
Themenkreis D: Qualitätsmanagement und Pflanzenanalytik

DSL 15 Untersuchung von ätherischem Öl aus Sommerbohlenkraut zentraleuropäischem und armenischem Ursprungs



Investigation of the essential oil quantity and quality of summer savoury and germander of Italian and Armenian origin

Jacqueline Ungar*, **Roman Hovsepyan****, **Nelly Gasparyan*****, **Christian Stollberg***

*-Hochschule Wismar, Verfahrenstechnik Biogener Rohstoffe, Inselstraße 12, 23999 Malchow / Insel Poel, Deutschland

**-Institute of Archaeology and Ethnography, 15 Charents Str., 0025, Yerevan, Republic of Armenia

***-Republican Union of Employers of Armenia, 26a Movses Khorenatsi street, 0010, Yerevan, Republic of Armenia

Jacqueline Ungar, Bürgermeister-Haupt-Straße 29, 23966 Wismar, jacqueline.ungar@googlemail.com

DOI 10.5073/jka.2018.460.015

Zusammenfassung

Im Rahmen einer deutsch-armenischen Forschungskooperation auf den Gebieten der Ethnobotanik und chemischen Analyse von Medizinalpflanzen erfolgte in einem ersten Schritt die Analyse von Sommerbohlenkraut (*Satureja hortensis*) und Gamander (*Teucrium polium* L.). Ausgangspunkt bildeten dabei die Kenntnisse der armenischen Bevölkerung in der Region Tatev zum traditionellen Einsatz lokaler Heilkräuter. Darauf aufbauend wurde getrocknetes Pflanzenmaterial der Spezies auf ätherischen Öl Gehalt und verdampfbare Inhaltsstoffe untersucht. Weiterhin folgte ein Vergleich zwischen armenischem und italienischem Sommerbohlenkraut. Die Arbeiten ordnen sich in ein Vorhaben zur Gegenüberstellung traditioneller Anwendungsmöglichkeiten in verschiedener Regionen unter Einbeziehung des jeweiligen Inhaltsstoffspektrums ein.

Sommerbohlenkraut und Gamander wurden Destillationszeiten zwischen 0,5 und 3 Stunden in halbstündlichen Abstufungen ausgesetzt. Mittels 4 verschiedener externer Standards wurden die entsprechenden Anteile dieser als Referenzen festgelegten Substanzen im ätherischen Öl bestimmt. Als Analysemethode wurde die GC-MS verwendet. Hauptinhaltsstoffe des Sommerbohlenkrautes italienischer und armenischer Herkunft waren Carvacrol (41-49%), γ -Terpinen (30-38%), α -Terpinen (4.7-5.6%), p-Cymen (3-5%) und β -Myrcen (2.5-2.6%). Die Hauptinhaltsstoffe von armenischem Gamander waren β -Pinen (25-28%), Thymol (6.1-7.4%), Germacren D (4.2-5.9%), D-Limonen (3.8-5.8%), β -Farnesen (4.7-5.2%), α -Pinen (3.2-5.0%), α -Thujen (4.0-4.8%), β -Myrcen (4.1-4.5%), Terpinen-4-ol (3.4-4.1%), γ -Terpinen (3.7-4.0%), Caryophyllen (2.9-3.3%) und Carvon (1.1-1.3%).

Insgesamt wurde eine Entfärbung des ätherischen Öls von Sommerbohlenkraut über die Lagerzeit festgestellt. Die Menge an ätherischem Öl nahm mit steigender Destillationszeit bis zu einem Maximum ab 1,5 Stunden zu. Dabei wurde eine Verringerung des Gehaltes an p-Cymen beobachtet. Bei einer Lagerzeit von 3 Monaten konnte keine Veränderung der Inhaltsstoffe beim Sommerbohlenkraut italienischer Herkunft festgestellt werden.

Stichwörter: *Satureja hortensis*, *Teucrium polium* L., ätherisches Öl, GC-MS

Abstract

In the context of a German-Armenian research cooperation in the fields of ethnobotanic and chemical analysis of medicinal plants, a first step in the analyzation of summer savoury (*Satureja hortensis*) and germander (*Teucrium polium* L.) had been conducted. The knowledge of the Armenian population in Tatev about any traditional usage of local salutary herbs generated an initial point. Based on this knowledge, dried material of those kinds were investigated regarding the essential oil quantity and quality. Furthermore, a comparison between summer savoury of Armenian and Italian origin followed.

