



République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche
Scientifique



Université Blida-1-

Faculté Des Sciences De la Nature et De La Vie

Département de Biologie des Populations des Organismes

Mémoire de fin d'études en vue de l'obtention du diplôme de Master

En Biologie

Option : Biodiversité et Physiologie Végétale

Thème :

Caractérisation et comparaison de la
composition chimique de l'huile essentielle de
l'origan (*Origanum floribondum Munby*) issu
de deux sites différents.

Présenté par :

KAMEL Ahlem

BELARBIA Nour Elhouda

Date de soutenance : 28/09/2020

Devant les membres du jury :

- | | | | |
|---------------------------------|-----|-------|---------------|
| • M ^{me} BENMANSOUR N. | MCB | UDSB | Présidente |
| • M ^{me} BENSALAH L. | MAA | UDSB | Examinatrice |
| • M ^{elle} BOUAFIR Y. | MRB | CRAPC | Promotrice |
| • M ^{me} TAKARLI S. | MAA | UDSB | Co-Promotrice |

Année universitaire : 2019-2020

Résumé :

Origanum floribundum Munby est une espèce endémique Algérienne qui pousse en pâturage et surtout en montagne. Cette étude a pour objectif de déterminer la composition chimique et de faire une étude comparative de l'huile essentielle de l'origan collecté à partir de différents sites se trouvant au Parc National de Chréa à Blida (Belkreit, Bouhartite, Ain Terraeur, Dj.Hannous et Hammam Melouane), extraite par hydrodistillation à l'aide d'un appareil de type Clevenger puis analysée par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG/MS). Les résultats obtenus montrent qu'il existe une différence dans le rendement ainsi que dans la teneur en composants chimiques principaux de l'huile essentielle. Les principaux composés sont : le thymol, le carvacrol, le p-cymène et le γ -terpinène. Cette variabilité pourrait être due à plusieurs facteurs aussi bien intrinsèques qu'extrinsèques.

Mots clés : Huile essentielle, *Origanum floribundum* Munby, thymol, carvacrol, CG/MS

Abstract :

Origanum floribundum Munby is an endemic Algerian species that grows in pasture and especially in the mountains. The objective of this study is to determine the chemical composition and to conduct a comparative study of the essential oil of the oregano collected from different sites in the National Park of Chr ea in Blida (Belkreit, Bouhartite, Ain Terraeur, Dj.Hannous and Hammam Melouane), extracted by hydrodistillation using a Clevenger-type apparatus, then analyzed by gas chromatography coupled with mass spectrometry (GPC/SM). The obtained results show that there is a difference in the yield and in the main chemical component content of the essential oil of selected sites. The main compounds are: thymol, carvacrol, p-cymene and terpinen. This variability is probably due to several factors both intrinsic and extrinsic.

Keywords : Essential oil, *Origanum floribundum* Munby, thymol, carvacrol, GPC/SM

الملخص:

Origanum floribundum Munby هو نوع متوطن في الجزائر ينمو في المراعي وخاصة في الجبال. الهدف من هذه الدراسة هو تحديد التركيب الكيميائي وإجراء دراسة مقارنة لزيت الزعتر الأساسي التي تم جمعه من مواقع مختلفة في الحظيرة الوطنية للشريعة في البلدية (بلقرية، بوهارتيت، عين تريدة، دج. حنوس و حمام ملوان)، استخراجها بواسطة hydrodistillation باستخدام جهاز من نوع Clevenger ثم تحليله بواسطة la chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG/MS). تظهر النتائج التي تم الحصول عليها ان هناك اختلافا في المردود وكذلك في محتوى المكونات الكيميائية الرئيسية للزيت الأساسي. المركبات الرئيسية هي: تيمول (thymol) كرفكرول (carvacrol) ، p- cymène و γ -terpinène. ويمكن ان يكون هذا التباين الى عدة عوامل داخلية و خارجية.

كلمات البحث: زيوت أساسية، *Origanum floribundum* Munby، تيمول، كرفكرول، CG/MS

Table des matières

Dédicaces	
Remerciements	
Liste des tableaux	
Liste des figures	
Liste des abréviations	
Introduction	1
Chapitre I Synthèse Bibliographique	
I. Les huiles essentielles	
I-1-Historique	3
I-2-Définition des huiles essentielles	3
I-3-Données botaniques	4
I-4-Les propriétés physiques des huiles essentielles	5
I-5-La composition chimique des huiles essentielles	6
I-5-1 Les composés terpéniques	8
I-5-1-1- Les monoterpènes	8
I-5-1-2- Les sesquiterpènes	9
I-5-2- Les composés aromatiques dérivés du phénylpropane	9
I-5-3- Les composés d'origines diverses	9
I-6-Les facteurs de variabilité des huiles essentielles	10
I-7-La toxicité des huiles essentielles	10
I-8-Le rôle des huiles essentielles	11
I-9-La conservation des huiles essentielles	12

I-10-Les procédés d'extraction des huiles essentielles	12
. La distillation	13
. L'hydrodistillation	13
. La distillation à la vapeur d'eau	14
. L'extraction par enfleurage	15
. L'extraction par les solvants volatils	15
. L'extraction par expression à froid	16
. L'extraction par micro-ondes	16
. L'extraction par ultrasons	17
. L'extraction au fluide supercritique	17
I-11-Les méthodes d'analyse des huiles essentielles	18
. Chromatographie sur couches minces	19
. Chromatographie en phase gazeuse	19
. Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG/MS)	20
. Chromatographie liquide à haute performance	21

II. *Origanum floribundum* Munby

II-1-Historique et origines	22
II-2-Répartition géographique	22
II-3-Caractéristiques botaniques	23
• Description de l' <i>Origanum floribundum</i> Munby	23
• Classification botanique de l'origan selon la flore de Quezel et Santa (1962-1963)	24
II-4-Principales utilisations de l'origan	25
II-5- Le Parc National de Chréa (PNC)	25
• Bioclimat	26

Chapitre II Matériel et méthodes

II-1-Matériel	28
II-2-Méthodes expérimentales	29

II-2-1- Technique d'extraction des huiles essentielles	29
II-2-2- Technique de caractérisation des huiles essentielles	30
Chapitre III Résultats et Discussion	
III-1- Résultats	33
III-1-1- Rendement des huiles essentielles	33
III-1-2- Composition chimique des huiles essentielles	33
III-2- Discussion	35
Conclusion	38
Références bibliographiques	39
Annexe	

Dédicace

Avec l'aide du tout puissant. J'ai pu réaliser ce modeste travail que je dédie :

A mes très chers parents «Ahmed et Zahra » qui m'ont offert leur amour et leur soutien et qui n'ont cessé de m'encourager et m'enseigner persévérance durant toute mes années d'études.

A mon adorable sœur Djamilia que je remercie pour son soutien et son amour illimités.

A mes fidèles amies : Ahlem, Nessrine et Hinda

A toute ma famille.

A mon binôme Hour Elhouda et sa famille.

Tous mes camarades de la promotion 2019-2020 Biodiversité et Physiologie Végétale, tous mes enseignants qui m'ont enseigné durant mes années d'études.

Ahlem



Dédicace

Je dédie ce travail à :

Mes très chers parents pour les sacrifices et l'amour qu'ils ont témoigné à mon égard.

Mon mari pour son encouragement et sa compréhension.

Mon frère Mohamed et mes sœurs Asma, Nawther et Rihab.

Ma grande mère et mes chers oncles et tantes.

Mes chères Nadia, Phaima, Baya et Malika.

Mon binôme Ahlem.

Nour Elhouda



Remerciements

Nous tenons tout d'abord à remercier Dieu le tout puissant et miséricordieux, qui nous a donné la force, la santé, le courage, la volonté, et la patience d'accomplir ce modeste travail.

En seconde lieu, nous tenons à remercier notre encadreur M^{elle} BOUAFIR, son précieux conseil et son aide durant toute la période du travail.

Notre gratitude s'adresse à M^{me} TAKARLI pour son orientation et ses conseils.

Nous tenons à remercier l'équipe de Centre de Recherche Scientifique et Technique En Analyses Physico Chimiques (CRAPC).

Nous tenons aussi à remercier l'équipe du Parc Nationale de Chréa, surtout M^{me} BOUKHALFA et M^r FAROUDJI Rida.

Nous tenons à remercier le chef d'option de notre spécialité M^{me} CHIRIFE.

Nos remerciements aussi à M^{me} BENMANSOUR d'avoir accepté de présider ce jury ainsi que M^{me} BENSALAH pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Nous exprimons notre reconnaissance à tous les enseignants de la spécialité Biologie et Physiologie Végétale surtout M^{me} TOUAIBIA et M^{me} BENASSAL pour ses encouragements et ses conseils précieux.

Enfin, on remercie tous ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à la réalisation de ce travail.

Liste des tableaux

Tableau 01 : Composition (%) des huiles essentielles d' <i>Origanum floribundum</i> dans les régions étudiées	35
---	----

Liste des figures

Figure 01 : Glande sécrétrice dans la face inférieure de la feuille d' <i>Origanum vulgare</i>	5
Figure 02 : Poils épidermiques sur le calice d'une fleur de l'origan	5
Figure 03 : Structure chimique de quelques composés des huiles essentielles	7
Figure 04 : Montage de distillation fractionnée	13
Figure 05 : Montage d'extraction par Hydrodistillation	14
Figure 06 : Montage de l'appareillage d'hydrodistillation sous micro-ondes	17
Figure 07 : Extraction au fluide supercritique	18
Figure 08 : Chromatographie sur couches minces (CCM) d'un mélange de deux colorants : (a) plaque avant élution ; (b) plaque après élution	19
Figure 09 : Répartition géographique de l'origan dans le monde	23
Figure 10 : <i>O.floribundum</i> Munby	24
Figure 11 : Présentation des secteurs du Parc National de Chréa	26
Figure 12 : La plante étudiée <i>Origanum floribundum</i> Munby avant (A, B) et après séchage (A', B')	28
Figure 13 : Extraction des huiles essentielles d' <i>O.floribundum</i> par Hydrodistillation (en utilisant un Clevenger)	29
Figure 14 : Répartition des rendements de l'huile essentielle de l'origan selon la région étudiée	33

Liste des abréviations

% : Pourcentage

°C : Degré Celsius

µl : Microlitre

µm : Micromètre

AFNOR : Association Française de NORmalisation

ap : Après

av : Avant

CCM : Chromatographie sur couches minces

Cm : Centimètre

CO₂ : Dioxyde de carbone

CT : Chémotype

eV : électron-volt

g : Gramme

CG/MS : Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse

HE : Huile essentielle

IPP : Isopentényle pyrophosphate

J.C : Jésus-Christ

kg : Kilogramme

m : Mètre

MAB : Man and biosphère

min : Minute

MHR : Masse de l'huile récupérée

ml : Millilitre

mm : Millimètre

MVS : Masse de la matière végétale sèche

P : Pression

PNC : Parc National de Chréa

Psi : Per square inch

R : Rendement

Rf : Rapport frontal

T : Température

uma : Unité de masse atomique

UNESCO : Organisation des Nations Unies pour l'Éducation, la Science et la Culture

UV : Ultra-violet

Introduction

Un grand nombre de plantes aromatiques et médicinales possède des propriétés biologiques très intéressantes qui trouvent des applications dans divers domaines tels que les industries pharmaceutiques et la médecine (**Hazzit et al., 2015 in Bernaoui et Louetri, 2018**).

Les plantes aromatiques sont largement répandues dans la nature. L'Algérie a une richesse floristique telle qu'elle renferme un ensemble d'espèces importantes et variées. Nous nous sommes particulièrement intéressées au genre *Origanum* qui appartient à la famille des Lamiaceae. Ce genre comprend un très grand nombre d'espèces et de sous-espèces, certaines d'entre elles sont utilisées comme condiment dans les pays du pourtour méditerranéen et renferment une huile essentielle (HE) extrêmement parfumée. L'origan a un rôle thérapeutique très important car il est considéré comme tonique, anti-infectieux, antiseptique et anti-inflammatoire. Il est le rempart contre la fatigue, l'anémie, les gripes et les angines. Il est aussi antispasmodique et régulateur du système nerveux. Il présente également un effet pour stimuler l'appétit et calmer les troubles digestifs (**Fuinel, 2003**). Le genre *Origanum* est représenté par trois espèces botaniques répandues en Algérie : *Origanum glandulosum* Desf, *Origanum floribundum* Munby et *Origanum majorana* L. Notre choix s'est porté sur la seconde espèce d'origan : *Origanum floribundum* Munby, espèce endémique d'Algérie.

Le but initial de ce travail était de faire une étude comparative de la composition chimique de l'HE extraite à partir des parties aériennes d'*Origanum floribundum* Munby cultivé dans deux régions différentes au parc national de Chréa (PNC) : d'El-Hamdania et Hammam Melouane, et dans un second temps, de mener une étude de sol des régions étudiées afin de démontrer l'influence de ce dernier sur la quantité et la qualité de l'HE obtenue. Cependant, en raison de la pandémie mondiale de la Covid-19 et du confinement imposé par les autorités Algériennes qui a duré plusieurs mois successifs, nous n'avons malheureusement pas pu atteindre notre objectif. Ce mémoire fera donc, exclusivement, l'objet d'une analyse et interprétation de plusieurs articles récents ainsi qu'une thèse de Magistère traitant la même thématique.

