

Spécificité de l'huile essentielle de romarin spontané (*Rosmarinus officinalis* L.) de Corse et de Sardaigne

Specificity of rosemary (*Rosmarinus officinalis* L.) essential oil indigenous to Corsica and Sardinia islands

Joseph Casanova¹, Félix Tomi¹

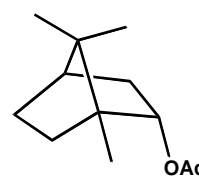
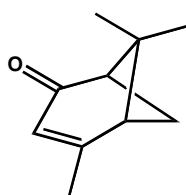
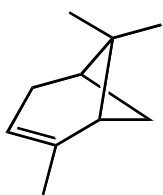
¹ Université de Corse-CNRS, UMR SPE 6134, Equipe Chimie-Biomasse, Ajaccio, France
joseph.casanova@wanadoo.fr, tomi_f@univ-corse.fr

RÉSUMÉ. La spécificité du romarin (*Rosmarinus officinalis* L) de Corse et de Sardaigne est connue de longue date et l'huile essentielle (HE) qui en est extraite a été une des premières à recevoir la mention « HE chémotypée ». Elle est connue sous le vocable « HE de romarin à verbénone » et effectivement ce composé est présent dans l'HE à des teneurs appréciables, à côté de l' α -pinène et de l'acétate de bornyle. Dans cette revue nous nous proposons de faire le point sur les diverses compositions décrites dans la littérature, en montrant que les trois composés représentatifs de l'HE du romarin Corso-Sarde sont effectivement présents dans tous les échantillons décrits mais que leurs teneurs peuvent varier de manière substantielle, que ce soient dans les HE « collectives » préparées par des professionnels ou des HE « individuelles » préparées au laboratoire. Nous terminons avec un rapide tour d'horizon des HE de romarin récolté hors de Corse et de Sardaigne et qui contiennent de la verbénone et/ou de l'acétate de bornyle en quantité appréciable.

ABSTRACT. The distinctiveness of *Rosmarinus officinalis* L from Corsica and Sardinia is known since a long time and the essential oil (EO) isolated from flowering tops is known as "Rosemary EO, verbenone chemotype". Verbenone is accompanied by α -pinene and bornyl acetate. The aim of this review is to compile the various compositions reported in the literature, all of these containing the three representative components but in concentrations which substantially varied from sample to sample (collective oil samples from industrial sources or laboratory made individual samples). Finally, oil samples containing verbenone and/or bornyl acetate, isolated from plants growing in other countries than Corsica and Sardinia are briefly reported.

MOTS-CLÉS. *Rosmarinus officinalis* L, huile essentielle de romarin, huile essentielle chémotypée, verbénone, acétate de bornyle, Corse, Sardaigne.

KEYWORDS. *Rosmarinus officinalis* L, Rosemary essential oil, chemotyped essential oil, verbenone, bornyl acetate, Corsica, Sardinia.



GRAPHICAL ABSTRACT.

Rosmarinus officinalis essential oil from Corsica and Sardinia differs from others by its substantial content of α -pinene (left), verbenone (center) and bornyl acetate (right). Various compositions, reported in the literature, are compiled in this review paper and demonstrate that though the three representative above components are always present, their contents varied substantially from sample to sample.

1. Introduction

Bien qu'étant les plus grandes îles de la Méditerranée occidentale et distantes seulement d'une douzaine de kilomètres, la Corse et la Sardaigne, les « îles sœurs » se différencient par leur géographie. Ainsi, la chaîne montagneuse qui traverse la Corse dans sa diagonale avec un sommet qui culmine à 2710 m, lui confère un climat méditerranéen très particulier. Au niveau de la flore, on observe une énorme richesse avec de nombreuses espèces endémiques corses ou corso-sardes. On trouve également, dans les deux îles de nombreuses espèces qui poussent à l'état spontané sur tout le pourtour méditerranéen. Parmi celles-ci, le romarin, *Rosmarinus officinalis* Linneaus (Lamiacées ou Labiées, « rosumarinu » en Corse), également présent dans d'autres îles (Baléares, Sicile), ainsi qu'en Afrique et en Asie. Le romarin est un arbrisseau pouvant atteindre 1,5 m de haut, poussant sur des terrains arides et rocailleux. Dans certains biotopes de Corse, on le trouve au contraire aplati sur le sol, ce romarin dit « rampant » est apprécié pour ses propriétés ornementales. Le romarin possède des feuilles persistantes, allongées, d'un vert sombre et il fleurit au printemps et en automne en donnant des fleurs allant du bleu clair au violet. Le romarin de Corse et de Sardaigne se différencie des romarins de Provence, Languedoc, Espagne, Maroc, par des feuilles plus petites, plus étroites, d'un vert plus clair, et par des fleurs d'un bleu presque mauve. Il est très utilisé dans la cuisine méditerranéenne.^[1] L'entraînement à la vapeur des sommités fleuries produit une huile essentielle (HE, rendement moyen de l'ordre de 5-6 litre/tonne), utilisée en parfumerie et très appréciée en aromathérapie. Utile pour le traitement des bronchites chroniques, cette HE trouve aussi des indications dans la petite faiblesse hépatique ainsi que dans les intoxications hépatiques ponctuelles. L'HE de romarin corse est devenue un tonique digestif classique en aromathérapie.^[1] L'hydrolat de romarin corse a trouvé des usages intéressants dans certaines cures dépuratives, utile à des personnes en surcharge hépatique. Schématiquement, le romarin Corso-Sarde a des propriétés anti-inflammatoires, c'est un stimulant général et un régulateur du système nerveux, tandis que le romarin d'Espagne présente des propriétés décongestionnantes de la sphère respiratoire et celui du Maroc a des propriétés expectorantes et concerne aussi les sphères hépatobiliaire et digestive.^[1]

La composition chimique de l'huile essentielle de romarin a fait l'objet de nombreuses études, répertoriées par Lawrence.^[2] Il s'agit d'une HE riche en monoterpènes, tout particulièrement l' α -pinène, le 1,8-cinéole et le camphre (mis en évidence dès 1860 par Lallemand) et à un degré moindre, le camphène, le limonène, le bornéol, l'acétate de bornyle et la verbénone. Il apparaît clairement que l'HE de romarin jouit d'une très importante variabilité chimique et c'est une des premières HE ayant bénéficié de la mention « HE chémotypée ». D'ailleurs, dès 1973, Granger et coll.^[3] classèrent les HE de romarin selon 4 types chimiques : 1) cinéole, 2) camphre-bornéol, 3) myrcène, 4) α -pinène-verbénone. Si on entre un peu plus dans le détail, et en faisant abstraction de quelques rares compositions inhabituelles qui ont été décrites, on peut différencier :

- i) Les HE riches en 1,8-cinéole, contenant plus de 40% de ce composé. Il s'agit d'HE originaires du Maroc, Tunisie, Turquie, Grèce, Yougoslavie, Italie, France) ;^[2]
- ii) Celles qui présentent des teneurs comparables en α -pinène, 1,8-cinéole et camphre (HE de France, Espagne, Italie, Grèce, Bulgarie) ;^[2]
- iii) Une composition dominée par le myrcène a été observée au Portugal, au sud de l'Espagne, et en Argentine ;^[2]
- iv) Enfin, le romarin poussant à l'état spontané en Corse et en Sardaigne produit une HE dont la composition est dominée par l' α -pinène, l'acétate de bornyle et la verbénone. Cette HE est connue et commercialisée sous le nom de « HE de romarin à verbénone », bien que ce dernier composé ne soit pas en général majoritaire. La renommée de cette HE est principalement due à l'intérêt qu'elle présente en aromathérapie.^[1,4]

La spécificité de la composition de l'HE de romarin de Corse et de Sardaigne est connue depuis longtemps. En 1980, Falchi Delitala et Soccolini^[5] ont résumé les travaux sur l'HE de romarin de

Sardaigne depuis un demi-siècle. Ainsi, dès 1927, Craveri notait que les HE de romarin de Sardaigne se distinguaient de celles du romarin d'Italie continentale par la valeur élevée du pouvoir rotatoire (jusqu'à +18°) et par leur teneur élevée en esters (10-13%) et en alcools (jusqu'à 25%). A la même époque (1925), Puxeddu identifiait l' α -pinène, le camphène, le cinéole et le camphre. Une vingtaine d'années plus tard (1946), la présence de ces composés était confirmée et quantifiée par Rattu et Tuveri: α -pinène (44%), camphre (9,8%), cinéole (9,2%) mais aussi agrémentée du bornéol (18,8%) et de l'acétate de bornyle (17,2%).