Throughout the investigation, the distillation time was diversified (0.5h to 3.0h) and calibrated with 4 different external standards for summer savoury. With the help of 4 different external standards, their amounts in the essential oil were determined. As an analytical device GC-MS was used. The mean components of Italian and Armenian summer savoury were Carvacrol (41-49%), γ -Terpinene (30-38%), α -Terpinene (4.7-5.6%), p-Cymene (3-5%) and β -Myrcene (2.5-2.6%). The mean components of Armenian germander were β -Pinene (25-28%), Thymol (6.1-7.4%), Germacrene D (4.2-5.9%), D-Limonene (3.8-5.8%), β -Farnesen (4.7-5.2%), α -Pinene (3.2-5.0%), α -Thujene (4.0-4.8%), β -Myrcene (4.1-4.5%), Terpinen-4-ol (3.4-4.1%), γ -Terpinene (3.7-4.0%), Caryophyllene (2.9-3.3%) and Carvone (1.1-1.3%).

Furthermore, a decolouration of summer savoury's essential oil was noticed over a brief period of storage. The amount of essential oil increased with distillation time up to its limit reached first at 1,5h. At the same time, a decrease of p-Cymene was noticed. No decline of components was observed during a storage time of 3 months for summer savoury's essential oil of Italian origin.

Key words: *Satureja hortensis*, *Teucrium polium* L, essential oil composition, GS-MS

Einleitung

Das Sommerbohlenkraut zählt zu den Lippenblütlergewächsen (Lamiceae), beziehungsweise zur Unterfamilie der Nepetoide. Es ist daher artverwandt mit weiteren mediterranen Kräutern wie Thymian und Rosmarin. Die einjährige Pflanze unterscheidet sich von dem Winterbohlenkraut durch einen süßeren Geschmack und einer geringeren Größe. In ihrer Blütezeit zwischen Juli und August entwickelt das Sommerbohlenkraut weiße bis pinkfarbene Blüten. Zu einem Anteil von 0,3 – 1,7% enthält es ein ätherisches Öl, welches mittels Wasser- oder Wasserdampfdestillation gewonnen werden kann (Purle, 2017).

In der Türkei ist das Sommerbohlenkraut als "yaz zakeri, corba kekigi" bekannt und wird oft für kulinarische (beispielsweise als Kräutertee oder aromatischer Zusatz) und für medizinische Zwecke (beispielsweise in der Volksmedizin um Asthma, Koliken, Bronchitis and Husten zu behandeln (Gulsum Yadiz, July 2017) verwendet. Zudem wird das Sommerbohlenkraut für Bauch- und Darmbeschwerden in der Volksmedizin genutzt (Hajhashemi, Sadraei, Ghannadi, & Mohseni, 2000).

Der Gamander gehört der Familie der Lamiceae an. Es existieren über 340 Gamanderarten weltweit. Hauptsächlich ist er im Süd-West-Asian, Europa und Nordafrika vertreten. 12 von den 340 Arten wachsen davon im Iran (Mahmoudi R. a., 2013). Der Gamander wird für medizinische Zwecke verwendet. Gängige Behandlungen mit Gamander sind gegen Magen-Darm-Beschwerden, Diabetes und Rheuma. Als traditionelle iranische Medizin (TIM) wird es für Typ 2 Diabetes, Erkältung und Verdauungsbeschwerden eingesetzt (Bahramikia S1, Yazdanparast R., Institute of Biochemistry and Biophysics, University of Tehran, Tehran, Iran, 2012).

Seine Blüte ist weiß-pink und besitzt grüne Blätter, die oft zum Kochen verwendet werden. Oft wird es von Kräuterkennern gesammelt und auf regionalen Märkten vertrieben. Die oberirdischen Teile des *Teucrium polium* L., oder auch "mayramakhot", wie es in Armenien genannt wird, werden mit Wasseraufguss behandelt und gelten als entzündungshemmend (Hovsepyan, Stepanyan-Gandilyan, & Stollberg, 2017).

Material und Methoden

Die folgenden Materialien wurden eingesetzt:

- Rundlauf-Apparatur (Clevenger-Typ)
- GC-MS 2010 von Shimadzu
- Analysenwaage
- 15g Sommerbohlenkraut / 100g Gamander pro Versuch
- Lösemittel: Wasser, Heptan
- Reinigung: Ethanol
- Trocknungsmittel: Natriumsulfat

Das Sommerbohnenkraut und der Gamander wurden jeweils als Wildwuchs im Früh-Sommer 2017 und 2018 in Armenien geerntet, während von der italienischen Vergleichsprobe lediglich das Ursprungsland bekannt ist. Die Trockendrogen wurden zu entweder 15g oder 100g mittels Wasserdessillation verarbeitet. Dabei variierte die Destillationszeit beim italienischen Sommerbohnenkraut zwischen 0,5 und 3,0 Stunden in halbstündlichen Abstufungen, während für beide armenische Kräuter sich auf eine 3,0 Stundendestillation beschränkt wurde. Für jede Destillationszeit erfolgte eine dreifache Destillation. Die gewonnenen ätherischen Öle wurden aufgefangen, mit Natriumsulfat getrocknet und mit Heptan versetzt. Anschließend wurden die ätherischen Öle mittels der GC-MS jeweils doppelt vermessen.