Chapitre I Synthèse Bibliographie

I- Les huiles essentielles

I-1-Historique

L'utilisation des HE a accompagné la civilisation humaine depuis ses premières genèses. En effet, les premières preuves de fabrication et d'utilisation des huiles essentielles datent de l'an 3000 avant J.C. (**Baser et Buchabauer, 2010**). Les Egyptiens puis les Grecs et les Romains ont employé diverses matières premières végétales ainsi que les produits qui en découlent, notamment les HE.

L'époque byzantine de la civilisation a permis l'instauration des bases de la distillation et, avec l'ère arabe de la civilisation, l'HE devient un des principaux produits de commercialisation internationale. Ainsi, vers l'an mille, Avicenne, médecin et scientifique Persan, a défini précisément le procédé d'entraînement à la vapeur. L'Iran et la Syrie deviennent les principaux centres de production de divers types d'extraits aromatiques (**Guefa et Ounaissia, 2015**).

Par la suite, les HE ont bénéficié des avancées scientifiques, principalement dans les techniques d'obtention et de l'analyse de leur composition chimique. Parallèlement, leur utilisation a aussi tiré profit de l'avènement de l'aromathérapie. René-Maurice GATTEFOSSE a créé, en 1928, le terme de l'aromathérapie et il a mené de nombreux travaux sur les HE, notamment sur leurs propriétés ; ses résultats seront à l'origine de nombreuses autres recherches (**Besombes, 2008 ; Bouguerra, 2012**).

I-2-Définition des huiles essentielles

Une HE est, selon la Commission de la pharmacopée Européenne, « un produit odorant, généralement de composition complexe, obtenu à partir d'une matière première végétale botaniquement définie soit par entraînement à la vapeur d'eau, soit par distillation, soit par un procédé mécanique approprié sans chauffage. L'HE est le plus souvent séparée de la phase aqueuse par un procédé physique n'entraînant pas de changement significatif de sa composition » (**de Gentile, 2012**).

Selon l'AFNOR, elle désigne un produit obtenu à partir d'une matière première d'origine végétale, après séparation de la phase aqueuse par des procédés physiques: soit par

entraînement à la vapeur d'eau, soit par des procédés mécaniques à partir de l'épicarpe des plantes contenant des citrals, soit par distillation sèche (**Mahfouf, 2010**).

Certains auteurs définissent les HE comme étant des composés volatils, naturels, non gras et complexes caractérisés par une forte odeur et sont formées par des plantes aromatiques comme métabolites secondaires (**Bakkali et al., 2008 ; Couic-Marinier et Lobstein, 2013**).

I-3-Données botaniques:

Les HE n'existent quasiment que chez les végétaux supérieurs : il y aurait 17500 espèces aromatiques. Les genres capables d'élaborer les constituants qui composent les HE sont répartis en un nombre limité de familles, ex : Apiaceae, Astéraceae, Cupressaceae, Lamiaceae, Lauraceae, Myrtaceae, Piperaceae, Poaceae, Rutaceae, Zingiberaceae, etc (**Bruneton, 2009**).

Tous les organes peuvent renfermer des HE surtout les sommités fleuries (lavande, menthe, etc.), mais aussi les feuilles (citronnelle, eucalyptus), et bien que cela soit moins habituel, dans les racines (vétiver), les rhizomes (gingembre), les écorces (cannelle), le bois (camphrier), les fruits (poivre), ainsi que dans les graines (muscade) (**Boukhobza et Geotz, 2014 ; Bruneton, 2009 ; Mahfouf, 2010**).

Les HE sont stockées dans des cellules sécrétrices, cavités, canaux, poils épidermiques ou trichomes glandulaires (figure 01 et 02) (**Bakkali et al., 2008 ; Couic-Marinier et Lobstein, 2013**).

Quantitativement, la teneur en HE est plutôt faible, assez souvent inférieure à 10ml/kg. Une teneur forte comme celle du bouton floral de giroflier (150ml/kg est plus dans le bouton séché) est exceptionnelle (**Bruneton, 2009**).



Figure 01 : Glande sécrétrice dans la face inférieure de la feuille d'*Origanum vulgare* (Svoboda et *al.*, 2000 in Lamamra, 2018)



Figure 02 : Poils épidermiques sur le calice d'une fleur de l'origan (Porter, 2001)

I-4-Les propriétés physiques des huiles essentielles

Les HE sont des composés volatiles, naturels, liquides, limpides, rarement colorés et complexes caractérisés par une forte odeur. Elles sont liposolubles et solubles dans les solvants organiques avec une densité généralement plus faible que celle de l'eau (**Bakkali et *al.*, 2008**). Selon **Riotte (2015)**, les HE sont de couleur jaune, mais certaines se distinguent : les HE de la camomille Allemande et de la tanaïsie sont bleues, celle de la sarriette est rouge. La couleur de l'HE de la bergamote est d'un très joli vert pâle, et celle de l'inule, vert émeraude.

À température ambiante, les HE sont liquides, hormis quelques cas particuliers : les HE de la myrrhe et du santal sont plutôt visqueuses et celle de la rose et du camphrier peuvent être cristallisées. À basse température, certaines HE se cristallisent, tel est le cas des HE de l'anis, de la menthe des champs ou du thym lorsqu'elles sont stockées au réfrigérateur. Elles possèdent un indice de réfraction élevé et ont souvent un pouvoir rotatoire. Les HE sont altérables, sensibles à l'oxydation, mais ne rancissent pas. Elles ont, en effet, tendance à se polymériser pour former des produits résineux. Leur conservation nécessite de l'obscurité (flacons en verre opaque) et un lieu exempt d'humidité (**Couic-Marinier et Lobstein, 2013**).

Les HE possèdent un point d'ébullition qui est toujours supérieur à 100°C et dépend de leurs poids moléculaires, par exemple les points d'ébullition du caryophyllène, du géraniol, du citral et du α -pinène sont 260, 230, 228 et 156°C respectivement (**Abou Zeid, 2000 in Lamamra, 2018**), mais d'après (**Valnet, 1984**), ce point varie de 160 à 240°C.

I-5-La composition chimique des huiles essentielles

Les HE sont des mélanges naturels très complexes qui appartiennent, de façon quasi exclusive, à deux groupes caractérisés par des origines biogénétiques distinctes : Le groupe des terpénoïdes d'une part et d'autre part, le groupe des composés aromatiques dérivés du phénylpropane (beaucoup moins fréquents) (figure 03) (**Boukhobza et Goetz, 2014**). Les HE peuvent contenir environ 20 à 60 composants à des concentrations très différentes. Elles se caractérisent par deux ou trois grands composants à des concentrations assez élevées (20–70%) par rapport à d'autres composants présents en quantités infimes. Par exemple, le carvacrol (30%) et le thymol (27%) sont les composants majeurs de l'HE de *Origanum compactum*, linalol (68%) de l'HE de *Coriandrum sativum*...etc. Généralement, ces principaux composants déterminent les propriétés biologiques des HE (**Bakkali et al., 2008**).

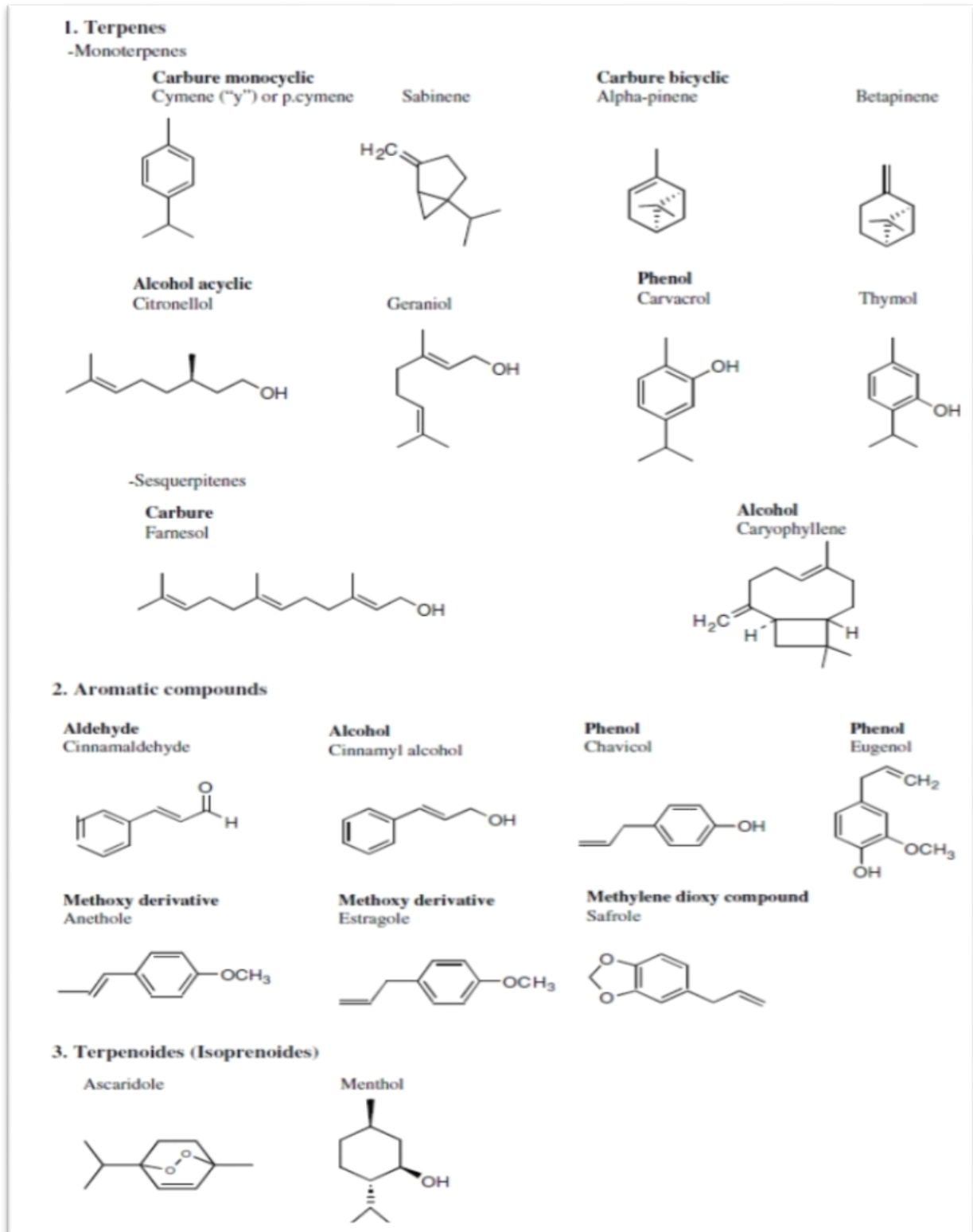


Figure 03 : Structure chimique de quelques composés des huiles essentielles (Bakkali et al., 2008)

I-5-1-Les composés terpéniques

Selon **Bardeau (2009)**, les terpènes sont des hydrocarbures cycliques très répandus dans les HE et qui constituent les principaux composants d'un grand nombre d'entre elles. Les terpènes sont structurellement et fonctionnellement de différentes classes. Ils sont constitués à partir de combinaisons de plusieurs unités de base de 5 carbone (C_5) appelées isoprène. La biosynthèse des terpènes consiste en la synthèse du précurseur diphosphate d'isopentényle (IPP), l'ajout répétitif d'IPP pour former le précurseur du prényldiphosphate des différentes classes de terpènes, la modification du prényldiphosphate allylique par des synthétases spécifiques des terpènes pour former le squelette des terpènes et enfin, la modification enzymatique secondaire (réaction redox) du squelette pour attribuer des propriétés fonctionnelles aux différents terpènes. Les terpènes principaux sont les monoterpènes (C_{10}) et sesquiterpènes (C_{15}), mais les hémiterpènes (C_5), diterpènes (C_{20}), triterpènes (C_{30}) et tétraterpènes (C_{40}) existent également. Un terpène contenant de l'oxygène est appelé terpénoïde (**Bakkali et al., 2008**).

Dans le cas des HE, seuls seront rencontrés les terpènes les plus volatils, c'est-à-dire ceux dont la masse moléculaire n'est pas trop élevée (monoterpènes et sesquiterpènes). Les terpènes sont des hydrocarbures mais de nombreux dérivés (alcools, aldéhydes, cétones, acides), de structure apparentée, sont considérés comme des composés terpéniques. Ils sont présents dans les végétaux, dont ils sont souvent les constituants « de senteur » (térébenthine, camphre, menthol, citronnelle) ; on les extrait sous forme de HE pour la parfumerie (**Boukhobza et Goetz, 2014**).

I-5-1-1-Les monoterpènes

Les monoterpènes sont formés à partir du couplage de deux unités d'isoprène (C_{10}). Ce sont les molécules les plus représentatives constituant 90% des HE et qui permettent une grande variété de structure. Ces composés peuvent être : monoterpènes acycliques, monocycliques, bicycliques. Ils se composent de plusieurs fonctions : alcools, aldéhydes, cétones, esters, peroxydes et phénols (**Bakkali et al., 2008**).