Ce n'est qu'au début des années 1970 qu'un nouvel élan a été donné à la caractérisation de l'HE de romarin Corso-Sarde. Ainsi, Granger,^[3] utilisant l'entraînement à la vapeur pour produire l'HE et la CPG pour l'analyser, a décrit pour la première fois semble-t-il la composition de trois échantillons d'HE de romarin de Corse. Les deux premiers échantillons se caractérisent par la prédominance de l' α -pinène (34% et 27%) et de la verbénone (37% et 29%) qui est citée pour la première fois à notre connaissance, tandis que le troisième échantillon contient à côté des deux composés précédents (10% et 16%, respectivement) le cinéole (18%) et le camphre (7%). La teneur en bornéol atteint 6% dans un des échantillons. Cependant, la présence d'acétate de bornyle n'est pas mentionnée. Quelques années plus tard, Falchi Delitala et Soccolini^[5] identifièrent et quantifièrent, dans une HE originaire de Tramariglio (Alghero, Sardaigne) l' α -pinène (32,3%), le cinéole et *p*-cymène, (17,0% au total) et l'acétate de bornyle (11,8%), puis le camphène (8,9%), le camphre (5,9%), le terpinen-4-ol (5,2%), le myrcène (4,7%), le bornéol (4,4%), le limonène (3,9%), le β -pinène (3,8%) et le linalol (0,9%). Par contre, la verbénone n'est pas signalée.

Les travaux relatifs à la connaissance de l'HE de romarin Corso-Sarde reprirent une quinzaine d'années plus tard et démontrèrent la concomitance des trois composés importants, α -pinène, verbénone et acétate de bornyle. Il est maintenant admis que l'HE de romarin corso-sarde contient, sinon majoritairement tout au moins à des teneurs appréciables, ces trois composés, mais aussi bien qu'en quantités moindres, le camphène, le β -pinène, le *p*-cymène, le limonène, le cinéole, le camphre, le linalol et le bornéol. Néanmoins, les proportions de ces composés varient considérablement, surtout lorsqu'il s'agit d'échantillons d'HE obtenus à partir de pieds individuels, sans pour autant que l'on puisse parler de variabilité chimique. Nous nous proposons donc de résumer ci-dessous les principales compositions d'HE de romarin Corso-Sarde décrites dans la littérature. L'identification des constituants a été réalisée par CPG (Indices de rétention), CPG-SM et éventuellement par RMN du carbone-13. La quantification a été réalisée en général par CPG(FID), avec ou sans utilisation de facteurs correctifs.

2. HE de romarin de Corse

Au début des années 90, des études menées dans notre laboratoire, dans le cadre d'un travail destiné à démontrer l'intérêt de la RMN du ¹³C comme outil d'analyse des HE, décrivent la composition de deux échantillons commerciaux d'HE de romarin de Corse^[6,7] (tableau 1). L' α -pinène, la verbénone et l'acétate de bornyle sont présents à des teneurs élevées (33,1% et 22,0% ; 6,4% et 10,7% ; 9,9% et 8,7%, respectivement). Les autres composés présents à des teneurs appréciables sont le camphène (9,0% et 6,3%), le β -pinène (1,6% et 3,9%), le *p*-cymène (2,1% et 1,2%), le limonène (4,0% et 3,1%), le cinéole (6,7% et 3,0%), le linalol (2,0% et 3,4%), le camphre (5,3% et 11,8%), et enfin le bornéol (8,4% et 3,2%). L'identification et la quantification du β -phellandrène (3,0%) et du cinéole (3,0%) qui co-éluent sur les deux colonnes de CPG, est réalisée par combinaison de la CPG et de la RMN du carbone-13. Divers monoterpènes ont également été identifiés dans le deuxième échantillon : myrcène, α -phellandrène, α -terpinène, terpinolène, terpinen-4-ol, pinocarvéol et géraniol.

Echantillons		C1 ^a (1)	C2 ^a (1)	C3 ^a (19)	C4 ^a (2)	C5 ^b (12)	C6 ^b (12)	C7 ^b (12)	C8 ^b (12)	C9 ^b (12)	C10 ^b (12)
Constituants/Ref		[6]	[7]	[8]	[8]	[9]	[9]	[9]	[9]	[9]	[9]
α-Pinène	936	33,1	22,0	30,7-43,7	14,9/20,8	12,9-35,6^c	27,7-41,0	19,8-35,0	9,6-38,3	25,7-40,7	15,5-39,2
Camphène	950	9,0	6,3	5,8-11,5	2,6/3,8	3,6-7,4	4,3-10,0	4,1-7,0	5,1-10,4	4,6-9,3	6,1-8,9
β-Pinène	978	1,6	3,9	0,9-3,2	1,1/1,5	0,9-2,4	1,0-4,2	1,7-2,6	0,5-2,4	1,3-3,3	1,8-3,8
Verbénène	982					0,2-1,6	0,8-1,5	0,8-1,6	0,3-2,3	1,0-2,9	0-1,4
Myrcène	987		3,4	0,9-1,9	0,9/1,0	0,8-3,3	0,5-4,0	1,0-2,2	0,6-3,9	0,8-3,7	0,9-3,8
α-phellandrène	1002		1,3	0-1,3		0-1,3	0-1,3		0-0,3	0-0,4	
p-Cymène	1015	2,1	1,2	1,1-2,8	1,1/1,0	0,8-4,1	0,8-2,2	0,8-2,5	1,0-2,6	0,7-1,5	0,9-2,5
Limonène	1024	4,0	3,1	3,1-5,3	1,8/2,2	2,9-9,8	2,0-4,2	2,9-3,7	2,5-4,1	2,6-4,2	2,9-5,0
1,8-Cinéole	1023	6,7	3,0	4,0-8,1	3,9-5,2	0,6-18,3*	0,4-11,3*	0,9-11,6* ^d	0-15,3*	0,3-10,3*	5,0-13,9*
γ-terpinène	1051		1,9	0-1,2	0,8/1,0	0,2-0,9	0,4-1,0	0-1,2	0-1,5	0,2-0,8	0,1-1,1
Linalol	1086	2,0	3,4	1,4-2,6	1,7/2,9	0,6-2,9	1,5-2,5	2,1-4,5	1,2-3,1	1,5-2,3	2,5-3,7
Camphre	1123	5,3	11,8	1,9-10,7	3,0/2,6	0,7-14,9 ^e	0,6-2,0	1,1-8,5 ^c	1,3-4,9	0,7-1,4	5,1-11,5 ^c
trans-Pinocarvéol	1126		0,9			0-1,2	0,1-1,0		0-1,3 ^a	0,4-1,0 ^f	-
Bornéol	1150	8,4	3,2	3,1-9,0	7,6/8,4	3,8-12,6	4,8-8,0	4,9-10,1	3,4-14,1	4,2-8,6	3,5-9,2
terpinèn-4-ol	1164		1,1	0-2,1	1,6/2,0	0,8-1,8	0,7-1,8	0,9-1,7	1,1-1,5	0,7-1,1	1,0-2,4
α-Terpinéol	1176	1,1	1,0	0-1,3	2,5/2,2	1,1-2,1	1,0-2,0	1,0-2,3	1,0-1,6	0,9-1,5	1,0-1,5
myrténol	1178			0-0	1,9/1,1	0,6-1,5	0,6-1,4	1,0-1,5	1,0-1,7	0,6-1,0	0,7-1,6
Verbénone	1183	6,4	10,7	2,7-8,6	17,7/15,3	6,1-14,5^g	4,1-16,0	6,5-13,1^g	7,9-17,5^g	4,3-13,5^g	6,2-13,3
Géraniol	1236		0,5	0-2,5	6,6/2,2	0,5-1,8	1,5-5,9	1,0-2,3	0,6-4,7	2,2-6,0	0-1,8
Acétate de bornyle	1270	9,9	8,7	5,0-11,3	16,6/18,3	6,3-12,6	7,5-15,5	8,9-12,1 ^h	10,3-21,9	8,1-14,9	7,0-10,0
Autres constituants			i)	j)							

a) échantillons commerciaux (entre parenthèses : nombre d'échantillons) ; b) échantillons individuels. Lieux de récolte : C5 : Bonifacio, C6 : Cap corse, C7 : Roccapina, C8 : Sampolo, C9 : Tavignano, C10 : Tizzano. c) α-Pinène, 3,9% dans 1 échantillon (Bonifacio) ; d) 1,8-Cinéole, 20,1% dans 1 échantillon (Roccapina) ; e) Camphre, 28,4% dans 1 échantillon (Bonifacio) ; 13,6% dans 1 échantillon (Roccapina) ; 17,2% et 18,1%, dans 2 échantillons (Tizzano) ; f) trans-pinocarvéol, 5,2% dans 1 échantillon (Tavignano) ; g) Verbénone, 19,1% et 20,6% dans 2 échantillons (Bonifacio), 2,6% dans 1 échantillon (Bonifacio) ; 16,8% dans 1 échantillon (Roccapina) ; 0,5% dans 1 échantillon (Sampolo) ; 17,3% dans 1 échantillon (Tavignano) ; h) Acétate de bornyle, 1,5% dans 1 échantillon (Roccapina). Autres constituants : i) α-terpinène, 0,7% ; β-phellandrène, 3,0% ; j) α-terpinène, 0,6% (1 échantillon), β-phellandrène 0,0-2,3% ; (Z)-β-ocimène 1,2% (1 échantillon) ; terpinolène 0-1,0% ; oct-1-èn-3-ol, 0-0,9%.* Le cinéole peut être accompagné du β-phellandrène.