Die Injektionstemperatur der GC-MS (Shimadzu GC-2010) belief sich auf 230°C, während die Säulentemperatur zwischen 65°C und 250°C lag. Das Aufteilungsverhältnis (split ratio) betrug 50. Die Säule besaß die Maße 30m*0.025mm mit 0.25µm Filmdicke. Als Trägergas wurde Helium mit einem Volumenstrom von 1mL/min eingesetzt.

Ergebnisse

Ätherisch-Öl Ausbeuten: Mengen und Farben

Die Menge an ätherischem Öl nahm mit steigender Destillationszeit zu, bis das Maximum mit 0,68mL ab 1,5 Stunden Destillationszeit erreicht wurde. Das Sommerbohnenkraut aus Armenien lieferte eine Menge von 0,37mL.

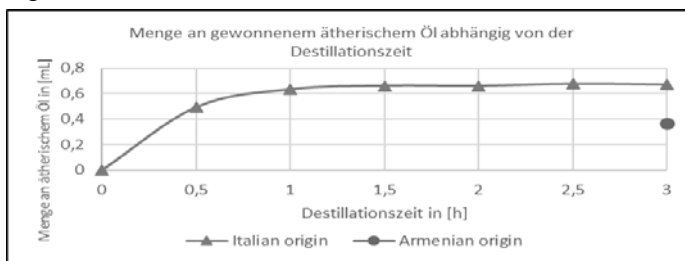


Abb. 1: Menge an gewonnenem ätherischem Öl des Sommerbohnenkrautes abhängig von der Destillationszeit

Fig. 1: Amount of gained essential oil of summer savoury depending on the time of distillation

Die im zweiten Durchgang destillierten Öle wiesen eine insgesamt dunklere Farbe auf, während sich die im ersten Schritt gewonnenen Öle über die Lagerzeit entfärbten. Zur Untersuchung der Einflussfaktoren wurden die ätherischen Öle nach erneuter Destillation direkt mit Stickstoff überschichtet und zusätzlich durch Aluminiumfolie lichtgeschützt im Kühlschrank bei 4°C gelagert. Dennoch wurde eine Entfärbung festgestellt.

Für das Sommerbohnenkraut ergab sich eine Ausbeute von 4,3%. Die Versuche mit armenischem Gamander (Erntezeitpunkte Sommer 2017 und 2018) erreichten ätherisch-Öl Mengen von 0,15mL pro 100g eingesetztem getrocknetem Material. Dies entspricht einer Ausbeute von 0,14%. Das Gamander-Material der Firma HERB™ jedoch wies kein ätherisches Öl auf. Mögliche Einflussfaktoren sind das Stadium der Pflanze bei seiner Ernte, anschließende Trocknungs- und Rebeverfahren.

Inhaltsstoffe der ätherischen Öle des Sommerbohnenkrautes

Aus den Gehalten der einzelnen Inhaltsstoffe der ätherischen Öle des italienischen und armenischen Sommerbohnenkrautes wurden die Mittelwerte für die Destillationszeit von 3 Stunden gebildet.

Tab. 1 Ergebnisse der GC-MS Analyse der italienischen und armenischen Kräuter**Tab. 1** Results of the GC-MS analysis of Italian and Armenian herbal material

Name	R.Time	Armenien Area%	Italien Area%
α -Thujen	10.664	1,84	1,49
α -Pinen	10.950	1,65	1,38
Camphen	11.821	0,11	0,1
β -Pinen	13.101	0,89	0,58
β -Myrcen	13.660	2,53	2,51
α -Phellandren	14.375	0,52	0,5
α -Terpinen	15.013	5,54	4,75
D-Limonen	15.462	0,41	0,4
β -Phellandren	15.886	0,23	0,23
p-Cymen	16.210	2,94	5,24
Eucalyptol	16.380	0,06	0,07
β -Ocimen	16.617	0,10	0,09
γ -Terpinen	17.075	38,19	30,65
α -Terpinolen	18.540	tr.	0,08
2-Cyclohexen-1-ol	20.657	0,11	0,18
2-Cyclohexen-1-ol	22.877	0,12	0,15
Terpinen-4-ol	26.328	0,17	0,28
Borneol	27.299	0,06	0,09
α -Terpineol	27.960	nd	tr.
Caryophyllen	36.869	0,73	0,98
Thymol	37.121	0,81	0,15
Allo-Aromadendren	37.437	0,07	n.d.
Carvacrol	37.871	41,69	49,3
β -Farnesen	38.055	0,27	tr.
Varidifloren	40.069	0,08	nd
Germacren D	40.345	0,07	nd
β -Bisabolen	40.579	0,66	0,73
Germacren B	41.091	0,18	nd
Spathuleneol	47.986	tr.	nd
Napthalen	60.493	nd	tr.
Summe		99,99	99,92