I-5-1-2-Les sesquiterpènes

Les sesquiterpènes sont formés de l'assemblage de trois unités d'isoprène (C_{15}), la structure et la fonction des sesquiterpènes sont similaires à ceux des monoterpènes. L'extension de la chaîne augmente le nombre de cyclisations, ce qui permet une grande variété de structures : monocycliques, bicycliques, tricycliques et polycycliques. En général, ces composés sont sous forme d'hydrocarbures ou hydrocarbures oxygénés tels que les alcools, les cétones, les aldéhydes, les acides et les lactones (**Bakkali et al., 2008**).

I-5-2-Les composés aromatiques dérivés du phénylpropane

Les dérivés du phénylpropane (C_6-C_3) sont beaucoup moins fréquents que les terpènes. Très fréquemment, il s'agit d'allyle et de propényl phénols, parfois des aldéhydes, caractéristiques de certaines HE, telle que le girofle (eugénol). On peut également rencontrer dans les HE, plus rarement, des composés en C_6-C_1 , tel que le safrole (**Boukhobza et Goetz, 2014**).

Ces composés ne se trouvent que dans certaines HE et présentent généralement des odeurs très marquées : anéthole de l'anis ou de la badiane, aldéhyde cinnamique de l'écorce du cannellier ou encore, l'eugénol du bouton floral (clou) du giroflier (**Aiache et al., 2012**).

Les principales sources végétales de ces composés sont l'anis, cannelle, clou de girofle, fenouil, muscade, persil, saffran, estragon et certaines familles botaniques (Apiaceae, Lamiacées, Myrtacées, Rutacées) (**Bakkali et al., 2008**).

I-5-3-Les composés d'origines diverses

Compte tenu de leur mode d'extraction, les HE peuvent renfermer divers composés aliphatiques, généralement de faible masse moléculaire, entraînés lors de l'hydrodistillation carbure : acide (C_3 à C_{10}), alcools, aldéhydes (octanal, décanal...), esters, lactones, produits azotés ou soufrés (**Boukhobza et Goetz, 2014**).

On peut citer dans ce groupe les composés soufrés des moutardes, l'anthranilate de méthyle du bigaradier, les phtalides, certains dérivés coumariniques...etc (**Aiache et al., 2012**).

I-6-Les facteurs de variabilité des huiles essentielles

La notion de chémotype (CT) est essentielle en aromathérapie (**Ficelle, 2019**). Le CT, également appelé type chimique de la plante, indique le composant biochimique majoritaire et distinctif présent dans l'HE. Cet élément permet de distinguer les HE extraites d'une même espèce ou variété botanique mais de composition biochimique différente. Ce CT est repéré grâce à une analyse chromatographique et spectrométrique qui reconnaît et identifie les molécules présentes dans l'HE. Cette classification est indispensable car elle permet de sélectionner les HE pour une utilisation plus précise, plus sûre et plus efficace (**Couic-Marinier et Lobstein, 2013**).

Il est très important car une même plante peut avoir un CT différent selon le biotope sur lequel elle se développe. En effet, il prend en compte des paramètres tels que la nature du sol, le soleil, l'altitude, les conditions climatiques et même les plantes avoisinantes (**Ficelle, 2019**). De plus, il existe d'autres facteurs qui peuvent influencer la qualité et la quantité des HE comme l'origine géographique et botanique de la plante, les facteurs environnementaux (ensoleillement et hygrométrie) (**de Gentile, 2012**), l'organe végétal, l'âge et le stade du cycle végétatif (**Bakkali et al., 2008**). Le moment de la cueillette, la technique d'extraction (qualité de l'eau, température et durée de distillation) et leur mode de conservation peuvent également contribuer dans la variabilité des HE (**Couic-Marinier et Lobstein, 2013**). Tous ces éléments ont une influence sur l'essence fabriquée par la plante et donc sur ses bienfaits thérapeutiques (**Ficelle, 2019**).

I-7-La toxicité des huiles essentielles

Les HE sont des concentrés de substances actives des plantes. Par conséquent, leur ingestion peut provoquer des intoxications graves, notamment chez les enfants mais aussi chez les femmes enceintes ou allaitantes, les personnes épileptiques, allergiques ou sensibles. Les substances les plus fréquemment identifiées sont : l'eugénol (carcinogène), le bergaptène (photosensibilisant et irritant), le citral (irritant cutané), le farnesol (irritant cutané) (**Campeau et Rebière, 2018 ; de Gentile, 2012**).

Les symptômes en cas d'intoxication sont neurologiques (convulsion, état léthargique ou agitation, troubles de l'équilibre ou des hallucinations), respiratoires (irritation de la gorge ou

des voies respiratoires, toux, difficultés respiratoires) et digestifs (nausées, vomissements, douleurs abdominales, diarrhée).

L'application cutanée des HE doit également se faire avec une grande précaution et c'est important de bien lire les indications et le mode d'emploi de chaque HE. Certaines huiles sont dermocaustiques et peuvent causer des brûlures graves sur la peau, comme l'HE de l'origan, cannelle, citronnelle, pin ou thym. D'autres huiles sont photosensibilisantes et donc il ne faut pas s'exposer au soleil après leur utilisation comme avec la plupart des agrumes : bergamote, citron, pamplemousse, mais aussi l'HE de rue, de cumin, livèche ou d'angélique. Par conséquent, les HE ne doivent pas être utilisées avant de bien connaître leurs contre-indications (**Campeau et Rebière, 2018**).

Les contre-indications des HE portent non seulement sur leur composition, mais aussi sur l'état physique des personnes qui veulent les utiliser. Sacher que certaines HE ne doivent pas être associées avec certains traitements médicamenteux, ni pour des patients avec des affections particulières. Ainsi, les personnes qui souffrent des affections des reins ne doivent pas utiliser l'HE de genévrier, de pin ou d'origan. Pour les personnes hypertensives et asthmatiques, l'HE de romarin est contre-indiquée. Les personnes qui souffrent d'allergies respiratoires ou d'asthme ne doivent pas faire des inhalations à base d'HE. Pour les personnes sous traitement avec des anticoagulants, il ne faut pas utiliser des HE de girofle à cause de l'eugénol mais aussi ceux contenant des coumarines comme les essences d'agrumes, d'angélique, de cannelle, ou encore celles avec des salicylates comme l'huile de Gaulthérie (**Campeau et Rebière, 2018**).

I-8-Le rôle des huiles essentielles

Les HE font de plus en plus partie de notre quotidien. Elles peuvent s'utiliser dans pratiquement tous les domaines de la vie : santé, hygiène, cuisine, cosmétique...etc (**Ficelle, 2019**).

Les HE sont connues depuis l'Antiquité pour leurs bienfaits thérapeutiques comme les propriétés antispasmodiques, digestives, circulatoires et régulation métabolique. Elles sont très puissantes pour : l'arrêt du tabac ou de l'alcool, vaincre la boulimie ...etc. Elles sont aussi très efficaces dans le traitement des affections respiratoires : rhume, nez bouché, toux, bronchite, asthme...etc. L'odeur d'une HE, en dehors d'être agréable ou non, induit des changements

physiologiques sur l'organisme tels que le soulagement de douleurs ou de tensions mais aussi, la régulation du cycle menstruel (**Ficelle, 2019**).

Les HE sont employées dans les massages pour réduire le stress, combattre l'insomnie, favoriser un sommeil réparateur ou lutter contre le surmenage.

Les HE sont utilisées aussi pour assainir l'atmosphère des maisons, des bureaux et des voitures. Certaines HE sont également efficaces pour éloigner les insectes tels que les moustiques (**Ficelle, 2019**).

Les HE sont très efficaces comme antiseptiques pour lutter contre les virus, les bactéries, les champignons et divers parasites. Elles peuvent également attirer certains insectes pour favoriser la dispersion des pollens et des grains, ou repousser les autres êtres indésirables comme le puceron, le charançon, la pyrale de maïs...etc (**Bakkali et al., 2008**).

Les HE ou certains de leurs composants sont utilisés en parfums, produits de maquillage, produits sanitaires, en dentisterie, en agriculture, comme conservateurs et additifs alimentaires, et comme remèdes naturels. Par exemple, le d-limonène, l'acétate de géranyle ou la d-carvone sont employés dans les parfums, crèmes, savons, comme additifs aromatiques pour aliments, comme parfums pour les produits d'entretien ménager et comme solvants industriels (**Bakkali et al., 2008**).

I-9-La conservation des huiles essentielles

La conservation des HE exige certaines précautions indispensables si l'on veut éviter leur oxydation et leur dépolymérisation. Le flacon doit être opaque, protégé de l'humidité et de la lumière (généralement, il doit être de couleur brune pour les HE et bleu foncé pour les hydrolats) et de la chaleur. Il doit être soigneusement fermé après chaque usage. La durée de conservation des HE est de 5 ans et celle des essences extraites de zestes d'agrumes (citron, pamplemousse, orange douce ou amère, bergamote ...etc.) de 3 ans (**Bardeau, 2009 ; Couic-Marinier et Lobstein, 2013**).

I-10-Les procédés d'extraction des huiles essentielles

Plusieurs méthodes existent pour extraire les HE. Elles sont basées principalement sur l'entraînement à la vapeur, l'expression, la solubilité et la volatilité. Le choix de la méthode la mieux adaptée se fait en fonction de plusieurs paramètres tels que la nature de la matière

végétale à traiter, des caractéristiques physico-chimiques de l'essence à extraire, et l'usage de l'extrait et l'arôme du départ au cours de l'extraction (Samate, 2001 in Bencheikh, 2017).

-La distillation

Cette méthode connue depuis l'antiquité, transmise par les Arabes et perfectionnée jusqu'à ce jour, nécessite beaucoup de doigté. Le ballon est chauffé ; la vapeur au contact des plantes placées dans un alambic, entraîne les molécules aromatiques et au contact d'un serpentin d'eau réfrigéré se condense (figure 04). À la sortie de l'alambic, l'HE flotte à la surface de l'eau de distillation (l'hydrolat ou eau florale). Une HE pure ne contient aucun corps gras, ni vitamine ou sels minéraux. Le coût d'HE est tributaire de la rareté de la plante distillée et de la quantité nécessaire à l'extraction (Silvant, 2015).

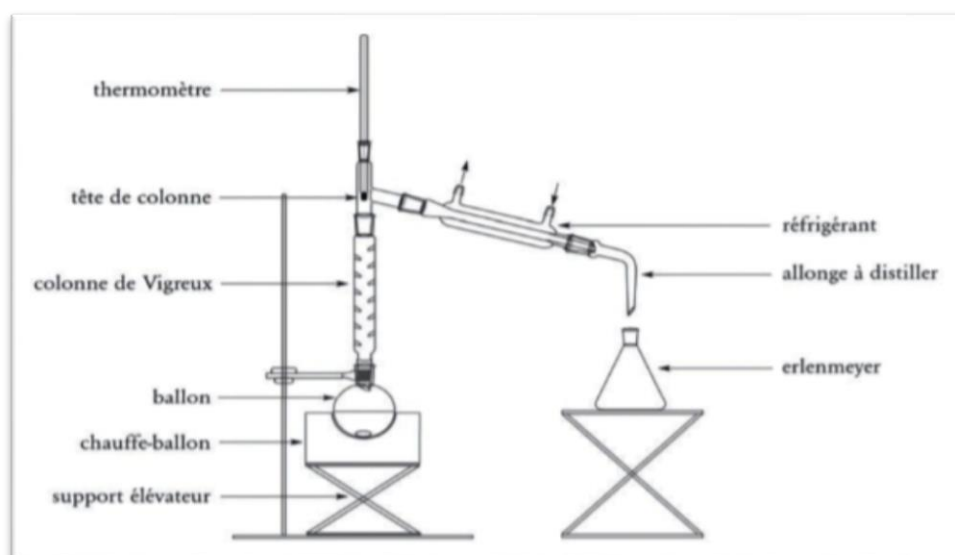


Figure 04 : Montage de distillation fractionnée (Ribeyre, 2014)

-L'hydrodistillation

L'appareil utilisé pour l'hydrodistillation est de type Clevenger (figure 05). Il est constitué d'un chauffe ballon, un ballon, une colonne de condensation de la vapeur (réfrigérant) et un collecteur en verre qui recueille les extraits de la distillation (Fadil et al., 2015). La plante est mise en contact avec l'eau dans un ballon lors d'une extraction au laboratoire ou dans un alambic industriel. Le tout est ensuite porté à ébullition. Les vapeurs sont condensées dans un

réfrigérant et les HE se séparent de l'eau par différence de densité (**Couic-Marinier et Lobstein, 2013**). L'huile est récupérée après décantation (**Boutekedjiret et al., 2003**).

Les inconvénients de cette méthode sont : la calcination du matériel végétal, ce qui entraîne une modification de la composition et des caractéristiques chimiques de l'HE (**Abou Zeid, 2000 in Lamamra, 2018**), la non maîtrise de la température du récipient contenant le mélange (eau + organes végétaux) et la modification de l'odeur, de la couleur et de la composition de l'HE au cours de la distillation (**Chalchat et al., 1997**).

Cette méthode est généralement utilisée en cas des HE dont les constituants chimiques sont thermorésistants. Elle est aussi utilisée dans l'extraction des huiles à partir des feuilles et des fleurs fraîches ou séchées. Parmi les huiles extraites par cette méthode, on cite l'huile de menthe, de myrte et de l'herbe à citron (**Haekel et Omar, 1993 in Lamamra, 2018**).