Tableau 1. Composition chimique de diverses huiles essentielles de romarin de Corse

Une vue plus globale de la composition de l'HE de romarin corse est décrite dans la thèse de doctorat de Bradesi^[8] qui a analysé une vingtaine d'échantillons commerciaux pouvant être séparés en deux groupes en fonction de leur teneur en verbénone. Dans le premier groupe, de loin le plus important (19/21 échantillons), l' α -pinène (30,7-43,7%) est nettement majoritaire. Viennent ensuite l'acétate de bornyle (5,0-11,3%), le camphène (5,8-11,5%), le camphre (1,9-10,7%), le bornéol (3,1-9,0%) et enfin la verbénone (2,7-8,6%). On peut toutefois noter que la teneur en verbénone est comprise entre 4,5 et 6,9% pour 14/19 échantillons, entre 2,7 et 3,8% pour 4/17 échantillons et égale à 8,6% pour 1/19 échantillon. Dans les deux derniers échantillons (2/21), la teneur en α -pinène (14,9% et 20,8%) est nettement moins élevée tandis que celles de l'acétate de bornyle (16,6% et 18,3%) et surtout de la verbénone (17,7% et 15,3%) sont plus élevées. Le cinéole (4,0% et 8,1%), le camphre (1,9% et 0,7%) et le bornéol (3,1% et 9,0%) sont présents à des teneurs appréciables. On peut noter que la teneur en géraniol atteint 6,6% dans l'un des échantillons. Le myrténol n'est détecté que dans les échantillons riches en verbénone.

A la même période, une étude réalisée dans le cadre du Programme d'Initiative Communautaire Corse-Sardaigne^[9] a décrit la composition de 72 échantillons d'HE préparés à partir de pieds individuels de romarin poussant à l'état spontané dans 6 régions de Corse (tableau 1). Ainsi, on constate que les composés majoritaires font partie de la triade α -pinène-verbénone-acétate de bornyle, néanmoins, les teneurs de chacun de ces composés varient considérablement : α -pinène (9,6-41,0% avec un échantillon à 3,9%), verbénone (4,1-20,6% avec deux échantillons à 0,5 et 2,6%) et acétate de bornyle (6,3-21,9%). Viennent ensuite, le 1,8-cinéole (0-18,3%, avec un peu de β -phellandrène), bornéol (3,4-14,1%), camphre 0,6-14,9%, camphène 3,6-10,0%, limonène 2,0-9,8%, géraniol 0-6,0%, β -pinène 0,9-4,2% *p*-cymène 0,7-4,1, myrcène 0,5-4,0%, linalol 0,6-3,7%, verbénène 0,3-2,9 %, terpinène-4-ol 0,7-2,4%, α -terpinéol 0,9-2,3, myrténol 0,6-1,7%. En ce qui concerne la teneur en verbénone qui caractérise le romarin corso-sarde, on peut noter que pour 72% des échantillons (52/72), elle représente 8-15% de la composition globale, 7/72 échantillons sont au-dessus (jusqu'à 21%), 11/72 échantillons sont en-dessous (4-7%) et enfin deux échantillons semblent se distinguer avec une teneur en verbénone très faible (0,5 et 2,5%).

Quelques années plus tard, ces études furent complétées par l'analyse détaillée (Indices de rétention, CPG-SM et RMN ¹³C) de deux échantillons d'HE de Corse, obtenus auprès de producteurs.^[10] Au total, 50 composés ont été identifiés. Les deux échantillons avaient été choisis pour illustrer la différence de la composition au niveau quantitatif (tableau 2). Ainsi, les teneurs des principaux composés varient substantiellement : α -pinène (13,7% et 24,6%), verbénone (4,4% et 20,3%), camphre (8,7% et 2,9%), camphène (6,6% et 2,4%) tandis que l'acétate de bornyle (13,6% et 17,0%) et le bornéol (6,2% et 6,7%) présentent de moindres variations. Il faut noter que la verbénone est le composé majoritaire de l'un des 2 échantillons (tableau 2). Les deux échantillons contiennent également, en faibles quantités, le (*Z*)- β -ocimène, et l' α -campholénol. Le géraniol atteint 6% dans l'un des échantillons. On peut noter également l'identification de divers composés minoritaires (0,1-1,9%) ayant le squelette pinanique : β -pinène, verbénène, chrysentenone, *cis*-verbénol, *trans*-verbénol, *trans*-pinocarvéol, pinocarvone, *iso*-pinocamphone, *iso*-pinocamphéol, verbénol et acétate de pinocarvyle. Parmi les sesquiterpènes, l' α -curcumène et le spathuléol ont été identifiés à côté du (*E*)- β -caryophyllène et de l' α -humulène déjà signalés. Deux phénylpropanoïdes sont également identifiés : l'estragole et le méthyl eugénol.

Echantillons	C11 ^a	C12 ^b	C13 ^a	C14 ^a	C15 ^a	C15 ^a
Constituants/Ref	[10]	[10]	[11]	[12]	[13]	[13]
tricyclène	0,3	0,1			0,4	0,4
α -thujène		0,1		0,3		
α-Pinène	24,6	13,7	30,8	17,6	35,1	32,8
Camphène	6,6	2,4	7,2	6,8	8,3	8,4
Verbénène	0,8	1,2			0,1*	0,8*
oct-1-èn-3-ol	0,1			0,2		
Sabinène				1,1	1,4	1,3
β -Pinène	1,9	1,1	1,7	1,2	2,1	2,3
Myrcène	3,0	0,7	2,6	1,1	2,1	1,6
α -Phellandrène	0,3	0,1		1,8		
3-Carène	tr	0,1		0,2	0,2	0,4
α -Terpinène	0,2	0,1		0,8	0,4	0,4
<i>p</i> -Cymène	3,0	1,5	3,4	1,9	1,5	1,4
β -Phellandrène	1,2	0,3		-		
1,8-Cinéole	3,5	3,4	3,9	2,1	5,3	7,9
Limonène	4,6	2,0	4,8	4,3	3,5	4,0
(<i>Z</i>)- β -Ocimène	0,2	0,1				
(<i>E</i>)- β -Ocimène					tr	0,1
γ -Terpinène	0,4	0,4		0,8	1,3	0,8
<i>Trans</i> Hydrate sabinène					0,6	0,6
Terpinolène	0,1	0,4		0,9	0,6	0,8
Linalol	4,6	1,8	3,6	1,5	1,6	1,5
Camphre	8,7	2,9	8,3	11,7	3,0	6,8
<i>cis</i> -Verbénol	0,1	0,6				
<i>trans</i> -Verbénol	0,3	0,6				
<i>trans</i> -Pinocarvéol	0,1	0,1				
Bornéol	6,2	6,7	5,1	11,5	4,4	6,5
<i>iso</i> -Pinocamphone	0,5	0,5			0,6	0,3
Terpinèn-4-ol	0,9	1,3		1,0		
α -Terpinéol	0,8	2,4		1,0		
Myrtéol	0,4	1,7				
Verbénone	4,4	20,3	6,0	12,4	4,8	5,1
α -Campholéol	0,6	0,9				
Géranol	0,3	6,2		1,1		
Acétate de bornyle	13,6	17,0	11,2	11,9	14,3	10,2
Acétate de lavandulyle					0,5	0,2
Acétate de <i>trans</i> -pinocarvyle	0,4	0,1				
Acétate de geranyle	-	0,6			0,7	0,6
Methyl-eugénol		0,4		0,1		
(<i>E</i>)- β -caryophyllène	2,0	0,6		0,9		
α -humulène	0,3	0,2		0,1		
Spathuléol	tr	0,2				
Autres	c)	d)	e)	f)	g)	

a) échantillon commercial ; b) échantillon commercial, fractionné sur colonne de chromatographie (silice) ; c) *cis*-hydrate de sabinène tr ; chrysanthénone 0,8% ; pinocarvone 0,3% ; *trans*-carvéol tr ; jasmane 0,1% d) *p*-cyménène 0,1% ; lavandulol 0,3% ; *iso*-pinocamphéol 0,3% ; estragole 0,3% ; citronellol 0,4% ; néral 0,2% ; géranial 0,2% ; acétate de néryle 0,2% ; α -curcumène tr e) composés supérieurs à 1% f) oxyde de néryle 1,0% ; pinocamphone 0,4% ; pipéritone 0,2% g) viridiflorène 0,2/0,1% * identifié dans [13] comme étant le 6,6-diméthylbicyclo[3.1.1]hept-3-ène-2-butylidène, probablement le verbénène.

Tableau 2. Composition chimique de diverses huiles essentielles de romarin de Corse

Plus récemment, les compositions de deux autres échantillons commerciaux ont été décrites^[11,12] Les deux HE contiennent les mêmes composés avec des teneurs sensiblement différentes : α -pinène (30,8% et 17,6%), acétate de bornyle (11,2% et 11,9%), verbénone (6,0% et 12,4%), camphre (8,3% et 11,7%), camphène (7,2% et 6,8%), bornéol (5,1% et 11,5%).

Enfin, il faut signaler que Chalchat et coll.^[13] décrivent la composition de deux échantillons commerciaux d'origine « France » dont la composition peut laisser à penser qu'ils proviennent de romarin corse : α -pinène (35,1% et 32,8%), acétate de bornyle (14,3% et 10,2%), verbénone (4,8% et 5,1%), camphène (8,3% et 8,4%), cinéole (5,3% et 7,9%), camphre (3,0% et 6,8%) et bornéol (4,4% et 6,5%).

