résulte de l'électrocyclisation du citronellal, selon le mécanisme réactionnel que nous proposons ci-dessous.



Des études complémentaires prenant en compte l'activité de certaines enzymes dans les réactions d'isomérisation (cycle-chaîne) ainsi que l'acidité de l'eau de distillation permettront de mieux comprendre cette transformation.

		Durée de séchage (jours)				
		0	5	10	15	20
Novembre	$\alpha$ -pinène	0,85	0,4	0,2	0,2	0,2
	$\beta$ -pinène	0,8	0,4	0,2	0,2	0,2
	myrcène	0,96	0,5	0,26	0,2	0,26
	limonène	1,3	0,8	0,4	0,37	0,4
	1,8-cinéole	9,5	5,8	2,9	2,9	3,8
	citronellal	63,6	67,6	72,6	72,1	70,4
	linalol	0,25	0,17	0,15	0,1	0,1
	isopulégol	7,5	10,3	6,8	8,1	9,3
	$\beta$ -caryophyllène	0,57	1,1	2,1	1,5	1,1
	citronelol	2,1	4,17	7,3	7,6	6,6
	Composés Hydrogénés	3,91	2,1	1,06	0,97	1,16
Composés oxygénés	87,44	93,7	93,55	94,87	94,85	
Janvier	$\alpha$ -pinène	1,15	0,37	0,32	0,35	0,27
	$\beta$ -pinène	0,81	0,2	0,17	0,19	0,14
	myrcène	0,06	0,18	0,22	0,2	0,21
	limonène	0,78	0,3	0,3	0,31	0,22
	1,8-cinéole	1,61	0,43	0,46	0,49	0,34
	$\gamma$ -terpinène	0,63	0,47	0,28	0,39	0,3
	p-cymène	0,54	0,28	0,2	0,22	0,18
	terpinolène	0,38	0,36	0,37	0,33	0,33
	citronellal	68,9	74,25	69,1	73,67	69,96
	linalol	4,01	3,27	4,62	3,91	4,2
	isopulégol	8,97	7,46	10,86	9,49	10,42
	$\beta$ -caryophyllène	0,72	1,57	2,33	1,25	1,57
	citronelol	5,31	4,44	5,29	4,85	7,56
	globulol	0,11	0,13	0,09	0,06	0,06
Composés Hydrogénés	4,35	2,16	1,86	1,99	1,65	
Composés oxygénés	89,5	90,74	91,08	93,33	93,3	

Tableau de Comparaison des pourcentages des différents constituants de l'H.E. d'*Eucalyptus citriodora*



		Durée de séchage				
		0	5	10	15	20
Février	$\alpha$ -pinène	0,5	0,8	1	0,4	0,3
	$\beta$ -pinène	1,2	0,9	1	1	0,7
	myrcène	0,3	0,2	0,2	0,2	0,2
	limonène	0,2	0,5	0,3	0,3	0,4
	1,8-cinéole	0,3	1	0,5	0,7	1,2
	$\gamma$ -terpinène	0,4	0,4	0,3	0,2	0,3
	p-cymène	0,3	0,2	0,2	0,2	0,3
	terpinolène	0,08	0,3	0,1	0,2	0
	citronellal	58,2	64,9	69,3	75	64,9
	linalol	5,6	4,6	4	3	3,9
	isopulégol	14,5	11,2	9,7	6,66,6	8,7
	$\beta$ -caryophyllène	0,9	0,8	0,7	0,5	0,5
	citronellol	10,8	10	8,5	6,8	12,6
	Composés Hydrogénés	3	3,3	3,4	2,3	2,2
	Composés oxygénés	89,6	92,2	92,9	92,8	92,3
Mars	$\alpha$ -pinène	1		1,01		0,42
	$\beta$ -pinène	3,68		1,08		1
	myrcène	0,08		0,11		0,11
	limonène	1,26		0,75		0,32
	1,8-cinéole	1,4		1,32		0,51
	$\gamma$ -terpinolène	0,32		0,89		0,25
	p-cymène	0,95		0,62		0,23
	citronellal	61	-	25,46	-	67,92
	linalol	6,57		12,67		5,66
	isopulégol	13,96	-	30,14	-	13,81
	$\beta$ -caryophyllène	0,23		7,3		0,92
	citronellol	1,74	-	9,28	-	5,62
	Composés Hydrogénés	7,48	-	4,65	-	2,45
	Composés oxygénés	85,38	-	80,03		93,52

*Tableau de Comparaison des pourcentages des constituants d'Eucalyptus citriodora (suite)*

#### **IV - CONCLUSION**

Ce travail sur l'étude du comportement des H.E. extraite des feuilles d'*E. citriodora* soumis à l'effet du séchage, permet sur une courte durée, d'obtenir une amélioration significative du rendement en H.E.. Ce phénomène est indépendant de la période de cueillette.