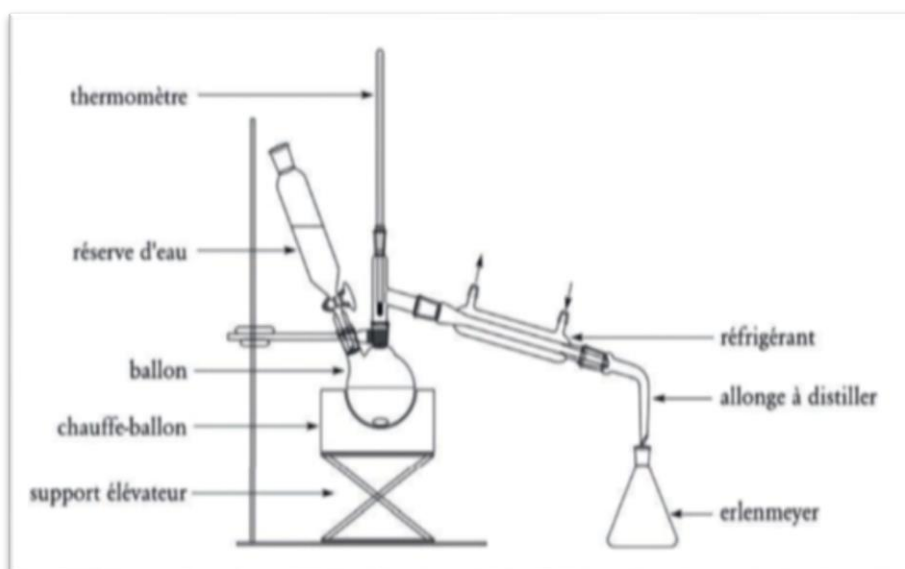


Figure 05 : Montage d'extraction par Hydrodistillation (Ribeyre, 2014)

-La distillation à la vapeur d'eau

La distillation grâce à la vapeur d'eau convient à la plupart des plantes. Même si les HE sont insolubles dans l'eau, elles le sont dans la vapeur. Cette méthode de fabrication consiste à envoyer de la vapeur sur les plantes dont on souhaite extraire les huiles, et elles se chargent au passage de ces essences (**Campeau et Rebière, 2018**). Le matériel végétal n'est pas en contact avec l'eau. Il est placé dans une colonne de verre, dont les parties inférieure et supérieure sont reliées respectivement à un ballon d'eau et à un condenseur. La vapeur d'eau

produite dans le ballon traverse la plante, chargée d'HE puis vers le condenseur, où elle est condensée. Après condensation, l'huile est séparée de l'eau par décantation (**Boutekedjiret et al., 2003 ; Boukhobza et Goetz, 2014**).

-L'extraction par enfleurage

Cette technique consiste à mettre des pétales de fleurs en contact avec un corps gras qui s'imprègne de leur arôme et est ensuite épuré. Déjà connu des Égyptiens, ce système a été utilisé et perfectionné durant des siècles, jusqu'à l'époque moderne, en particulier par les parfumeurs de Grasse. Les couches alternées de fleurs et de graisse ont d'abord été disposées dans des caisses, puis sur des cadres mobiles. Le mélange de graisse de porc et de bœuf a ensuite cédé la place à des amandes et des graines oléagineuses pilées. Dans l'enfleurage à chaud, les pétales étaient immergées dans de la graisse chaude, pressée ensuite dans un couffin en poils de chèvre ou en crins de cheval (**Langlois, 2006**).

L'enfleurage repose sur le pouvoir des corps gras à absorber naturellement les odeurs. Il peut, à chaud, permettre de produire un extrait alcoolique parfumé. À froid, la technique qui consiste à déposer des fleurs sur une surface grasse pour que la matière grasse se charge de parfum, est de moins en moins utilisée à titre industriel. Elle permet d'obtenir des pommades parfumées, mais également une absolue (En parfumerie, l'absolue représente un extrait très concentré du végétal), après traitement à l'alcool puis évaporation (**Collet, 2018**).

L'industrie des parfums a utilisé jadis l'enfleurage pour les organes fragiles comme les fleurs, c'est-à-dire le contact avec un corps gras qui se sature d'essence. Le corps gras est épuisé par l'alcool absolu et ce solvant est évaporé sous vide à 0 °C (**Boukhobza et Goetz, 2014**).

-L'extraction par les solvants volatils

L'extraction par des solvants volatils permet à l'heure actuelle d'obtenir les concrètes et les absolues. Les végétaux sont placés dans des cuves appelées extracteurs et subissent des lavages successifs avec des solvants qui se chargent de leur parfum. Après décantation et filtrage, le solvant est évaporé. On obtient une pâte fortement odorante appelée « Concrète » pour les fleurs et « résinoïde » pour les plantes sèches, comme les racines ou les mousses (mousse de

chêne par exemple : oakmoss). La concrète peut ensuite être lavée à l'alcool afin d'obtenir une essence pure appelée « absolue » (Collet, 2018).

Cette méthode d'extraction se fait avec des solvants organiques volatils comme l'hexane. Toutefois, il s'agit bien de substances chimiques qui altèrent la qualité des essences obtenues. Le benzène, qui était très utilisé pour ce procédé, a été interdit car il s'est avéré toxique. Ce type d'extraction se fait dans des extracteurs de Soxhlet où est déposée la matière végétale avant qu'elle soit divisée afin d'en faciliter le contact avec le solvant. L'extraction se fait par des lavages successifs avec le solvant. La matière ainsi traitée retient une grande proportion de solvant qu'il faut diminuer par évaporation du solvant qui sera ensuite recyclé pour d'autres lavages. La récupération du solvant atteint souvent plus de 95% de la quantité retenue (Campeau et Rebière, 2018).

-L'extraction par expression à froid

Cette méthode d'extraction des HE est notamment utilisée pour les agrumes ou les hespéridés pour qui la distillation n'est pas adaptée. Les HE de ces plantes sont contenues dans les petites glandes qui se trouvent dans leur écorce appelée aussi zeste.

Cette méthode se fait sans monter en température, d'où son nom. Si au départ elle se faisait manuellement, et que différentes techniques existaient en Sicile pour en extraire les huiles, de nos jours, elle consiste à soumettre la substance végétale à une forte pression grâce à une presse hydraulique. Cette extraction peut se faire seulement à partir des écorces, mais également des fruits entiers. La séparation des HE se fait ensuite par centrifugation (Campeau et Rebière, 2018 ; Collet, 2018 ; Boukhobza et Geotz, 2014 ; Aiache et al., 2012).

Comme aucune modification chimique liée à la vapeur d'eau n'est intervenue, le produit final ne peut pas prendre le nom d'HE (Silvant, 2015).

-L'extraction par micro-ondes

Ce type d'extraction a été développé ces dernières décennies en se basant sur l'absorption de l'énergie des microondes par les composantes actives de la plante (Wang et al., 2006). La matrice végétale est chauffée à pression réduite par microondes et les composés volatils sont entraînés par la vapeur à partir de l'eau propre à la plante (figure 06). La récupération des

composés se fait ensuite par refroidissement et décantation (**Grigonis et al., 2005 ; Reighard et Olesik, 2006**). L'avantage principal de cette technique est l'obtention d'un rendement élevé en extrait en un temps réduit. Les dégradations thermiques et hydrolytiques des composés oxygénés sont également limitées (**Mengal et al., 1993 ; Bendahou et al., 2007 ; Lucchesi et al., 2007**).

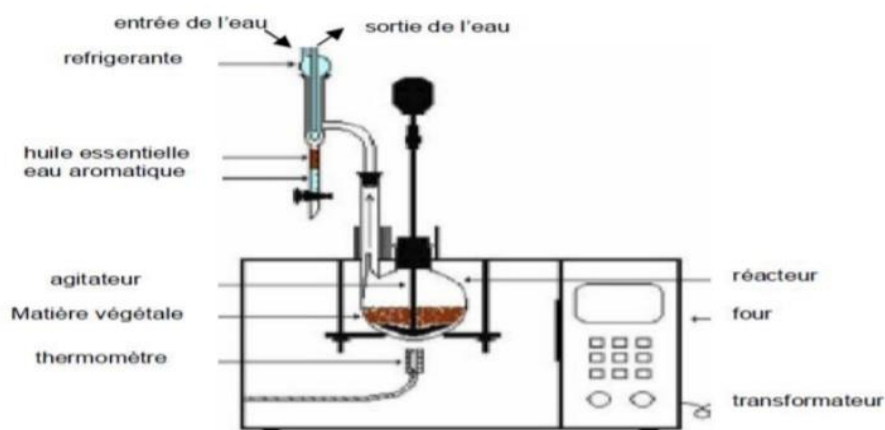


Figure 06 : Montage de l'appareillage d'hydrodistillation sous micro-ondes (Lagunez-Rivera, 2006)

-L'extraction par ultrasons

Les micro-cavitations, générées par ultrasons, désorganisent la structure des parois végétales, notamment les zones cristallines cellulosiques. Les ultrasons favorisent la diffusion et peuvent modifier l'ordre de distillation des constituants des HE. L'extraction par les ultrasons est une technique de choix, pour les solvants de faible point d'ébullition, à des températures d'extraction inférieures au point d'ébullition. L'avantage essentiel de ce procédé est de réduire considérablement la durée d'extraction, d'augmenter le rendement en extrait et de faciliter l'extraction des molécules thermosensibles (**Lagunez-Rivera, 2006**).

-L'extraction au fluide supercritique

Les techniques habituellement adaptées, telles l'entraînement à la vapeur d'eau et l'extraction par solvant, souffrent de plusieurs limitations dans l'extraction et la préservation de la composition des arômes naturels. Il peut se produire une dégradation des composés thermolabiles, hydrolyse et solubilisation dans l'eau et une contamination par des solvants.

L'extraction au gaz supercritique CO₂ est proposée comme technique alternative (figure 07) (Reverchon *et al.*, 1995 ; Reverchon et De Marc, 2006), selon le principe suivant :

Au-delà du point critique, un fluide peut avoir la densité d'un liquide et la viscosité d'un gaz, d'où une bonne diffusibilité dans les solides et un bon pouvoir solvant. L'intérêt s'est porté initialement sur le dioxyde de carbone (produit naturel inerte chimiquement, ininflammable, strictement non toxique, facile à éliminer totalement, sélectif, aisément disponible, peu réactif chimiquement et peu coûteux). Le point critique se situe à P= 74 bars et T= 32 °C (Pourmortazvi et Hajimirsadeghi, 2007).

Les avantages de cette technique sont nombreux : capacité à fournir des extraits de composition très proche de celle des produits naturels, possibilité de faire varier la sélectivité, la viscosité, etc. en jouant sur la température et la pression (extraction et fractionnement simultanés), absence d'hydrolyse et de réarrangement. Ces avantages expliquent le développement actuel du procédé, et ce malgré la lourdeur de l'investissement (Bruneton, 1999 in Bekka, 2009).

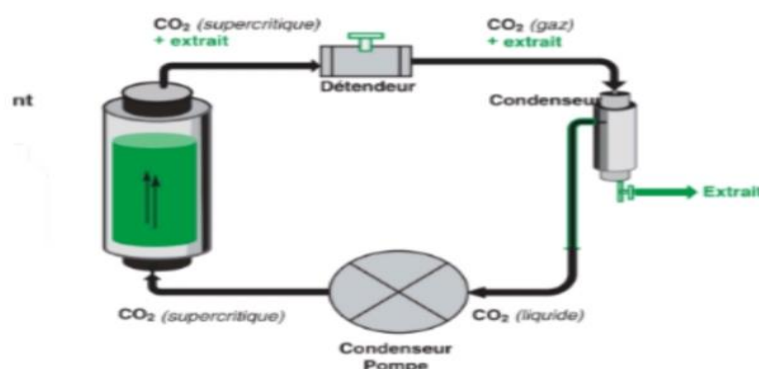


Figure 07 : Extraction au fluide supercritique (Boutefnouchet *et al.*, 2020)

I-11-Les méthodes d'analyse des huiles essentielles

La chromatographie regroupe un ensemble important de méthodes variées qui permettent la séparation de substances de propriétés voisines dans un mélange complexe. Dans toute séparation par chromatographie, l'échantillon est transporté par une phase mobile, un gaz, un liquide ou un fluide supercritique. On force l'écoulement de cette phase mobile à travers une phase stationnaire non miscible immobilisée dans une colonne ou sur une surface solide. Les deux phases sont choisies de manière à ce que les constituants de l'échantillon se partagent à

divers degrés entre les phases mobile et stationnaire. Selon le support stationnaire, on distingue plusieurs types de chromatographies (Skoog *et al.*, 2003 ; Rebstein et Soerensen, 2007).