Pour terminer ce tour d'horizon, Ravid et coll. ont montré qu'en ce qui concerne la verbénone présente dans l'HE de romarin de Corse, l'énantiomère (1R)(+) est présent à 99.9%.^[14]

3. HE de romarin de Sardaigne

Nous avons vu que les premiers travaux relatifs à l'HE de romarin de Sardaigne sont plutôt anciens (1925-1946) et mettent en évidence une teneur élevée en alcools et en esters. Quelques constituants majoritaires ont été identifiés : α -pinène, camphre, cinéole, bornéol, acétate de bornyle. puis confirmés et agrémentés d'autres monoterpènes : camphène, p-cymène, limonène, linalol, myrcène, β -pinène, terpinène-4-ol.^[5] Des études détaillées du romarin de Sardaigne reprirent dans les années 1990.

Mullè et coll.^[15] ont examiné l'HE de romarin prélevé mensuellement pendant deux ans, dans la station de Calla Gonone (Sardaigne). Les rendements varient de 0,5 à 1,5% calculés par rapport à la matière fraîche et entre 1,5 et 3%, calculés par rapport à la matière sèche (appareil Clevenger). Ils sont compris entre 0,3 et 1,2% avec un appareil semi-industriel. Les meilleurs rendements ont été obtenus pendant les périodes de mai à juillet. Les hydrocarbures représentent environ 60% de l'HE avec l' α -pinène majoritaire tandis que la fraction oxygénée contient du bornéol, de l'acétate de bornyle, du cinéole, du camphre et de la verbénone (16 composés identifiés mais pourcentages non précisés).

Satta et coll.^[16] ont préparé et analysé 6 échantillons d'HE de romarin récoltés dans le nord, le centre et le sud de la Sardaigne. Les compositions sont homogènes, nettement dominées par l' α -pinène [en moyenne (M) : 34,2% \pm 2,2 de l'HE, min-max = 31,4-37,3%], tandis que les autres composés sont présents avec des teneurs moyennes comparables mais des teneurs min-max très différentes : cinéole (M = 8,5% \pm 3,35 ; min-max = 6,0-14,1%), acétate de bornyle (M = 8,1 \pm 3,0 ; 3,3-11,2%), camphre (M = 5,4% \pm 2,9 ; 2,2-6,3%) et verbénone (M = 7,4% \pm 3,5 ; 3,5-13,4%) (tableau 3).

Des résultats similaires ont été obtenus par Tuberoso et coll.^[17] à partir de 11 échantillons d'origine sarde, récoltés dans 8 stations, 4 dans le nord, une dans le centre et 3 dans le sud de l'île : α -pinène (M = 35,0% \pm 6,0 ; Min-max = 26,5-47,1%); acétate de bornyle (8,7% \pm 5,5 ; 3,3-23,0%); verbénone (7,6% \pm 4,0 ; 3,4-15,6%); cinéole (7,2% \pm 4,1 ; 0,8-14,1%), puis camphène (5,9% \pm 1,7 ; 2,9-8,1%), camphre (4,5% \pm 2,8 ; 1,5-9,2%), limonène (3,8% \pm 1,2 ; 2,0-5,6%) et bornéol (3,8% \pm 0,8 ; 2,5-4,9%) (tableau 3).

Moretti et coll.^[18,19] ont analysé deux échantillons d'HE de romarin spontané provenant respectivement d'Aggius (Gallura) et d'Orosei (Nuoro). La teneur en α -pinène (34,0% et 38,7%) est élevée. La verbénone (10,3% et 3,4%) et l'acétate de bornyle (3,2% et 7,8%) sont dans les moyennes habituelles, tout autant que le camphène (4,2% et 4,5%), le camphre (2,0% et 6,0%) et le bornéol (6,6% et 4,1%). On observe une proportion de 1,8-cinéole particulièrement élevée (17,6% et 11,2%). L'échantillon de Nuoro contient également du sabinène (2,1%), du terpinolène (1,4%) ainsi que du β -bisabolène (1,0%) (tableau 3).

Pintore et coll.^[10] ont analysé les HE provenant de plants spontanés récoltés dans le nord de la Sardaigne, à Porticciolo et au Monte Doglia. Dans ce cas également, les teneurs en composés majoritaires sont sensiblement différentes, α -pinène (20,2% et 14,7%) ; verbénone (15,7% et 24,9%), cinéole (11,3% et 4,9%) tandis que celles de l'acétate de bornyle (11,3% et 12,0%), du camphre (11,5 et 14,1%) et du bornéol (7,1 et 7,3%) sont proches. Dans ces échantillons, est également signalée la présence, en faibles proportions du tricyclène, α -fenchène, p-cyménène, (Z)- β -ocimène ainsi que divers composés oxygénés, oct-1-èn-3-one, oct-1-èn-3-ol, campholénal, iso-pinocamphone, trans-pinocarvéol et jasmone (tableau 3).

Angioni et coll.^[20] ont étudié l'HE de romarin sarde récolté dans 17 stations, situées à une altitude de 0 à 1000 m et réparties dans diverses régions de Sardaigne : Centre (S6), Nord (S7), Est (S8) et Sud (S9) (tableau 3). Les rendements varient de 0,19 à 2,13% avec un appareil de type Clevenger et entre 0,10 et 1,66% avec un semi-pilote, les échantillons du nord et de l'est ayant des rendements deux fois supérieurs à ceux de centre et sud. Trente composés ont été identifiés. L'analyse statistique menée à partir des marqueurs moléculaires, avec l'évaluation des données chimiques, pédologiques, et génétiques permet de différencier 4 groupes. Tous les échantillons contiennent l' α -pinène, le bornéol, la verbénone et l'acétate de bornyle parmi les composés majoritaires. La teneur moyenne en α -pinène est légèrement supérieure au centre et au nord ($25,0\% \pm 5,56$ et $25,8\% \pm 7,75$ vs $21,2\% \pm 9,27$ et $19,1\% \pm 7,2$). Au contraire, la teneur en verbénone est plus élevée dans le nord et l'est ($11,28\% \pm 3,06$ et $12,00\% \pm 4,41$ vs. $6,84\% \pm 2,89$ et $7,37\% \pm 3,45$) et l'acétate de bornyle est abondant dans l'est ($14,90\% \pm 7,90$ vs. $7,55\% \pm 3,25$; $9,14\% \pm 2,90$ et $9,88\% \pm 4,59$). Les teneurs en camphène et en bornéol sont plutôt homogènes, Néanmoins, il faut noter qu'au-delà des valeurs moyennes, les écart-types sont élevés.

Enfin, deux échantillons récemment décrits diffèrent sensiblement dans leur composition. Le premier, originaire de Muravera (Sud-ouest de la Sardaigne) présente des teneurs équivalentes en verbénone (24,1%) et α -pinène (23,1%), les deux composés majoritaires, à côté du 1,8-cinéole (8,9%), de l'acétate de bornyle (5,5%), du camphène (4,5%), du limonène (3,5%), du bornéol (3,5%), et du camphre (3,1%).^[21] Le deuxième, issu de plants récoltés dans la région de Sassari (Nord de la Sardaigne) contient majoritairement de l' α -pinène (30,9%) suivi du 1,8-cinéole (13,3%) de l'acétate de bornyle (8,9%), du camphre (7,2%) et du camphène (6,7%), Il faut noter les faibles teneurs en bornéol (3,8%) et surtout en verbénone (2,8%) (32 composés identifiés)^[22] (tableau 3).

Usai et coll.^[21] ont examiné différentes techniques de conservation de la plante, afin de choisir celle qui garde au cours du temps la composition la plus proche de l'original. Les échantillons frais ont été : 1) séchés à l'air dans un séchoir pilote à l'échelle du laboratoire, 2) congelés dans un congélateur ventilé 3) lyophilisés avec un appareil de laboratoire. Ils sont stockés pendant 12 mois, et en partie hydrodistillés tous les 3 mois. Dans tous les cas, il n'y a eu aucune perte de qualité.