Une variation de la composition chimique, marquée par un accroissement sélectif de la proportion de certains composés oxygénés, au détriment des monoterpènes hydrogénés, est constatée ; des investigations se poursuivent pour mieux comprendre le phénomène.

De même, une évolution en sens inverse de la paire citronellal/iso-pulégol pourrait faire de l'aldéhyde, le précurseur de l'alcool monoterpénique dans les H.E riches en citronellal. Un mécanisme pour cette réaction de cyclisation est proposé.

#### **REMERCIEMENTS**

Nous remercions les Responsables du Centre Technique Forestier Tropical du soutien matériel dont nous avons bénéficié au cours des récoltes à la station d'Anguédédou.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] - GUENTER E. *The essential oils* (1965), vol 1, D. Nostrand company Inc., N.y.; p 104-106
- [2] - ABDELATIF DJERRARI ; Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Techniques de Languedoc, 1986
- [3]-TUCAKOV J. *La France et ses parfums* (1964), 7 (40), p 277-283
- [4] - OGZEWALLA C. D. and WILLS M., *Volatil oil in cardo mon seed the Okla Acad of SCI* (1962), 43; p 57-60
- [5] - RICHARD H. *Arôme et flaveur des espèces et aromates*. Symposium international des arômes alimentaires, 22 Avril 1975 Paris
- [6] Z. F. TONZIBO Mémoire de DEA, Université Nationale de Côte d'Ivoire, (1994)
- Résultats communiqués lors des premières journées annuelles de la SOACHIM, Abidjan, 31 juillet au 5 août 1995
- [7] Les Cahiers de l'Aromathérapie Records Edition Jakin ; (Sept. 1995)
- [8] M. HMAMOUCI, A. TANTAOUI-ELARAKI, N ES-SAFI et A. AGOUMI, *Plantes Médicinales et phytothérapie* (1990) ; Tome XXIV, n°4, p 278-289.
- [9] M. HMAMOUCI ; M. BENDALI ; M. ZOUHDI ; A. AGOUMI et J.PEL-LECUER ; Rev. Med. pharm. afric.(1992) vol 6, n°2, p 109-117
- [10] R.P. ADAMS, *Identification of essential oils by ion trap mass spectroscopy* ; Academic Pres, Inc ; New York (1989)
- [11] A. A. SWIGAR AND R.M. SILVERSTEIN, *Monoterpenes* Aldrich chemical company, Inc (1981)

- [12] SAADIA ZRIRA, BACHIR BENJILALI & GÉRARD LAMATY, *Actes Inst. Agron. Vet. Maroc* (1995), Vol.15, (4), p 27-35
- [13] PENFOLD A. R., MORISSON F. R. et MCKERNS H. H. G.; *Res. Ess. oils Aust* (1948). F1, 1, p 8-11
- [14] SING A., SING S. R., DUVE R. N. VITHALBHA C. L. DRYSDALE P., ARGIC J. (1977), 39, p 33-38,
- [15] BOELENS M. H., *Perfumer et Flavorist* (1985), 9(8), p 1-13,
- [16] MAURUS MARTY, HELEN STOECKLI-EVANS and REINHARD NEIER *TETRAHEDRON* (1996), vol 52, N°13, p 4645-4658
- [17] P. J. TEISSIÈRE, *Chimie des Substances odorantes*, (1991), Tec et Doc Lavoisier ; 11, rue Lavoisier- E75 384 Paris Cedex 08 456
- [18] ABERA ASEFA and ERMIAS DAGE ; *Bull. Chem. Soc. Ethiop* (1997), 11(1), p47-50
- [19] LASTRA H. A. and RODRIGUEZ F.; *Rev. Cubana Farm* (1981), 15(2), p102-105.