-Chromatographie sur couches minces

La chromatographie sur couches minces (CCM) représente une des méthodes d'identification largement utilisée dans les monographies de contrôle des drogues végétales à la pharmacopée Française ou Européenne. La CCM, généralement réalisée sur une plaque imprégnée de silice, présente un intérêt qualitatif, mais également semi quantitatif (figure 08). Le solvant ou le mélange de solvants d'éluion est choisi en fonction de la polarité des composés en mélange. À l'issue de l'éluion et de la pulvérisation d'éventuels réactifs de révélation, on définit un rapport frontal (Rf) pour les tâches identifiées. Simple à mettre en œuvre, peu onéreuse, cette technique permet des profils chromatographiques d'extraits à analyser (X) et de substances de référence, en comparant les Rf et les caractéristiques physico-chimiques des différentes tâches (absorption dans l'UV, émission de fluorescence, coloration avec certains révélateurs, etc.) (Boutefnouchet *et al.*, 2020).

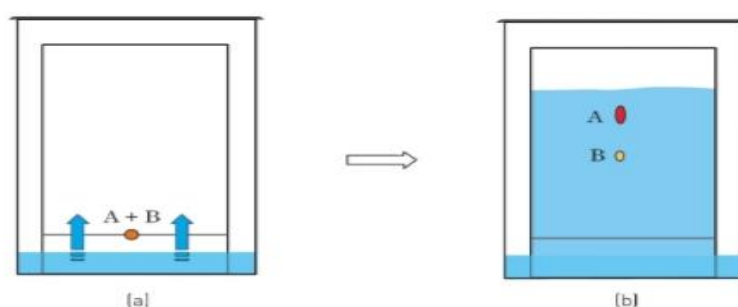


Figure 08 : Chromatographie sur couches minces (CCM) d'un mélange de deux colorants : (a) plaque avant éluion ; (b) plaque après éluion (Rebstein et Soerensen, 2007)

-Chromatographie en phase gazeuse

L'échantillon est vaporisé et injecté en tête de colonne. L'éluion est assurée par un flux de gaz inerte qui sert de phase mobile. Contrairement à la plupart des autres chromatographies, il n'y a pas d'interaction entre les molécules d'analyse et la phase mobile ; la seule fonction de celle-ci est de transporter l'analyte dans la colonne. Il existe deux types de chromatographie en phase gazeuse (CG) : la chromatographie gaz-solide et la chromatographie gaz-liquide. Elle

est très utilisée dans de nombreux domaines, son nom est parfois abrégé en chromatographie en phase gazeuse (Skoog *et al.*, 2003).

La phase stationnaire de la chromatographie gaz-solide est un solide sur lequel la rétention des analytes provient d'une adsorption physique. Les applications de la chromatographie gaz-solide sont limitées à cause de la trop forte rétention des molécules polaires et de la présence de trainées importantes dans les pics d'élution, conséquence du caractère non linéaire du phénomène d'adsorption. La chromatographie gaz-liquide est basée sur le partage de l'analyte entre une phase gazeuse mobile et une phase liquide immobilisée sur la surface d'un support inerte (Skoog *et al.*, 2003).

La méthode la plus adaptée dans notre cas est, compte tenu de la volatilité des constituants des HE, la CG. La facilité de mise en œuvre, le temps d'analyse assez court, la fiabilité des résultats et la possibilité d'automatisation du processus font de la CG une méthode particulièrement bien adaptée aussi bien à l'analyse qualitative qu'à l'analyse quantitative. L'analyse des HE, initialement réalisée sur des colonnes garnies, fait maintenant uniquement appel aux colonnes capillaires, plus efficaces dans un temps plus court et donnant des temps de rétention avec une plus grande précision (Bruneton, 2009).

-Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG/MS)

Si la chromatographie permet à elle seule de séparer correctement les différents constituants d'un mélange, il est néanmoins délicat de se livrer à une interprétation structurale permettant une identification certaine, car les paramètres déduits de la rétention sélective des solutés au travers de la colonne sont souvent lourds à manier et, dans la plupart des cas, peu reliés aux édifices moléculaires organiques. L'idée de coupler une autre méthode physique d'investigation après séparation chromatographique, dans le but d'ajouter à la chromatographie une deuxième dimension analytique, s'est concrétisée dès 1960 dans la combinaison entre la chromatographie en phase gazeuse et la spectrométrie de masse CG-MS (De Maack et Sablier, 1994 in Benabdallah et Drici, 2018).

Le principe de cette méthode consiste à transférer par le gaz vecteur (phase mobile) les composés séparés par chromatographie en phase gazeuse dans le spectromètre de masse au niveau duquel, ils vont être fragmentés en ions de masse variables dont la séparation sera en fonction de leur masse. La comparaison informatique du spectre d'un pic inconnu avec une ou plusieurs bibliothèques de référence permet son identification à condition que la similitude des

spectres, inconnus et références, soit suffisante et que les indices de rétention soient identiques, dans des conditions opératoires comparables (**Desjobert et al., 1997 ; Bruneton, 1999 in Benabdallah et Drici, 2018**).

-Chromatographie liquide à haute performance

La chromatographie liquide à haute performance est la technique de séparation analytique la plus utilisée. Cette popularité est due à sa sensibilité, sa facilité d'adaptation à des analyses quantitatives précises, au fait qu'elle permette la séparation d'espèces non volatiles ou fragiles du point de vue thermique, et par-dessus tout, à son intérêt primordial dans l'industrie, ainsi que dans de nombreux domaines scientifiques et institutionnels. Elle permet, par exemple, l'analyse de composés aussi variés que les acides aminés, les protéines, les acides nucléiques, les hydrocarbures, les hydrates de carbones, les drogues, les terpénoïdes, les pesticides, les antibiotiques, les stéroïdes, les organométalliques, ainsi que de nombreuses substances inorganiques (**Skoog et al., 2003**).

II-*Origanum floribundum* Munby

II-1-Historique et origines

Il existe plusieurs versions sur les origines étymologiques du mot *Origanum*. La première viendrait du grec ‘ori-ganumai’ = qui se plaît dans la montagne, ou ‘ori-ganos’ = éclat de la montagne (**Dubois et al., 2006**). Le mot désigne également une plante d’un parfum pénétrant.

L’origan est l’une des plantes majeures de l’antiquité. Pline (Ier siècle ap. J.C.) lui consacre une place importante dans le livre XX de son histoire naturelle ; détaillant ses formes et ses utilisations (**Littre, 1951 in Sari, 2018**).

L’origan était considéré comme panacée (**Guerin, 1835 in Sari, 2018**), puisqu’on l’utilisait comme anti-infectieux, bactéricide, antitussif, expectorant, carminatif et emménagogue. L’origan est utilisé depuis très longtemps pour soigner les infections respiratoires (en inhalation) mais aussi diverses maladies de la peau (avec ou sans infection). Tisanes et inhalations, compresses, huile et décoction servaient à l’extérieur comme à l’intérieur du corps. En cosmétique, l’origan est utilisé industriellement pour la parfumerie (**Sens-olive, 1979 in Sari, 2018**).

En outre, l’origan était déjà connu de l’Egypte des pharaons pour ses vertus antiseptiques. Les médecins Chinois utilisèrent pendant des siècles l’origan pour soigner divers maux (**Boullard, 2001**). Au moyen âge, les pèlerins mettaient de l’origan dans leurs chaussures pour soulager leurs pieds, tout comme les centurions romains qui connaissaient déjà les propriétés antiseptiques et anti-inflammatoires de cette plante (**Lemhadri et zeggwagh, 2004**).

II-2-Répartition géographique

En Algérie, l’origan est représenté par trois espèces : *Origanum majorana* L., *Origanum floribundum* Munby et *Origanum glandulosum* Desf. Concernant la première espèce, *Origanum majorana* L., son aire de distribution s’étend de l’Europe à la Méditerranée. La deuxième espèce, *Origanum floribundum* Munby est localisée dans l’Atlas Tellien et la grande Kabylie où elle colonise les pâturages surtout en montagne. La troisième espèce est plus répandue dans toutes les régions et est considérée, sur le plan phytogéographique, comme plante endémique, c’est à dire que son aire de répartition est localisée dans deux pays : l’Algérie et la Tunisie (**Sari, 2018**). Le genre *Origanum* est largement présent des îles Canaries et des Açores, à l’Europe du Nord et jusqu’à l’est de l’Asie. On peut le rencontrer

aussi en culture à Cuba ou dans l'île de Réunion, mais la région méditerranéenne représente son aire de distribution la plus importante (**Mahfouf, 2018**) (figure 09).



Figure 09 : Répartition géographique de l'origan dans le monde (Ietswaart, 1980)

II-3- Caractéristiques botaniques

L'origan est un sous-arbrisseau vivace de 30 à 50 cm de hauteur, implanté sur les pentes escarpées du bassin Méditerranéen. Faisant partie de la famille des Lamiaceae, il est très proche de la marjolaine, avec laquelle il partage les mêmes propriétés; ses rameaux rougeâtres, carrés, portent de petites feuilles duveteuses à la forme ovoïde se terminant en pointe. Ses fleurs vont du blanc au mauve selon les espèces (**Quezel et Santa, 1962-1963**).

Les inflorescences sont en épis, eux-mêmes réunis en inflorescences composés (**Richard, 1992 in Sari, 2018**). Le calice de l'origan est tubuleux à cinq dents courtes, bilabié ou non (**Quezel et Santa, 1962-1963**).

- **Description de l'*Origanum floribundum* Munby**

Les caractères morphologiques végétatifs de l'*Origanum floribundum* Munby se particularisent par une tige, prostrée à la base, les jeunes tiges sont décombantes (**Quezel et Santa, 1963**), quadrangulaires et de courts rameaux ou semi persistantes et sont de couleur verdâtre et pubescente (figure 10).

Le rhizome (tige souterraine) est ligneux avec des rejets filamenteux (racine adventive) : ceci lui configurant une bonne accroche, d'où son abondance dans les zones de hautes altitudes (**Daoudi et Dahmani, 2013 in Mahfouf, 2018**).

En ce qui concerne son appareil reproducteur, les fleurs sont hermaphrodites ; elles s'organisent en épis lâches (inflorescence indéfinie), disjointes après la floraison. Le calice a 5 dents courtes, la corolle est à lèvres sensiblement égales. Le fruit est un tetrakène, ovoïde et lisse, de couleur noirâtre (**Daoudi et Dahmani, 2013 in Mahfouf, 2018**).



Figure 10 : *O. floribundum* Munby (Daoudi et Dahmani, 2013 in Mahfouf, 2018)

- **Classification botanique de l'origan selon la flore de QUEZEL et SANTA (1962-1963)**

La systématique de cette plante est la suivante :

- Règne : Plantae
- Embranchement : Spermaphytes
- Sous embranchement : Angiospermes
- Classe : Dicotylédones
- Sous classe : Gamopétales
- Ordre : Lamiales
- Famille : Lamiacées ex. Labiées
- Genre : *Origanum*
- Espèce : *Origanum floribundum* Munby (**Quezel et Santa, 1962-1963**).

II-4- Principales utilisations de l'origan

-Utilisation comme épice :

Différentes parties de la plante (feuilles, sommités fleuries, tiges...etc.) sont actuellement employées en industrie en tant qu'épices. Elle est considérée comme étant l'une des épices les plus répandues dans la région Méditerranéenne (**Carmo et al., 1989 ; Baser et al., 1992, 1993**).

-Utilisation en médecine traditionnelle :

L'HE d'origan possède un effet antiseptique. Elle provoque la menstruation, apaise les nerfs, soulage les maux de tête et de dents. Elle aide aussi à lutter contre les insomnies.

L'origan est aussi un anti-inflammatoire, antispasmodique, expectorant, diurétique et sudorifique. C'est un bon stimulant de l'appareil digestif. Il est particulièrement utile dans diverses affections des voies respiratoires (bronchiques et trachéo-bronchites). Il calme la toux en favorisant l'expectoration (**Chikhoune, 2007**).

II-5-Le Parc National de Chréa (PNC) :

Créé en 1983 et classé en Réserve de Biosphère en 2002, par le programme MAB de l'UNESCO, le PNC est un parc de montagne constituant un carrefour régional et une barrière climatique du Nord contre les influences du Sud de l'Algérie. L'objectif de sa création est de préserver ses sites remarquables et leurs ressources biologiques contre toute atteinte et dégradation (**source : PNC, 2013**). Le parc comprend trois secteurs sont : Chréa, Hammam Melouane et El-Hamdania (figure 11).



Figure 11 : Présentation des secteurs du Parc National de Chréa (Anonyme, 2012 in Bakalem, 2014).

Bioclimat :

L'analyse des facteurs climatiques nous révèle trois étages bioclimatiques :

- Bioclimat subhumide et humide doux et chaud se localisant sur le versant Nord (djebel Feroukha, djebel Tamesguida). Dans cette région se manifestent les influences maritimes, le thuya y est très répandu (**source : PNC, 2013**).

- Bioclimat subhumide et humide tempéré et frais, localement semi-aride frais, caractérisé par une présence massive de chênes sclérophylles (**source : PNC, 2013**).

- Bioclimat essentiellement perhumide frais couvrant les altitudes supérieures (1200-1300m) : Il permet le développement des formations sylvestres, forêts caducifoliées, la zenaie, l'érablière et la cédraie (**source : PNC, 2013**).

Le climat est de type Méditerranéen humide à hiver pluvieux doux et été chaud et sec où l'ambiance montagnarde domine bien la vie et les paysages de cet espace fortement accidenté (**source : PNC, 2013**).