Enfin, avec un objectif de valorisation de la partie hydrocarbonée de l'HE de romarin par hydroformylation, un échantillon a été fractionné. La fraction hydrocarbonée contenait principalement l' α -pinène (44,2%), le camphène (24,5%), et le limonène (11,7%) tandis que la fraction oxygénée contenait majoritairement et de manière assez surprenante le 1,8-cinéole (37,6%), l'acétate de bornyle (21,4%) et le camphre (16,5%).^[23]

Echantillons ^a	S1 (6)	S2 (11)	S3	S4	S5 (2)	S6 (3)	S7 (3)	S8 (4)	S9 (7)	S10	S11 (3)
Constituants/Ref	[16]	[17]	[18]	[19]	[10]	[20]	[20]	[20]	[20]	[21]	[22]
α -Thujène				2,6		0,52 ± 0,11	0,65 ± 0,83	0,49 ± 0,16	0,49 ± 0,20		0,23 ± 0,01
α-Pinène	31,4-37,3	26,5-47,1	38,7	34,0	20,2/14,7	25,0 ± 5,56	25,8 ± 7,75	21,2 ± 9,27	19,1 ± 7,2	23,1	30,89±0,15
Camphène	2,9-7,4	2,9-8,1	4,2	7,5	3,5/3,0	8,4 ± 2,28	6,5 ± 1,50	7,4 ± 1,69	8,2 ± 2,66	4,5	6,76 ± 0,51
Verbénène					0,4/0,4	0,0 ± 0,0	0,06 ± 0,06	0,02 ± 0,02	0,10 ± 0,12		0,97 ± 0,11
β -Pinène	1,2-3,2	0,5-3,2	2,5	1,4	0,5/0,4					2,16	2,61 ± 0,21
Sabinène				2,1		3,46 ± 1,92	3,72 ± 1,47	2,40 ± 2,38	3,30 ± 2,08		
Myrcène	0,4-3,8	0,4-3,8	0,7	4,1	0,9/0,9	1,48 ± 0,48	3,37 ± 2,38	1,52 ± 0,77	2,03 ± 1,95		1,79 ± 0,07
α -Phellandrène	0-5,8	0-1,0 ^b	1,8	0,8	0,3/0,1	0,42 ± 0,51	0,83 ± 0,96	0,77 ± 0,85	0,91 ± 1,11		0,42 ± 0,00
α -Terpinène		0-0,7		1,2		0,62 ± 0,19	0,78 ± 0,21	0,65 ± 0,24	0,56 ± 0,31		0,47 ± 0,02
δ -3-Carène	0-0,6	0-1,3			0/1,3	0,44 ± 0,51	0,61 ± 0,42	0,70 ± 0,80	1,47 ± 1,13		0,45 ± 0,03
<i>p</i> -Cymène	0,4-2,7	0,4-2,7	0,8	1,1	1,2/1,1	4,34 ± 1,61	1,69 ± 0,66	3,24 ± 1,90	4,27 ± 2,12		1,78 ± 0,05
Limonène	2,0-5,5	2,0-5,6	3,3	3,8	3,2/1,4	4,17 ± 0,76	3,91 ± 0,85	4,91 ± 0,96	4,34 ± 1,27	3,5	4,19 ± 0,08
β -Phellandrène				0,1	0,2/0,1	3,90 ± 1,35	3,24 ± 1,20	2,36 ± 1,97	2,73 ± 2,08		
1,8-Cinéole	5,6-14,1	0,8-14,1	17,6	11,2	11,3/4,9	2,84 ± 1,98	2,42 ± 1,06	0,88 ± 1,62	1,54 ± 1,52	8,9	13,26 ± 0,03
γ -Terpinène	0-1,0	0-1,0	1,0	1,1	0,3/0,2	0,87 ± 0,36	1,38 ± 0,38	1,02 ± 0,49	0,69 ± 0,41	1,92	0,78 ± 0,02
Terpinolène				1,4	0,3/0,3	0,59 ± 0,29	1,18 ± 0,22	1,04 ± 0,45	0,74 ± 0,33	1,36	1,01 ± 0,00
Linalol	0,8-2,1	0,8-2,4	1,9	1,2	1,0/1,0	1,07 ± 0,56	1,06 ± 0,32	1,45 ± 0,74	1,08 ± 0,68	1,95	0,88 ± 0,04
Verbénol						1,28 ± 1,14	0,70 ± 0,56	1,20 ± 1,96	3,03 ± 2,14		
Camphre	2,2-9,2	1,5-9,2	2,0	6,0	11,5/14,1	4,81 ± 3,09	2,45 ± 1,89	3,35 ± 3,15	7,33 ± 4,02	3,1	7,19 ± 0,34
Bornéol	3,2-4,9	2,5-4,9	6,6	4,1	7,1/7,3	18,1 ± 3,75	15,1 ± 9,86	14,2 ± 4,65	16,2 ± 9,08	3,5	3,80 ± 0,02
<i>cis</i> -Pinocamphone						1,01 ± 0,91	0,33 ± 0,29	0,76 ± 0,39	0,80 ± 0,40		
Terpinèn-4-ol	0-1,0	0-1,1		0,5	1,0/1,1	0,79 ± 0,12	0,80 ± 0,23	0,86 ± 0,20	0,72 ± 0,23	1,52	0,81 ± 0,02
α -Terpinéol	0-2,5	0-2,5		0,5	2,3/2,9	1,45 ± 0,37	1,44 ± 0,64	1,29 ± 0,57	1,19 ± 0,46	1,70	0,61 ± 0,75
Verbénone	3,5-13,4	3,4-15,6	10,3	3,4	15,7/24,9	6,84 ± 2,89	11,28±3,06	12,00±4,41	7,37 ± 3,45	24,1	2,78 ± 3,65
Géranol	0,4-2,3	0-2,5	1,6	0,4						1,79	
Acétate de bornyle	3,3-11,2	3,3-11,2^b	3,2	7,8	11,3/12,0	7,55 ± 3,25	9,14 ± 2,90	14,90±7,90	9,88 ± 4,59	5,5	8,94± 0,38
(<i>E</i>)- β -caryophyllène	0,2-1,8	0,2-4,9	2,6	0,7		0,35 ± 0,33	0,18 ± 0,17	0,05 ± 0,13	0,51 ± 0,53		1,52 ± 0,05
autres				c)	d)	e)	e)	e)	e)	f)	g)

a) Échantillons (entre parenthèses : nombre d'échantillons) b) La teneur en α -phellandrène atteint 5,8% dans un 1 échantillon tandis que celle de l'acétate de bornyle atteint 23,0% dans un 1 échantillon c) nérol 0,2%, acétate de géranyle 0,3%, β -bisabolène 1,0% d) α -fenchène 0/0,1%; oct-1-èn-3-one 0,1/0,1%; oct-1-èn-3-ol 0,2/0,3%; (*Z*)- β -ocimène 0,1/0,1%; fenchone 0/tr; *p*-cyménène 0,1/0,1%; *trans*-oxyde de linalyle tr/0,1%; campholénal 0,1/0,2%; *allo*-ocimène tr/0%; *trans*-pinocarvéol 0,3/0,3%; *iso*-pinocamphone 0,5/0,6%; acétate de pinocarvyle 0/0,1%; jasmone 0,1/0,1% e) geijérène 0,10-0,27% ; carvacrol tr ; thymol tr ; α -humulène 0-0,12% f) myrténol 1,32%. Composés non quantifiés : α -thujène, thuja-2,4(10)-diène, myrcène, α -phellandrène, α -terpinène, *o*-cymène, chrysanthénone, *trans*-verbénol, *trans*-pinocamphone, *cis*-pinocamphone, méthyl chavicol, méthyl eugénol g) (*Z*)- β -ocimène 0,17 ± 0,00; chrysanthénone 0,28 ± 0,03; campholénal 0,36 ± 0,01; *trans*-pinocamphone 0,16 ± 0,00 ; pinocarvone 0,18 ± 0,01; myrténol 0,69 ± 0,63; *trans*-carvéol 2,86 ± 3,92; acétate de pinocarvyle 0,08 ± 0,01; α -humulène 0,15 ± 0,01.

Tableau 3. Composition chimique de diverses huiles essentielles de romarin spontané de Sardaigne

4. Romarin cultivé

Solinas et coll.^[24] ont comparé les rendements en HE de romarins spontanés et cultivés, ces derniers étant supplémentés en eau pendant la période sèche, Les rendements sont bien plus élevés pour les plants cultivés : 2,97% et 3,89% vs. 2,14% et 2,25%).

Moretti et coll.^[25] décrivent la composition de 4 échantillons d'HE issus de plants cultivés dans la station de recherche de Sassari et appartenant à 2 chémotypes (tableau 4). Les deux premiers échantillons sont riches en α -pinène (31,5% et 37,8%) et présentent des teneurs comparables en camphène (8,3% et 9,0%), cinéole (8,7% et 10,5%), acétate de bornyle (7,1% et 7,9%), camphre (8,3% et 10,9%) et verbénone (6,3% et 6,9%). Les deux autres échantillons montrent des teneurs équivalentes en β -pinène (28,9% et 29,6%) et en cinéole (28,0% et 31,6%), et logiquement des teneurs plus faibles dans les autres composants, camphène (4,3% et 4,5%), acétate de bornyle (3,2% et 3,5%), camphre (2,2% et 2,6%), tandis que le bornéol (5,7% et 5,8%) et la verbénone (6,6% et 7,4%) conservent des teneurs appréciables. Les meilleurs rendements ont été obtenus pendant la période juillet-septembre (jusqu'à 1,1 ml/100g). Le traitement des plants par Fe-EDTA et leur irrigation simultanée ne modifient pas les rendements mais induisent une augmentation de la teneur en verbénone au détriment des composés hydrocarbonés.

Moretti et coll.^[18] ont étudié les propriétés du sol sur le rendement en HE et la composition de celle-ci, Les plants de romarin de départ ont poussé à l'état spontané sur un sol granitique (Nord de la Gallura, Sardaigne). Des tiges ont été prélevées et plantées sur deux types de sol, le premier majoritairement constitué de limon granitique, le deuxième calcaire (Sassari). Les rendements en HE varient entre les mois de mai à novembre de 1,65% (mai) à 3,75% (septembre) sur sol limon granitique et de 1,33% (juin) à 2,84% (août) sur sol calcaire. Du point de vue de la composition, les faits notables sont l'augmentation substantielle de la teneur en cinéole (31,6% vs. 17,6%) dans l'HE des plants cultivés sur terrain calcaire et, en parallèle, la diminution de la teneur en α -pinène (28,9% vs. 38,7%) (tableau 4).

Mulas et coll.^[26] ont examiné la composition de l'HE obtenue à partir de 15 cultivars de romarin d'origine sarde et cultivés près de Sassari. Les rendements en HE varient considérablement, de 1,18% à 4,07% et la teneur en composés majoritaires évolue également de manière très importante : α -pinène (13,9-56,9%) ; acétate de bornyle (1,4-24,4%) ; camphre (0,1-22,3%) ; cinéole (1,7-18,7%) ; verbénone (1,3-16,3%) ; bornéol (0,7-15,9%) ; et enfin camphène (4,5-11,8%) (tableau 4). La teneur en α -pinène est comprise entre 39.6 et 56.9% pour 7/15 échantillons, entre 23.5 et 30.6% pour 7/15 échantillons et enfin 13.9% pour le dernier échantillon. Quand la teneur en α -pinène est peu élevée, ce sont les teneurs en cinéole et en camphre qui augmentent sensiblement. En ce qui concerne la verbénone, deux échantillons se distinguent (16.3% et 1.3%), les autres fluctuent entre 3.7% et 11.5%. On observe une situation similaire avec l'acétate de bornyle, deux échantillons atypiques (24.4% et 1.3%) et les 13 autres ont une teneur comprise entre 5.1% et 16.4%.

Dans un but de sélection des plants de romarin, d'un point de vue qualitatif et quantitatif, six cultivars provenant de pied mères de différentes origines ont été sélectionnés et cultivés dans la ferme expérimentale de l'Université de Sassari, située à Fenosu (OR), dans le centre-ouest de la Sardaigne.^[27] L'HE a été préparée à partir de matériel végétal récolté au printemps et à l'été. La composition de l'HE ne varie pas notablement en fonction de la période de récolte des plants de romarin (tableau 4). Par contre, si on prend en compte les 3 constituants significatifs, α -pinène, verbénone et acétate de bornyle, on constate que les teneurs en α -pinène et verbénone varient considérablement : 3/6 échantillons sont riches en α -pinène (33,2-46,0%), *a contrario* 3/6 échantillons en contiennent beaucoup moins (12,4-20,6%). De même, 2 échantillons contiennent de la verbénone en quantité appréciable (12,5/13,8%), un échantillon en est très faiblement pourvu (1,8%) et les 3 derniers présentent des teneurs intermédiaires (5,1-5,9%) (tableau 4). A l'inverse, la teneur en acétate de

bornyle est plutôt stable (10,6-16,8% au printemps, 8,9-16,0% à l'automne). En considérant également les teneurs en cinéole, camphre et bornéol, les auteurs distinguent divers génotypes : i) α -pinène (avec acétate de bornyle et verbénone), provenant de Sette Fratelli, Vignola et Gerrei ; ii) α -pinène/bornéol (avec acétate de bornyle) en provenance de Costa Paradiso ; iii) bornéol/cinéole (avec α -pinène/acétate de bornyle) : Cala Gonone et iv) camphre/cinéole (avec α -pinène/acétate de bornyle) : Sant'Antioco.

Echantillons ^a	S12 (2)	S13 (2)	S14 (15)	S15 (3)	S16	S17	S18	S19
Constituants/Ref	[25]	[25]	[26]	[27]	[27]	[27]	[27]	[28]
α-Pinène	31,5/37,8	28,9/29,6	13,9-56,9	33,2-41,8	20,6	13,0	13,4	6,68
Camphène	8,3/9,0	4,3/4,5	4,5-11,8	3,8-6,5	6,5	8,0	6,0	2,29,
β -Pinène	4,8/5,1	4,0/4,4	1,5-3,3	2,3-3,1	3,5	3,1	3,4	0,69
Myrcène	0,5/0,4	0,5/0,6	1,4-4,5	1,5-1,7	1,2	1,0	1,5	0,31
α -Phellandrène	7,9/6,8	1,5/1,9						0,35
<i>p</i> -Cymène	1,1/1,1	0,8/0,8						1,36
Limonène	3,5/3,1	2,3/2,5	4,2-7,2	2,2-4,3	5,3	4,0	3,3	
1,8-Cinéole	10,5/8,7	31,6/28,0	1,7-18,7	0,4-3,1	3,1	17,0	18,6	7,26
γ -Terpinène	0,8/0,7	1,2/1,3						0,28
Linalol	0,8/0,7	2,6/2,3						2,18
Camphre	10,9/8,3	2,2/2,6	0,1-22,3	1,8-4,6	1,0	6,1	19,4	14,6
Bornéol	3,2/2,8	5,7/5,8	0,7-6,0 ^b	2,4-3,5	22,6	21,2	4,7	10,4
α -Terpinéol			1,0-2,7	0-1,3	1,0	1,5	1,9	2,43
Verbénone	6,3/6,9	6,6/7,4	1,3-11,5	5,4-13,8	5,1	1,8	5,2	21,76
Géranol	0,4/0,5	3,7/3,7						
Acétate de bornyle	7,9/7,1	3,2/3,5	1,4-24,4	10,6-16,8	14,9	12,8	12,4	12,3
(<i>E</i>)- β -Caryophyllène	1,4/1,1	0,9/1,2						
Autres								c

a) échantillons (entre parenthèses : nombre d'échantillons) b) La teneur en bornéol atteint 15,9% dans un 1 échantillon, c) α -terpinène 0,25%, terpinolène 0,36%, cis-pinocamphone 1,11%, terpinèn-4-ol 1,77%, pipéritone 5,75%, thymol 0,38%, carvacrol 0,31%, eugénol 0,58%, acétate de géranyle 0,80%, méthyl eugénol 0,77%, α -bisabolol 0,14%.

Tableau 4. Composition chimique de diverses HE de romarin cultivé de Sardaigne

A la même période, Sacchetti et coll.^[28] ont décrit la composition d'une HE commerciale de romarin cultivé en Sardaigne. La verbénone (21,76%) est le composé majoritaire, suivie par l'acétate de bornyle (14,6%), tandis que l' α -pinène ne représente que 6,68%, soit une teneur inférieure à celles du camphre (14,6%), du bornéol (10,4%) et du cinéole (7,26%).

5. Composés identifiés dans les HE de romarin de Corse et de Sardaigne

Nous avons répertorié ci-dessous les composés identifiés dans les divers profils chimiques d'huiles essentielles de romarin de Corse et de Sardaigne, reportées dans la littérature. Comme nous avons pu le constater tout au long de cette revue, les hydrocarbures monoterpéniques et les monoterpènes oxygénés sont omniprésents, comme c'est le cas dans toutes les HE de romarin, quelles que soient leurs origines.

Hydrocarbures monoterpéniques : Camphène, δ -3-carène, 1,8-cinéole, *o*-cymène, *p*-cymène, *p*-cyménène, α -fenchène, limonène, myrcène, (*E*)- β -ocimène, (*Z*)- β -ocimène, *allo*-ocimène, *néo-allo*-ocimène, α -phellandrène, β -phellandrène, α -pinène, β -pinène, thuja-2,4(10)-diène, α -thujène, sabinène, α -terpinène, γ -terpinène, terpinolène, tricyclène, verbénène.

Monoterpènes oxygénés : Bornéol, acétate de bornyle, campholénal, α -campholénol, camphre, carvacrol, *trans*-carvéol, citronellol, chrysanthénone, fenchone, géranol, géranol, acétate de géranyle, *cis*-hydrate de sabinène, *trans*-hydrate de sabinène, lavandulol, acétate de lavandulyle, linalol, *trans*-oxyde de linalyle, myrténol, néral, acétate de néryle, oxyde de néryle, *iso*-pinocamphéol,

pinocamphone (*trans*), *iso*-pinocamphone (*cis*), *trans*-pinocarvéol, acétate de pinocarvyle, *trans*-pinocarvone, pipéritone, α -terpinéol, terpinèn-4-ol, thymol, *cis*-verbénol, *trans*-verbénol, verbénone.

Sesquiterpènes : β -bisabolène, (*E*)- β -caryophyllène, α -curcumène, α -humulène, viridiflorène, α -bisabolol, spathuléol

Divers : estragole, eugénol, méthyl eugénol, geijérène, jasmone, oct-1-èn-3-ol, oct-1-èn-3-one.

6. Activité biologique

Le pouvoir antimicrobien de deux échantillons d'HE de *R. officinalis* de Sardaigne (avec des teneurs très différentes en α -pinène, verbénone et cinéole) a montré une faible activité vis-à-vis des souches suivantes : *Escherichia coli*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Staphylococcus aureus* et *Staphylococcus epidermidis* avec des valeurs de CMI comprises entre 2,5 et 4 mg/ml.^[10] De manière similaire, Angioni et coll.^[20] mentionnent une faible activité de l'HE de *R. officinalis* vis à vis des mêmes souches (CMI supérieure à 900 μ g/ml) ainsi que vis-à-vis de *Candida albicans*. L'activité antifongique a été testée vis-à-vis de *Botrytis cinerea*, *Fusarium oxysporum*, *F. culmorum* et *Rhizoctonia solani*. Une action de l'HE a été observée vis-à-vis de *F. graminearum*.