Chapitre II Matériel et méthodes

II-1- Matériel

- Matériel végétal

Les parties aériennes d'*Origanum floribundum* Munby censées être utilisées dans notre étude ont été récoltées au mois de mars 2020 à partir de deux sites qui appartiennent au PNC: El-Hamdania, station sidi rabeH (420m) et Hammam Melouane (1400m). Les deux échantillons ont été séchés à l'ombre dans un endroit sec et aéré à l'abri de la lumière pendant deux semaines (Figure 12). L'identification botanique de la plante a été réalisée par Mr FAROUDJI Rida, inspecteur principal chef de secteur d'El-Hamdania.

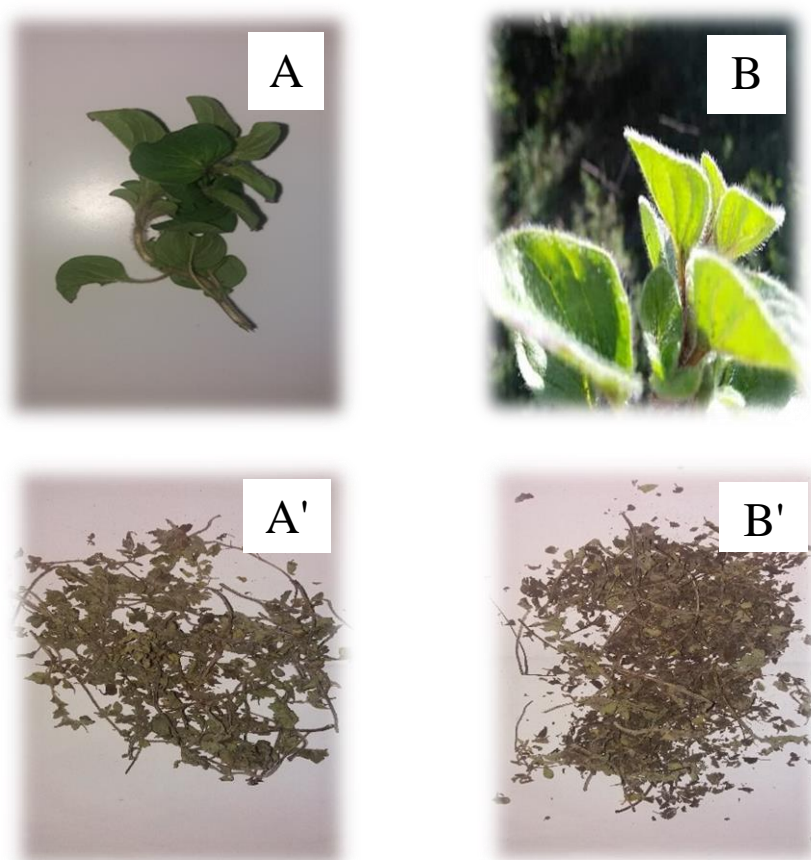


Figure 12 : La plante étudiée *Origanum floribundum* Munby avant (A, B) et après séchage (A', B')

L'origan étudié dans les différents articles et thèse analysés appartiennent à l'espèce *Origanum floribundum* Munby. Il a toutefois été récolté dans des endroits différents et des périodes distinctes. Des échantillons d'*O. floribundum* ont été prélevés dans le PNC à Blida au niveau des sites suivants : Chréa à 1500m (Hazzit et al., 2006 ; Hadjadj et Hazzit, 2020), Hammam Melouane à 200m, 600m et 950m (Hazzit et al., 2006 ; Hadjadj et Hazzit, 2020).

; **Boulaghmen, 2012**), ainsi que dans quatre localités Bouhartite (MS1), Ain terraeur (MS3 et MS5), Dj.Hannous (MS2 et MS6) et Belkreit (MS4) (**Daoudi-Merbeh et al., 2016**).

II-2- Méthodes expérimentales

II-2-1- Technique d'extraction des huiles essentielles

Les parties aériennes d'*O.floribundum* extraites à Hammam Melouane (100g) ont été soumises à une Hydrodistillation pendant une heure à l'aide d'un appareil de type Clevenger (Figure 13). Nous n'avons pas fini notre pratique avec l'origan d'El-Hamdania (En raison de la pandémie de la Covid-19, nous nous sommes contentées de calculer le rendement uniquement).



Figure 13 : Extraction des huiles essentielles d'*O.floribundum* par Hydrodistillation (en utilisant un Clevenger)

Les échantillons étudiés dans les différents articles et thèse analysés représentaient les parties aériennes d'*O.floribundum*. Ces échantillons ont été séchés à l'ombre à une température modérée puis broyés (**Hazzit et al.2006 ; Boulaghmen, 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**) . Les échantillons ont ensuite été soumis à une hydrodistillation au moyen d'un Clevenger (**Hazzit et al., 2006 ; Daoudi- Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020 ; Boulaghmen, 2012**). Ainsi, 100g (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen, 2012 ;**

Daoudi-Merbah et al., 2016) ou 1200g de poudre sèche (**Hadjadj et Hazzit, 2020**) ont été placés dans un ballon avec une quantité d'eau distillée, le ballon a été par la suite porté à ébullition sur un chauffe ballon. L'HE a été récupérée après 2h (**Hadjadj et Hazzit, 2020**) ou 3h d'extraction (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen , 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016**).

Calcul du rendement en huile essentielle :

Le rendement en HE est défini comme étant le rapport entre la masse de l'huile récupérée (MHR) et la masse de la matière végétale sèche (MVS), exprimée avec la même unité de masse multiplié par 100 (**Itoua, 2003 in Boulaghmen, 2012**) comme suit :

$$R\% = (MHR / MVS) \times 100$$

II-2-2-Technique de caractérisation des huiles essentielles

Les différentes huiles essentielles d'*O.floribundum* ont été analysées par la CG/MS dans les conditions opératoires suivantes (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen, 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**) :

- Appareil de type GC 6890 série (HP Agilent Technologies) (**Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020 ; Boulaghmen, 2012 ; Hazzit et al., 2006**).
- Colonne : Stabilwax (PEG) ; longueur : 30m ; diamètre interne du film de la phase : 0,32 mm épaisseur du film de la phase : 1µm (**Hazzit et al., 2006**). Colonne capillaire DB1 (100% méthylpolysiloxane) ; longueur : 60 m ; diamètre interne du film de la phase : 0,25 mm, épaisseur du film de la phase : 0,25µm (**Boulaghmen, 2012**). Colonne capillaire fusionnée-silice avec phase stationnaire apolaire HP5MS ; longueur: 30m ; diamètre interne du film de la phase: 0.25 mm, épaisseur du film de la phase: 0.25µm (**Daoudi- Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**).
- Programmation de la température : isotherme de 3 min à 50 °C, relevé à 2 °C/min à 220 °C, et finalement maintenu isotherme pendant 15 min (**Hazzit et al., 2006**), 6 0°C en isotherme pendant 8 minutes puis augmentation de la température à raison de 2°C/min jusqu'à 280°C puis laissée en isotherme pendant 30 min (**Boulaghmen,**

2012), 60 °C pendant 8 min, augmentant à 2 °C/min vers 280 °C et maintenu à 280 °C pendant 15 min (Daoudi-Merbah et *al.*, 2016), 60 °C pendant 8 min (**Hadjadj et Hazzit, 2020**).

- Volume injecté : 0,2 µl en mode d'injection. Splitless à T= 250°C (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen, 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**).
- Température de détection : 280°C (interface) (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen, 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**).
- Gaz vecteur : hélium (Boulaghmen, 2012) ou azote (**Hazzit et al., 2006 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**).
- Débit du gaz vecteur : 0,5ml / min (**Boulaghmen, 2012 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**) ou 1 ml/min (**Hazzit et al., 2006**).

Spectrométrie de masse :

- Appareil : HP - 5973 (HP Agilent Technologies) (**Hazzit et al., 2006 ; Boulaghmen, 2012**).
Appareil : HP – 6890 (**Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020**).
- Mode de détection : Scan : 30 – 550 uma (**Hazzit et al., 2006 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020 ; Boulaghmen , 2012**).
- Potentiel d'ionisation : 70 eV (**Hazzit et al., 2006 ; Daoudi-Merbah et al., 2016 ; Hadjadj et Hazzit, 2020 ; Boulaghmen, 2012**).
- Pression (Source, analyseur) : 6,75 Psi (**Boulaghmen, 2012**).

Chapitre III Résultats et Discussion

III-1-Résultats

III-1-1- Rendement des huiles essentielles

Le rendement obtenu à partir de l'HE d'*O.floribundum* extrait de la région de Hammam Melouane (1400m) (HOHM) est de 3%. Le rendement de l'origan récolté dans les différents articles et thèse analysés diffère d'un endroit à un autre (Figure 14). En effet, il est de 1,21% aux montagnes de Hammam Melouane (950m) (HM) (Boulaghmen, 2012), alors qu'il est de 2,9% dans la même région mais à une altitude différente (600m) (OFHM). Dans le PNC, au niveau de Chréa (OFC), il est de 3% (Hadjadj et Hazzit, 2020), 5,8% à Bouhartite (MS1), 4,6% à Dj. Hannous (MS2), 2,6% à Ain terraeur (MS3), et le même rendement (2,5%) a été observé dans trois localités, à savoir : Belkreit (MS4), Ain terraeur (MS5) et Dj.Hannous (MS6) (Daoudi-Merbah et al., 2016). Nous remarquons que le rendement le plus élevé est observé au niveau du site de Bouhatite à Chréa (5,8%) et le plus faible est celui des montagnes de Hammam Melouane (1,21%).

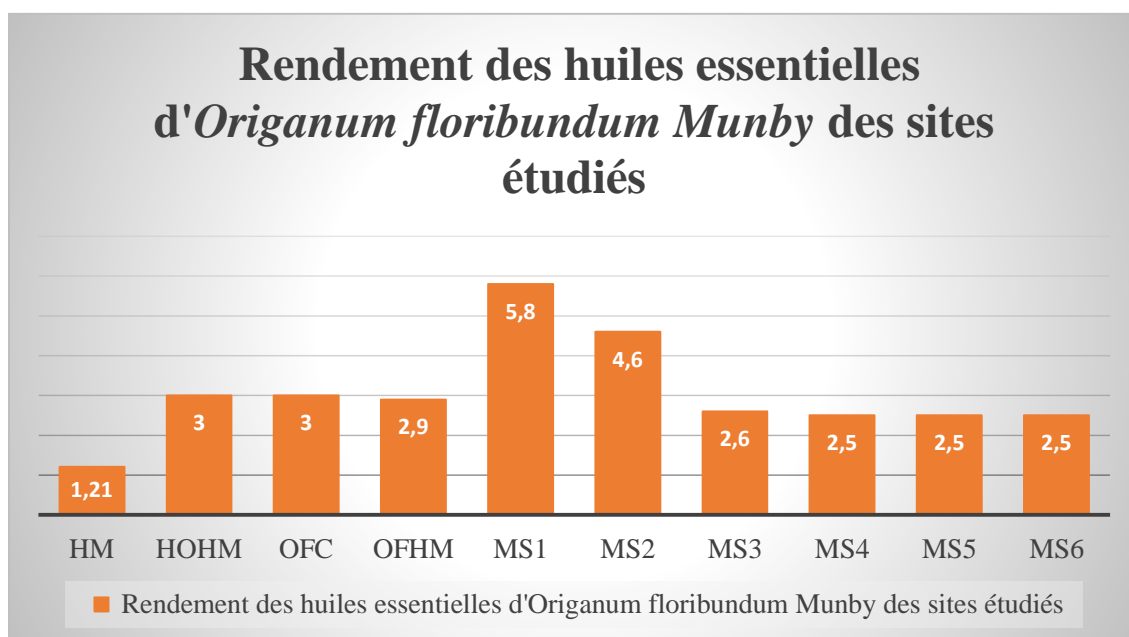


Figure 14 : Répartition des rendements de l'huile essentielle de l'origan selon la région étudiée

III-1-2- Composition chimique des huiles essentielles

Le tableau 1 représente les principaux composés chimiques et les données de la CG des composants identifiés de l'HE d'*O. floribundum* récolté au niveau des différents sites. L'analyse de la composition chimique de l'HE récoltée à partir des six populations (de MS1 à

MS6) a permis d'identifier trente composants chimiques. Les résultats obtenus montrent que le carvacrol est le composé le plus dominant (31,8-60,8 %) dans les six populations (MS1, MS2, MS3, MS4 et MS6). Sa présence est bien marquée dans Bouhatite MS1 (60,8 %) et dans Dj. Hannous MS2 (50,9%) alors qu'à Belkreit MS4, son pourcentage était de 31,8%. Il est suivi par le p-cymène (8,7 - 42,6 %) dont la teneur la plus élevée est retrouvée à Ain terraeur MS5; ensuite le γ -terpinène (13,2 à 25,7%) et le thymol présent en très petites quantités (7,1 – 0,7%) (**Daoudi- Merbah et al., 2016**). La composition chimique des deux échantillons de l'HE de l'origan récolté dans les deux régions (OF1 et OF2) a montré que l'échantillon de Chréa (OF1) est riche en carvacrol (29,6%) et pauvre en thymol (8,4%) par contre, l'échantillon de Hammam Melouane (OF2) est pauvre en carvacrol (1,6%) et riche en thymol (27,9%). Le p-cymène et le γ -terpinène sont présents dans les deux huiles en quantités similaires, mais sont plus importants dans OF2 que OF1 : le p-cymène est présent à 24,9% dans la région OF2 contre 18,5% dans la région OF1, et le γ -terpinène est présent à 22,3% dans la région OF2 contre 13,7% dans la région OF1 (**Hazzit et al., 2006**). Pour les échantillons étudiés à Chréa (OFC) et à Hammam Melouane (OFHM), leur analyse chromatographique a permis d'identifier un total de 47 composants. Toutes les classes sont en quantités proches pour les deux échantillons, à l'exception des sesquiterpènes oxygénés, qui sont absents dans l'huile OFC. Dans les deux huiles ; le principal composé était le p-cymène avec une teneur de 73,4 % pour l'huile OFC et 60,7 % pour l'huile OFHM. Par ailleurs, l'huile OFC a une teneur en carvacrol plus élevée que celle de l'OFHM (9,5 contre 1,1 % respectivement), contrairement au γ -terpinène présent à 12,3% dans OFC et 0,9 % dans OFHM et au thymol présent à 6,1% dans OFC contre 2,5% dans OFHM (**Hadjadj et Hazzit, 2020**). L'analyse des composés de l'HE provenant de Hammam Melouane (950m) par CG/MS a permis d'identifier 43 composés chimiques. Les résultats obtenus montrent que le composé principal est un monoterpène oxygéné (Thymol) avec une teneur de 38,3%, suivi du p-cymène et du γ -terpinene qui ont la même teneur (24,4%), puis du Carvacrol (1,8 %) (**Boulaghmen, 2012**).