Le pouvoir antimicrobien de l'HE de romarin (composition dans tableau 2) a été testé sur diverses bactéries humaines pathogènes avec des diamètres d'inhibition variant de 6 à 16 mm, En ce qui concerne *Campylobacter jejuni*, la CMI a été mesurée et évaluée à 0,125% (v/v).^[11]

Le pouvoir antifongique de l'HE de romarin riche en verbénone (21,8%) a été testé vis-à-vis de *Candida albicans*, *Rhodotorula glutinis*, *Schizosaccharomyces pombe*, *Saccharomyces cerevisiae* et *Yarrowia lipolytica*.^[28] Les valeurs des CMI mesurées varient de 0,06 à 0,18 mg/mL, à comparer avec celles de *Thymus vulgaris*, HE de référence, CMI : 0,03-0,06 mg/mL.

La vapeur d'HE de romarin, a été testée *in vitro* contre *Penicillium digitatum* dans le but d'évaluer l'activité antifongique potentielle résultant d'une fumigation. En effet, appliquée à une concentration de 50 ppm, 24h après l'inoculation de *P. digitatum*, elle stoppe la croissance de la moisissure dès le deuxième jour.^[22]

Le pouvoir anti-appétant de l'HE de *R. officinalis* du centre de la Sardaigne (Oroseo, Nuro ; α -pinène, 34,0% ; cinéole, 11,2%) a été testé vis-à-vis de la mouche des fruits, *Ceratitis capitata* Wieb, (Diptera, Tephritidae).^[19] Le taux de mortalité est modéré, comparé à celui observé avec d'autres HE, *Thymus herba barona*, par exemple.

L'activité anti-oxydante anti-radicalaire a été évaluée avec le test du 1,1-diphényl-2-picrylhydrazyl (DPPH). L'HE de romarin riche en verbénone (21,8%) a démontré une efficacité avec un taux d'inhibition d'environ 60%, légèrement inférieur à celui observé pour l'HE de *Thymus vulgaris* (75,6%).^[27] L'efficacité de cette HE est supérieure à celle qui avait été observée pour une autre HE de romarin à chémotype α -pinène/cinéole/camphre. Le test de décoloration du β -carotène la même HE a donné des bons résultats d'inhibition (81,1 \pm 0,57%).^[28]

7. Autres romarins contenant α -pinène, verbénone et acétate de bornyle à des teneurs appréciables.

Divers articles font état de romarins poussant à l'état spontané ou cultivés hors de Corse et de Sardaigne et qui produisent une HE contenant des teneurs appréciables de verbénone, mais rares sont les échantillons contenant simultanément la verbénone, l' α -pinène et l'acétate de bornyle. A titre d'exemple, on peut citer quelques HE provenant du sud de l'Italie (Apulia, Basilicata et Calabria), pour

lesquelles on a observé des teneurs importantes en ces trois composés, α -pinène/ verbénone/acétate de bornyle : 23,7/19,3/11,8% ; 23,5/9,8/7,5% ou encore 23,7/11,7/5,9% (tableau 6, 1-3).^[29] Dans le tableau 5, nous avons reporté diverses compositions d'HE de romarin spontanés, poussant hors de Corse et de Sardaigne qui comprennent majoritairement l'un ou l'autre de ces composés :

i) HE contenant α -pinène et verbénone mais peu ou pas d'acétate de bornyle, en provenance de: Italie-Toscane^[30] (30,7/7,5%, Espagne^[31], Bosnie-Herzégovine^[32] (14,0/10,0%), Hongrie^[33] (20,0/11,0 ; composé majoritaire, pipéritone 17,0%) , Algérie^[3] (26/22%), Tunisie^[34] (16,5-19,0/11,5-13,0 ; teneurs importantes en cinéole et camphre), Egypte^[35] (9,3/7,6%), Arabie Saoudite^[36] (19,5/13,4%, 1,8-cinéole 23,2%), Iran^[37] (18,6/11,7%), Yémen^[38] (13,5/18,6%, cinéole 20,6%), Alabama^[38] (25,4/17,1%, cinéole 18,8%), Brésil^[39] (9,6/11,3%, camphre 18,9%) ;

ii) HE de romarin contenant verbénone et acétate de bornyle mais peu ou pas d' α -pinène : Hongrie^[40] (11,0/6,0), Egypte^[35] (12,3/7,6%);

iii) Romarins contenant de la verbénone mais peu ou pas d' α -pinène et d'acétate de bornyle : Ethiopie^[41] (18,9% ; 1,8-cinéole 23,5%, camphre 15,1%), Algérie^[42] (23,5% ; camphre 22,3% ; bornéol 16,6%), Portugal^[42] (35,4%). Un échantillon d'HE de romarin provenant d'une station expérimentale en Pologne^[44] fait état d'une teneur en verbénone égale à 44,4% de la composition globale tandis que l' α -pinène ne représente que 3,2% et que l'acétate de bornyle n'est pas mentionné. La composition des HE de romarin de Turquie,^[45] subit des variations quantitatives impressionnantes. Ainsi, la teneur en verbénone du romarin d'Izmir varie de 4,4% à 43,5% entre mars et septembre. Il en est de même pour l'HE du romarin de Canakkale qui atteint 45,2% de verbénone en décembre puis chute jusqu'à 5,5% dans les mois qui suivent. Dans les deux cas, la teneur en α -pinène ne dépasse pas 14,2% tandis que l'acétate de bornyle est quasiment absent (0,2-2,3%).^[45]

Pays/pourcentage	α -Pinène	Verbénone	Ac. de bornyle	Camphre	Cinéole	Autres	Ref
Italie	23,5	9,8	7,5				[29]
Italie	23,7	11,7	5,9				[29]
Italie	23,7	19,3	11,8				[29]
Italie (Toscane)	30,7	7,5	4,4				[30]
Espagne	30	6	3	20			[31]
Bosnie-Herzégovine	14,0	10,0	2,9	13,6	13,0	bornéol (12,4)	[32]
Hongrie.	20,0	11,0	0	13,4	15,3	pipéritone (17,0)	[33]
Algérie	26%	22	0	8			[3]
Tunisie (3 éch.)	16,5-19,0	11,5-13,0	0,7-1,2	16,9-17,5	18,2-20,3		[34]
Egypte	9,3	7,6	2,0	14,9	9,0		[35]
Arabie Saoudite	19,5	13,4	1,7		23,2		[36]
Iran	18,6	11,3	0				[37]
Yémen	13,5	18,6	1,8		20,6		[38]
Alabama	25,4	17,1	1,7		18,8		[38]
Brésil.	9,6	11,3	1,6	18,9	8,0	myrcène (8,6)	[39]
Hongrie	3,8*	11,0	6,0				[40]
Egypte	1,2	12,3	7,6	11,3		limonène (7,1)	[35]
Ethiopie	1,4	18,9	3,6	15,1	23,5	bornéol (16,6)	[41]
Algérie	0	23,5	0	22,3	11,7		[42]
Portugal		35,4					[43]
Pologne	3,2	44,4	0				[44]
Turquie Izmir	0,4-14,2	4,4 -43,5	0,2-1,4				[45]
Turquie Canakkale	0,5-14,2	5,5-45,2	0,5-2,3				[45]

* α -pinène + camphène

Tableau 5. HE de romarin récolté hors Corse et Sardaigne et contenant α -pinène et/ou verbénone et/ou acétate de bornyle en quantités appréciables.

8. Conclusion

Toutes les analyses relatives à la composition de l'HE de romarin de Corse et de Sardaigne confirment la spécificité de cette HE et justifient la dénomination d'HE chémotypée, « romarin à verbénone ». En fait, deux autres monoterpènes, l' α -pinène et l'acétate de bornyle, sont également présents, avec des teneurs appréciables, dans tous les échantillons dont la composition a été décrite. Néanmoins, les teneurs de ces trois composés varient substantiellement.

Ainsi, en ce qui concerne les échantillons d'HE de romarin poussant à l'état spontané en Corse et préparés au laboratoire (72 échantillons), on observe les tendances suivantes :

- verbénone : 15.5-20.5%, 10% des échantillons ; 11-15%, 50% des échantillons ; 6-10%, 35% des échantillons ; 2-5%, 5% des échantillons ;
- acétate de bornyle : 15.5-22%, 10% des échantillons ; 6,5-14%, 90% des échantillons ;
- α -pinène : 38-41%, 10% des échantillons ; 26-36%, 65% des échantillons ; 20-25%, 18% des échantillons ; 10-16%, 5% des échantillons ; 1 atypique.
- camphène : 4-10% ; bornéol : 3-14% ; camphre : 0.5-18%, mais 28% pour un échantillon.

Pour des HE de population produites en région Corse (professionnels) :

- verbénone : 4-8% pour la plupart des échantillons, exceptionnellement jusqu'à 15-20% ;
- acétate de bornyle : 7-13% pour 80% des échantillons, et 5-6%, 8% des échantillons et 16-18%, 12% des échantillons ;
- α -pinène : 31-44% pour plus de 80% des échantillons ; 15-21% pour le reste.