Tableau 1 : Composition (%) des huiles essentielles d'*Origanum floribundum* dans les régions étudiées

Les régions étudiées Principaux composés	HM	OF1	OF2	OFC	OFHM	MS1	MS2	MS3	MS4	MS5	MS6
Carvacrol	1,8	29,6	1,6	9,5	1,1	60,8	59,0	40,4	31,8	37,0	50,9
Thymol	38,3	8,4	27,9	2,5	6,1	7,1	2,6	4,2	4,1	1,4	0,7
p-cymène	24,4	18,5	24,9	73,4	60,7	10,1	13,2	24,3	27,3	42,6	8,7
γ -terpinène	24,4	13,7	22,3	0,9	12,3	13,2	14,9	16,2	14,6	3,2	25,7
Composants Identifiés (%)	99,9	96,6	99,7	98,8	99,1	99,4	98,9	99,4	90,0	98,2	98,3

III-2-Discussion

Les différents articles et thèse analysées avaient pour objectif de comparer la composition chimique de l'HE de l'origan récolté dans différentes régions à des périodes distinctes. Ainsi, les meilleurs rendements en HE des six sites étudiés à Chréa ont été enregistrés en MS2 et MS1 (4,6% et 5,8%) respectivement. Ces observations rejoignent celles de (Vokou et al., 1993), qui soulignent que pour *Origanum ssp. hirtum* en Grèce, la hauteur serait le facteur exogène le plus déterminant sur la teneur en HE. Le rendement en HE le plus élevé d'*O. floribundum* de Chréa est très différent de celui rapporté par (Baser et al., 2000), obtenu à partir des feuilles d'*O. floribundum* recueillies dans la même région en juin 1998 (0,7 %). Les différentes périodes de récolte et les parties aériennes traitées pourraient être partiellement responsables de cette différence. Les rendements en HE au PNC à Blida ont augmenté avec l'altitude pour chaque espèce; la même observation a déjà été notée par certains auteurs tels que (Russo et al., 1998) pour l'espèce *O. Vulgare ssp. hirtum* à Calabraise (Italie). Les rendements obtenus chez OFC et OFHM (3% et 2,9% respectivement) ne présentent pas de différence significative. Ces résultats ont été enregistrés ailleurs sur la même espèce (2,0 à 5,8 %) (Hazzit et Baaliouamer, 2009 ; Kerbouche et al., 2015 ; Daoudi-Merbah et al., 2016).

Dans les montagnes de Hammam Melouane (950m), le rendement est relativement élevé (1,21%) comparé à celui rapporté par (**Baser et al., 2000**), qui est de 0,66% pour *O. floribundum* récolté à chréa (Blida). Le rendement obtenu est inférieur à celui cité par (**Hazzit et al., 2006**), qui est de 2,9%. **Houmani et al. (2002)**, mentionne que le rendement, pour la même espèce étudiée et la même méthode utilisée est de 3,1%, ce qui représente pratiquement le double du rendement obtenu. En effet, ce rendement peut être influencé par des paramètres intrinsèques (étapes de croissance) et extrinsèques (conditions pédoclimatiques et méthodes d'extraction) (**Sellami et al., 2009**). Les facteurs abiotiques influençant ce rendement sont la température, l'humidité relative, la durée totale d'insolation et le régime des vents. Le vent exerce une influence directe chez les espèces qui possèdent des structures histologiques superficielles de stockage (cas de l'origan).

Jusqu'à présent, toutes les études menées sur la composition chimique des HE d'*O. floribundum* ont montré que cette espèce est riche en carvacrol et pauvre en thymol. Ainsi, 35% de carvacrol et 9,9% de thymol ont été rapportés par certains auteurs (**Houmani et al., 2002**), tandis que d'autres tels que (**Baser et al., 2000**) ont rapporté un pourcentage de 40 % pour le carvacrol et 1,1 % pour le thymol. Ces résultats sont en partie similaires à ceux de notre échantillon de Chréa. D'autre part, l'échantillon de Hammam Melouane OF2 est caractérisé par le thymol (27,9 %) comme composant principal et le carvacrol est présent en plus petites quantités (1,6 %); ce résultat semble nouveau pour les espèces d'*O. floribundum*, ce qui pourrait définir un nouveau CT. Les résultats des six régions de Chréa (MS1, MS2, MS3, MS4, MS5 et MS6) ont montré qu'elles sont riches en carvacrol (la plus haute teneur est de 60,8%) et pauvres en thymol (la plus faible teneur est de 0,7%). Cette observation rejoint celle de (**Hazzit et al., 2006**), dans une étude similaire sur la même espèce récoltée à la station de Chréa. Dans le cas de son seul et unique congénère Algérien (*Origanum glandulosum*), le thymol représente le composant prédominant (**Hazzit et al., 2006 ; Bekhechi et al., 2008 ; Madani, 2012**). Le carvacrol est élevé dans les habitats d'altitude moyenne (Dj. Hannous et Bouhartite), et dans les habitats alticoles, recevant plus de 1000 mm/an de pluie, correspondant aux populations de Belkreit (MS4) et d'Ain Terraeur (MS3) où la concentration du carvacrol est inférieure à 50 %. Les huiles OFC et OFHM ont marqué la teneur la plus élevée en p-cymène avec 73,4 % et 60,7 % respectivement, et il était considéré comme le composant le plus important. Ce résultat est remarquable, car toutes les études réalisées sur les HE d'échantillons provenant des mêmes sites ont jusqu'à présent rapporté que le carvacrol (**Baser et al., 2000 ; Hazzit et al., 2006 ; Daoudi- Merbah et al., 2016**), et le thymol (**Hazzit et al., 2006**) étaient

les principaux composants des HE de OFC et OFHM, respectivement. En outre, l'huile de l'OFHM était plus riche en γ -terpinène et en thymol que l'huile OFC. La variation de la composition en certains composés dans une plante est tributaire des trois facteurs suivants : les propriétés génétiquement déterminées, l'âge de la plante et l'environnement. L'HE d'*O.floribundum* d'HM est un CT à thymol. Ce dernier composé forme avec le p-cymène et le γ -terpinène la quasi- totalité de l'HE (87,1%). Le carvacrol est le composé majoritaire de l'HE d'*O.floribundum* de Chréa (**Hazzit, 2008 ; Baser et al., 2000 ; Houmani et al., 2002**). Les deux composés généralement majoritaires des HE du genre *Origanum* (thymol et carvacrol) peuvent parfois être rencontrés dans des proportions plus ou moins similaires, c'est le cas de l'échantillon d'*Origanum glandulosum* de Bejaia (**Chikhoune, 2007**). Des similarités et des différences pouvant être très importantes au niveau de la même espèce et au sein des autres espèces du même genre. Cependant, dans tous les cas le thymol, le carvacrol et leurs précurseurs biogénétiques (p-cymène et γ -terpinène) forment la majeure partie des HE d'Origan avec une teneur de plus de 70%.

Conclusion

Dans le but de déterminer la composition chimique de l'HE de l'origan récolté dans différentes régions, et suite au concours des circonstances liées à la pandémie mondiale de la COVID-19 qui nous a contraintes à revoir notre objectif, l'analyse d'articles récents et de thèse représentait une bonne alternative qui nous a permises de répondre, du moins partiellement, à la problématique initialement posée pour notre étude.

Après analyse et interprétation approfondies des articles et thèse choisis, traitant la même thématique, nous sommes arrivées aux conclusions suivantes :

- Les rendements les plus importants des huiles essentielles d'*O.floribundum* Munby apparaissent à des altitudes moyennes.
- Existence d'une variabilité dans la composition chimique des HE extraites à partir de la même espèce et ce, dépendamment de la région de la récolte.
- Les principaux composants de ces HE étaient essentiellement carvacrol, thymol, p-cymène et γ -terpinène. Chacun de ces derniers était le composant principal qui distingue l'une des HE des régions étudiées. C'est ce qui montre qu'il y a une variabilité chimique des HE d'*O.floribundum*, même pour des échantillons issus d'un même lieu et des positions différentes.
- Cette variation dans les rendements ainsi que la composition chimique des HE est due à plusieurs facteurs tels que : le cycle végétal de la plante, la période de la récolte, le séchage de l'espèce étudiée ainsi que les différentes altitudes des régions sélectionnées.

En guise de perspectives, il serait intéressant de compléter ce travail par l'extraction des HE d'*O.floribundum* récolté au PNC dans différents endroits et d'effectuer l'analyse du sol pour évaluer l'impact de ce dernier sur le rendement et la composition chimique des HE. Il serait également intéressant d'évaluer et de comparer l'effet de la composition chimique des HE de l'origan sur quelques activités biologiques à l'instar de l'activité antioxydante et antimicrobienne afin de déterminer si celles-ci seront influencées.

Références bibliographiques

- AIACHE, J.-M., CARNAT, A.-P., COUDERT, P. & TEULADE, J.-C. 2012. *Sources actuelles et futures du médicament-Chimie du médicament (Cours+ QCM)*, Elsevier Health Sciences.
- BAKKALI, F., AVERBECK, S., AVERBECK, D. & IDAOMAR, M. 2008. Biological effects of essential oils—a review. *Food and chemical toxicology*, 46, 446-475.
- BARDEAU, F. 2009. *Les huiles essentielles*, Fernand Lanore.
- BASER, K.H.C. & BUCHBAUER, G. 2010. Handbook of essential oils: Science, Technology, and Applications. Ed. Taylor and Francis Group, LLC. United States of America. p: 994.cité in (Bouguerra A., 2011-2012).
- BASER, K. H. C. Kürkçüoğlu, M. HOUMANI, Z. & ABED, I. 2000. Composition of the essential oil of *Origanum floribundum* Munby from Algeria. *J. Essent. Oil Res.* 12, 753-756.
- BASER, K.H.C . OZEK, T. KURKCUOGLU, M. & TUMEN, G. 1992. Composition of the essential oil of *Origanum sipyleum* of Turkish origan. *Journal of Essential Oil Research*, 4,139-142.
- BAKALEM, R. 2014. Inventaire de *culicidae* dans la région d'El-Hamdania (Parc National de Chréa-Blida-) et comparaison de l'efficacité de deux huiles essentielles *Rosmarinus officinalis*, *Origanum floribondum* avec le Fénitrothion contre des populations de larves de *Culex pipiens* en controlées. Thèse de Diplôme de Master en Biologie, option Entomologie médicale, Université Saad Dahleb-Blida.
- BEKHECHI, C., ATIK-BEKKARA, F. & ABDELOUAHID, D. 2008. Composition et activité antibactérienne des huiles essentielles d'*Origanum glandulosum* d'Algérie. *Phytothérapie*, 6, 153-159.
- BEKKA, F. 2009. Effet des huiles essentielles d'*Origanum glandulosum* Desf. et d'*Artémisia herba alba* Asso. sur des bactéries multirésistantes. Thèse de Magister en Microbiologie, option Microbiologie Appliquée, Université Abderrahmane MIRA de Béjaia
- BENABDALLAH, Z. & DRICI, H. 2018. L'étude de la variation de la composition chimique d'huile essentielles d'*Eucalyplus globulus* cueillie des différentes régions d'Algérie. Thèse de Diplôme de Master en Sciences biologiques, option Bioclimatologie, Université Djilali Bounaama-Khemis Miliana.