En ce qui concerne les HE de Sardaigne obtenues à partir de pieds individuels et spontanés, la répartition en groupes est plus délicate, car certains résultats sont donnés sous forme de moyenne +/- écart type.

- verbénone : 24-25% pour 12% des échantillons ; 13-16%, 18% ; 7-10%, 35% ; 3,5-6%, 35% ;
- acétate de bornyle : 10-12%, 50% ; 5-8%, 30% ; 3-4%, 15% ; un atypique avec 23% ;
- α -pinène : 39-47%, 16% ; 29-35%, 63% et 15-26%, 21%.

Enfin, pour les HE de population produites en Sardaigne à partir de romarin cultivé (professionnels), on note, de manière assez paradoxale, de très fortes variations soulignant l'importance du cultivar utilisé mais surtout de paramètres liés à la conduite culturale.

Remerciements

Les auteurs remercient la Collectivité de Corse et l'Union Européenne (Programme AgriEx).

Bibliographie

- [1] C. Escriva, *Les huiles essentielles Corses*, Ed. Amyris. Bruxelles, **2012**.
- [2] B. M. Lawrence. *Perfum. Flavor* 2001, 26 (5), 50-58; 2(4): 34-35, *Perfum. Flavor* 2007; 32 (9), 50-54, *Perfum. Flavor* 2012, 37 (4), 45-46.
- [3] R. Granger, J. Passet, G. Arbousset, *Parfums, Cosmétiques, Savons de France* **1973**, 3, 307-312.
- [4] D. Penoel, P. Franchomme, *L'aromathérapie Exactement*. Ed. Roger Jollois, Limoges, **1990**.

- [5] L. Falchi Delitala, F. Soccolini, *Rivista Italiana EPPOS* **1980**, 62, 195-201.
- [6] M. Corticchiato, Thèse de Doctorat, Université de Corse **1991**.
- [7] F. Tomi, P. Bradesi, A. Bighelli, J. Casanova, *J. Magn. Reson. Anal.* **1995**, 1, 25-34.
- [8] P. Bradesi, Thèse de Doctorat, Université de Corse, **1995**.
- [9] Programme d'Initiative Communautaire Corse-Sardaigne. Secteur A1, Agro-alimentaire. Thème 2 : Composés naturels d'origine végétale de Corse et de Sardaigne. Rapport d'activité 1993-95.
- [10] G. Pintore, M. Usai, P. Bradesi, C. Juliano, G. Boatto, F. Tomi, M. Chessa, R. Cerri, J. Casanova, *Flavour Fragr. J.* **2002**, 17, 15-19.
- [11] P.-G. Rossi, L. Berti, J. Panighi, A. Luciani, J. Maury, A. Muselli, D. De Rocca Serra, M. Gonny, J.-M. Bolla, *J. Essent. Oil Res.* **2007**, 19, 177-182.
- [12] J. Paolini, C. Leandri, J.-M. Desjobert, T. Barboni, J. Costa, *J. Chromatography A* **2008**, 1193, 37-49
- [13] J.-C. Chalchat, R.-P. Garry, A. Michet, B. Benjilali, J. L. Chabart, *Rivista Italiana EPPOS* **1993**, Numero speciale, 549-555.
- [14] U. Ravid, E. Putievsky, I. Katzir, E. Lewinsohn, N. Dudai, *Flavour Fragr. J.* **1997**, 12, 109-112.
- [15] A. Mullè, M.D.L. Moretti, G. Pirisino, M. Satta. *Rivista Italiana EPPOS* **1996**, 19, 147-157.
- [16] M. Satta, C.I.G. Tuberoso, M.D.L. Moretti. *Rivista Italiana EPPOS* **1997**, 22, 13-18.
- [17] C.I.G. Tuberoso, M. Satta, P. Cabras, V.L. Garau, *J. Essent. Oil Res.* **1998**, 10, 660-664.
- [18] M.D.L. Moretti, A.T. Peana, G. Sanna Passino, V. Solinas. *J. Essent. Oil Res.* **1998**, 10, 261-267.
- [19] M.D.L. Moretti, E. Bazzoni, G. Sanna Passino, R. Prota, *J. Essent Oil Res.* **1998**, 10, 405-412.
- [20] A. Angioni, A. Barra, E. Cereti, D. Barile, J.D. Coisson, M. Arlorio, S. Dessi, V. Coroneo, P. Cabras. *J. Agricultural Food Chem.* **2004**, 52, 3530-3535.
- [21] M. Usai, M. Marchetti, M. Foddai, A. Del Caro, R. Desogus, I. Sanna, A. Piga. *Food Sci. Technol.* **2011**, 44, 244-249.
- [22] G. Ladu, L. Cubaiu, G. d'Hallewin, G. Pintore, G.L. Petretto, T. Venditti. *J. Food Process Technol.* **2015**, 6, 9.
- [23] G. Pintore, M. Marchetti, M. Chessa, B. Sechi, N. Scanu, G. Mangano, B. Tirillini. *Nat. Prod. Commun.* 2009, 4, 1685-1690.
- [24] V. Solinas, S. Deiana, C. Gessa, A. Bazzoni, M.A. Loddo, D. Satta. *Rivista Italiana EPPOS* **1996**, 19, 189-198.
- [25] M.D.L. Moretti, A.T. Peana, G. Sanna Passino, V. Solinas. *J. Essent. Oil Res.* **1998**, 10, 43-49
- [26] M. Mulas, A.H.D. Francesconi, B. Perinu, E. Del Vais. C. Bicchi, *Acta Hortic.* **2002**, 576: 163-168
- [27] M. Mulas, G. Mulas. *Acta Hortic.* **2005**, 676, 127-133.
- [28] G. Sacchetti, S. Maietti, M. Muzzoli, M. Scaglianti, S. Manfredini, M. Radice, R. Bruni. *Food Chem.* **2005**, 91, 621-632.
- [29] G. De Mastro, C. Ruta, A. Minzione, M. Poiana. *Acta Hortic.* **2004**, 629, 471-482.
- [30] S. Perrucci, F. Mancianti, P.L. Cioni, G. Flamini, I. Morelli, G. Macchioni. *Planta Med.* **1994**, 60, 184-187.
- [31] J.L. Rosua, A. Garcia-Granados. *Plantas Medicinales Phytothérapie* **1987**, 21, 138-143.
- [32] I. Odak, S. Talić, A. Martinović Bevanda. *Glas. Hem. Tehnol. Bosne Herceg.* **2015**, 45, 23-30
- [33] J. Domokos, E. Hethelyi, J. Palinkas, S. Szirmai, M.H. Tulok. *J. Essent.Oil Res.* **1997**, 9, 41-45.
- [34] A. Akrouf, H. Hajlaoui, H. Mighri, H. Najjaa, H. El Jani, S. Zaidi, M. Neffati. *J. Essent. Oil Bear. Pl.*, **2010**, 13, 398-411.
- [35] F.M. Soliman, E.A. El-Kashoury, M. M. Fathy, M. H. Gonaid, *Flavour Fragr. J.* **1994**, 9, 29-33.
- [36] A. Guetat, F.A. Al-Ghamdi, A.K. Osman. *Int. J. Herbal Medicine* **2014**, 2, 137-141.
- [37] M. Raeisi, M. Ebrahimi, M. Hashemi, M. Aminzare, R. Khoshbakht, A. Sadeghi, V. Raeisi. *J Pharm. Sci. Res.* **2017**, 9, 1725-1730.
- [38] A.A.P Satyal, T.H. Jones, E.M. Lopez, R.L. Mcfeeters, N.A. Awadh Ali, I. Mansi, A.G. Al-kaf, W.N. Setzer. *The Open Food Science Journal* **2017**, 6, 20.

- [39] W.A. Bernardes, R. Lucarini, M.G. Tozatti, L.G. Bocalon Flauzino, M.G.M. Souza, I.C.C. Turatti, M.L. Andrade e Silva, C.H.G. Martins, A.A. da Silva Filho, W.R. Cunha. *Z. Naturforsch.* **2010**, 65 c, 588–593.
- [40] E. Hethelil, P. Kaposi, J. Domonkos, Z.S. Kernoczi, *Acta Pharm. Hung.* **1987**, 57, 153-169.
- [41] H.A. Kesatebrhan, T.K. Tesema. *Journal of Applied Pharmacy*, **2014**, 6, 132-142.
- [42] H. Belkhdja, B. Meddah, A. Tir Touil, N. Şekeroğlu. *Int. J. Phytopharmacol.* **2016**, 7, 196-201.
- [43] A.T. Mata, C. Proenca, A.R. Ferreira, M.L.M. Serralheiro, J.M.F. Nogueira, M.E.M. Araújo. *Food Chem.* **2007**, 103, 778-786.
- [44] R. Zawirska-Wojtasiak, E. Wasowicz. *J. Essent. Oil Res.* **2009**, 21, 8-15.
- [45] O.Y Celiktas, E.E. Hames Kocabas, E. Bedir, F. Vardar Sukan, T. Ozek, K.H.C. Baser. *Food Chem.* **2007**, 100, 553-559.