- BENCHEIKH, S. 2017. Etude de l'activité des huiles essentielles de la plante *Teucrium polium ssp Aurasianum Labiatae*. Thèse de Doctorat en Génie des procédés, Université Kasdi Merbah-Ouargla.
- BENDAHOU, M. MUSELLI, A. GRIGNON-DUBOIS, M. BENYOUCEF, M. DESJOBERT, JM. BERNARDINI, J.F. & COSTA, J. 2007. Antimicrobial activity and chemical composition of *Origanum glandulosum Desf.* essential oil and extract obtained by microwave extraction : Comparison with hydrodistillation. *Food Chem.* 106, 132-139.
- BESOMBES, C. 2008. Contribution à l'étude des phénomènes d'extraction hydrothermomécanique d'herbes aromatiques. Applications généralisées. Thèse de doctorat. Université de La Rochelle, p : 289.cité in (Bouguerra A., 2011-2012).
- BERNAOUI, Y. & LOUETRI, K. 2018. Caractérisation phytochimique du Genre *Origanum* et leur bioactivités. Thèse de Diplôme de Master en Sciences Biologiques, option Biochimie Appliquée, Université Echahid Hamma Lakhdar -Eloued.
- BOUGUERRA, A. 2012. Etude des activités biologiques de l'huile essentielle extraite des grains de *Foeniculum vulgare* Mill. en vue de son utilisation comme conservateur alimentaire. Mémoire de Magister en Sciences Alimentaires. Université Mentouri Constantine. p: 128.
- BOUKHOBZA, F. & GOETZ, P. 2014. *Phytothérapie en odontologie-Editions CdP*, Initiatives Santé.
- BOULAGHMEN, F.2012. Extraction de l'huile essentielle de l'origan. Thèse de Magister en Biologie, option Biotechnologies Végétales, Université Saad Dahleb -Blida.
- BOULLARD, B. 2001. Plantes médicinales du monde - croyances et réalités - 660 pages, Paris, *Ed.* ESTEM.
- BOUTEFNOUCHET, S., CHAMPY, P., GIRARD, C., OLIVIER, G., HENNEBELLE, T., POUPOU, E. & SEGUIN, E. 2020. Pharmacognosie: Obtention et propriétés des substances actives médicamenteuses d'origine naturelle.
- BOUTEKEDJIRET, C., BENTAHAR, F., BELABBES, R. & BESSIERE, J. 2003. Extraction of rosemary essential oil by steam distillation and hydrodistillation. *Flavour and Fragrance Journal*, 18, 481-484.
- BRUNETON, J. Pharmacognosie, phytochimie, plantes médicinales. techniques et documentation, 4ème édition, 2009, Lavoisier (France), p 288.(ISBN: 978-2-7430-1188-8). D.
- CAMPEAU, N. & REBIERE, C. 2018. Areter la douleur secrets et solutions.

- CARMO, M.M. FRAZAO, S. & VENANCIO, F.1989. The chemical composition of Portuguese *Origanum vulgare* oils. *Journal of Essential Oil Research*, 1,69-71.
- CHALCHAT, J.K. CARRY, L. P., MENUT, C. LAMATY, G. MALHURET, R. and Chopineau J. 1997. Correlation between chemical composition and antimicrobial activity. VI. Activity of some African essential oils. *J. Essent. Oil Res.*, 9: 67-75.
- CHIKHOUNE, A. 2007. Huiles essentielles de thym et d'origan. Thèse de Magister en Agronomie, option Sciences alimentaires, Institut National Agronomique El Harrach, Alger, 178P.
- COLLET, E. 2018. *Progrès en Dermato-Allergologie GERDA 2018: 39e Cours d'actualisation, Dijon 2018*, John Libbey Eurotext.
- COUIC-MARINIER, F. & LOBSTEIN, A. 2013. Les huiles essentielles gagnent du terrain à l'officine. *Actualités pharmaceutiques*, 52, 18-21.
- DAOUDI-MERBAH, F., HAZZIT, M. & DAHMANI-MEGREROUCHE, M. 2016. Influence of morphological variability and habitat on the chemical composition of essential Oils of an Algerian endemic *Origanum* species (*Origanum floribundum* Munby). *Chemistry & biodiversity*, 13, 1088-1094.
- DE GENTILE, L. 2012. *Protection personnelle antivectorielle*, IRD éditions.
- DESJOBERT, J. M. BIANCHINI, A. TOMMY, P. COSTA J. et BERNARDINI, A. F. 1997. Etude d'huiles essentielles par couplage chromatographie en phase gazeuse / spectrométrie de masse. Application à la valorisation des plantes de la flore Corse. *Analysis*, 25 (6) : 13-16.
- DUBOIS, J. MITTRAND, H. & DAUZAT, A. 2006. Dictionnaire étymologique et historique du français, Ed. Larousse, 1442 pages.
- FADIL, M., FARAH, A., IHSSANE, B., HALOUI, T. & RACHIQ, S. 2015. Optimisation des paramètres influençant l'hydrodistillation de *Rosmarinus officinalis* L. par la méthodologie de surface de réponse. *J. Mater. Environ. Sci*, 6, 2346-2357.
- FICELLE.2019.Huile essentielle au quotidien.
- FUINEL.2003. Plantes de vie. Du corps et de l'esprit.
- GRIGONIS, D. VENSKUTONIS, PR. SIVIK, B. SANDAHL, M. ESKIISSON, CS. 2005. Comparison of different extraction techniques for isolation of antioxidants from sweet grass (*Hierochloë odorata*). *The Journal of Supercritical Fluids*. 33 (3), 223-233.
- GUEFA, S., OUNAISSIA,N., 2015. Contribution à l'étude d'activités antioxydante et anti-inflammatoire de certaines huiles essentielles. Thèse de Diplôme de Master en Biologie, option Qualité des produits et sécurité alimentaire, Université 8 Mai 1945 -Guelma.

- HADJADJ, N. & HAZZIT, M. 2020. Analysis and Antioxidant Activity of Essential Oils and Methanol Extracts of *Origanum floribundum* Munby. *Journal of Essential Oil Bearing Plants*, 23, 85-96.
- HAZZIT, M. 2008. Etude de la composition chimique des huiles essentielles de différentes espèces de thym et d'origan poussant en Algérie. Thèse de Doctorat en Chimie, Université des sciences et de la technologie Houari Boumedienne, Alger, 204P.
- HAZZIT, M. & BAALIOUAMER, A. 2009. Composition of the essential oils of the leaves and flowers of *Thymus palleescens* de Noé and *Origanum floribundum* Munby from Algeria. *J. Essent. Oil Res.* 21(3): 267-270.
- HAZZIT, M., BAALIOUAMER, A., FALEIRO, M. L. & MIGUEL, M. G. 2006. Composition of the essential oils of *Thymus* and *Origanum* species from Algeria and their antioxidant and antimicrobial activities. *Journal of agricultural and food chemistry*, 54, 6314-6321.
- HOUMANI, Z., AZZOU DJ, S., NAXAKIS, G. & SKOULA, M. 2002. The Essential Oil Composition of Algerian Zaâtar: *Origanum spp.* and *Thymus spp.* *Journal of Herbs, Spices & Medicinal Plants*, 9, 275-280.
- IETSWAART, J.H.A. 1980. Taxonomic Revision of the genus *Origanum* (Labiatae), Leiden Botanical Series, Vol 4, Leiden University Press, The Hague, Netherlands.
- KERBOUCHE, L., HAZZIT, M., FERHAT, M.A., BAALIOUAMER, A. & Miguel, M.G. 2015. Biological activities of essential oils and ethanol extracts of *Teucrium polium* subsp. *capitatum* (L.) Briq. and *Origanum floribundum* Munby. *J. Essent. Oil-Bear. Plants*. 18 (5): 1197-1208.
- LAGUNEZ-RIVERA, L. 2006 . Etude de l'extraction de métabolites secondaires de différentes matières végétales en réacteur chauffe par induction thermomagnétique directe. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- LAMAMRA, M. 2018. Contribution à l'étude de la composition chimique et de l'activité antimicrobienne des huiles essentielles de *Tinguarra sicula* (L.) Parl. et de *Filipendula hexapetala* Gibb. Thèse de Magister en Biologie, option Valorisation des Ressources Végétales, Université Ferhat Abbas -Setif.
- LANGLOIS, C. 2006. *Terrain, n° 46/mars 2006: Effets spéciaux et artifices*, Les Editions de la MSH.
- LEMHADRI, A. & ZEGGWAGH, NA. 2004. Anti-hyperglycaemic activity of the aqueous extract of *Origanum vulgare* growing wild in Tafilalet region. *J. Ethnopharmacol*, 92, 251-256.

- LUCCHESI, ME. SMADJA, J. BRADSHAW, S. LOUW, W. CHEMAT, F. 2007. Solvent free microwave extraction of *Elletaria cardamomum* L : A multivariate study of a new technique for the extraction of essential oil. *J. of Food Engineer.* 79, 1079-1086.
- MADANI, S. 2012. Etude biologique et phytochimique de l'Origan : *Origanum vulgare* L *subsp. glandulosum* (Desf.) Ietswaart espèce endémique. Ed. Paf, France, p.23.
- MAHFOUF, N. 2018. Étude de l'espèce *Origanum vulgare* L. Thèse de Doctorat en Biologie, Université Chadli Benjedid-El Taraf.
- MAHFOUF.2010. Recherche sur les huiles essentielles : le cas de l'Origan.
- MENGAL, P. BEH, D. BELLIDO, G.M. MONPON, B. 1993. VHMD : extraction d'huile essentielle par micro-ondes. *Parfums Cosmétiques Arômes.* 114, 66-67.
- POURMORTAZAVI, S.M. & HAJIMIRSADEGHI, S.S. 2007. Supercritical fluid extraction in plant essential and volatile oil analysis. *Journal of Chromatography A.* 1163: 2–24.
- PORTER, N. 2001. Essential oils and their production. *Crop & Food Research.* Number 39.
- QUEZEL, P. & SANTA, S. 1963. Nouvelle Flore de l'Algérie et des régions désertiques méridionales. CNRS (Ed.), Paris. Tome 2.
- REBSTEIN, M. & SOERENSEN, C. 2007. *Chimie: préparation au bac et à la maturité*, PPUR presses polytechniques.
- REIGHARD, TS. & OLESIK, SV. 2006. Bridging the Gap between supercritical fluid extraction and liquid extraction techniques : alternative approaches of the extraction of solid and liquid environmental matrices. *Critical Reviews in Analytical Chemistry.* 26 (2 et 3), 1-39.
- REVERCHON, E. DELLA PORTA, G. & Senatore, F. 1995. Supercritical CO2 Extraction and Fractionation of *Lavender* Essential Oil and Waxes. *Journal Agriculture Food Chemistry.* 43 : 1654-1658.
- REVERCHON, E. & DE MARCO, I. 2006. Supercritical fluid extraction and fractionation of natural matter. *J. of Supercritical Fluids.* 38: 146–166.
- RIBEYRE, T. 2014. *Chimie PC/PC* Tout-en-un-2e année: Un accompagnement au quotidien*, De Boeck Supérieur.
- RIOTTE, B. 2015. Mon guide Huiles essentielles.
- RUSSO, M., GALLETTI, G. C., BOCCHINI, P. & CARNACINI, A. 1998. Essential Oil Chemical Composition of Wild Populations of Italian Oregano Spice (*Origanum vulgare* ssp. *hirtum* (Link) Ietswaart): A Preliminary Evaluation of Their Use in Chemotaxonomy by Cluster Analysis. 1. Inflorescences. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 46, 3741-3746.

- SARI, M. 2018. Étude biologique et phytochimique de l'origan *Origanum vulgare* L. *spp glandulosum* Desf. Ietswaart) espèce endémique d'Algérie-Tunisie. Thèse de Doctorat en Biologie, Université Ferhat Abbas-Setif.
- SELLAMI, I. H., MAAMOURI, E., CHAHED, T., WANNES, W. A., KCHOUK, M. E. & MARZOUK, B. 2009. Effect of growth stage on the content and composition of the essential oil and phenolic fraction of sweet marjoram (*Origanum majorana* L.). *Industrial Crops and Products*, 30, 395-402.
- SILVANT, C. 2015. *L'Aromathérapie: La nature au service de l'humanité*, Editions Publibook.
- SKOOG, D. A., HOLLER, F. J. & NIEMAN, T. A. 2003. *Principes d'analyse instrumentale*, De Boeck Supérieur.
- VALNET, J. 1984. Aromathérapie. Traitement des maladies par les essences des plantes. Maloine S.A. éditeur. Paris p 544
- VOKOU, D., KOKKINI, S. & BESSIERE, J.M. 1993. *Syst. Ecol.* 21, 287.
- WANG, Z. DING, L, Li T. ZHOU, X. WANG, L. ZHANG, H. LIU ,L. Li Y. LIU, Z, WANG, H, ZENG, H, He H .2006. Improved solvent- free microwave extraction of essential oil from dried *Cuminum luminum cuminum* L and *Zanthoxylum bungeanum Maxim.*J chromatogr...,A 1102:11-47

Annexe

Cette partie regroupe toutes les étapes faites au centre de recherche scientifique et technique (CPAPC) avant que le confinement soit imposé



1. Mesure du poids des parties aériennes d'*O.floribundum* récolté à Hammam Melouane (100g)



2. Ajout de 800 ml d'eau distillée aux parties aériennes d'*O.floribundum*



3. Le début de l'eau bouillante à l'intérieur du ballon



4. Le début de formation des huiles essentielles d'*O.floribundum* après 23 minutes



L'huile
essentielle



5. La formation des huiles essentielles d'*O.floribundum* après environ une heure



L'huile essentielle

L'hydrolat

6. Récupération de l'huile essentielle et l'hydrolat