tr. <0,05; nd, Komponente nicht detektiert

Die direkte Gegenüberstellung ergab eine starke Abweichung bei Inhaltsstoffen hoher Konzentration. Dabei weist der armenische Vertreter deutlich höhere Werte für α -Thujen, α -Pinen, α -Terpinen and γ -Terpinen auf. Camphen, β -Myrcen, α -Phellandren, D-Limonen, Eucalyptol, β -Ocimen, α -Terpinolen, 2-Cyclohexen-1-ol, Borneol and β -Bisabolen zeigen bei insgesamt geringerer Konzentration auch kleinere Differenzen auf. Germacren D und Spathuleneol wurden in lediglich einem ätherischen Öl armenischer Herkunft nachgewiesen.

Inhaltsstoffe der ätherischen Öle des Gamanders

Armenischer Gamander, gesammelt im Früh-Sommer (Mai-Juni) 2017 und 2018 wurde 2mal, beziehungsweise 3mal mittels Clevenger-Apparatur destilliert. Weitere Versuche wurden mit Gamander der Firma HERB™ durchgeführt.

50 verschiedene Komponenten wurden mit Hilfe der GC-MS identifiziert. Aufgrund von kleinen Anteilen und ungenauen Bestimmungen durch die Bibliothek der GC-MS wurden diese auf die 28 Hauptkomponenten reduziert, die in der Tabelle 2 aufgeführt sind.

Tab. 2 Ergebnisse der GC-MS Analyse des armenischen Gamanders 2017 und 2018**Tab. 2** Results of the GC-MS analysis of Armenian germander of 2017 and 2018

	R.Time	Armenien Area% 2017	Armenien Area% 2018
α -Thujen	10,631	4,06	4,79
α -Pinen	10,922	5,07	3,19
β -Pinen	13,078	25,85	28,39
β -Myrcen	13,615	4,55	4,18
α -Terpinen	14,969	1,64	1,87
D-Limonen	15,418	5,79	3,85
p-Cymen	16,333	2,10	1,86
Eucalyptol	16,972	0,86	1,58
β -Ocimen	18,462	0,10	0,09
γ -Terpinen	22,179	3,72	4,09
α -Terpinolen	26,255	0,54	0,60
Linalool	27,556	0,39	0,36
Terpinen-4-ol	29,760	3,42	4,26
Carvon	32,156	1,31	3,20
Copaen	33,892	1,92	1,51
Caryophyllen	36,238	2,90	3,23
Thymol	36,951	7,46	6,09
Carvacrol	37,564	2,24	1,30
β -Farnesen	37,727	4,74	5,10
α -Caryophyllen	38,553	0,27	0,28
Germacren D	39,186	5,93	4,89
β -Bisabolen	39,985	0,48	1,39
o-Menth-8-en	40,923	1,67	2,19
δ -Cardinen	41,448	1,09	0,76
Spathuleneol	44,046	0,66	0,99
Caryophyllen-oxid	45,995	0,75	1,05
α -Cadinol	47,918	0,19	0,37
β -Eudesmol	48,946	0,65	nd
Summe		92,19	93,85

nd, Komponente nicht detektiert

Die Komponenten höchster Konzentration waren dabei β -Pinen (25-28%), Thymol (6.1-7.4%), Germacren D (4.2-5.9%), D-Limonen (3.8-5.8%), β -Farnesen (4.7-5.2%), α -Pinen (3.2-5.0%), α -Thujen (4.0-4.8%), β -Myrcen (4.1-4.5%), Terpinen-4-ol (3.4-4.1%), γ -Terpinen (3.7-4.0%), Caryophyllen (2.9-3.3%) und Carvon (1.1-1.3%). Unterschiede zwischen dem Gamander Material von 2017 und 2018 konnten im Gehalt von Carvon, β -Eudesmol, Eucalyptol, Thymol, D-Limonen und β -Pinen aufgezeigt werden. Dabei handelte es sich um Proben aus der gleichen Region, die jedoch von unterschiedlichen Parteien geerntet wurden. Als mögliche Fehlerquellen kommen Wägefehler, Dosierfehler bei der Vorbereitung der ätherischen Öle für die GC-MS, Analysenfehler durch die GC-MS (hier werden die größten Fehlerquadrate kalibrierter Inhaltsstoffe berücksichtigt), aber auch Einflussfaktoren wie Sonneneinstrahlung, Nährstoffkonzentrationen des Bodens, Wachstumsstadium der Pflanze, damit verbundener Erntezeitpunkt und Trocknungsverfahren in Frage.

Weitere Erkenntnisse

Zur Untersuchung der Lagerzeit als Einflussfaktor auf die Qualität der ätherischen Öle des Sommerbohnenkrautes italienischer Herkunft wurde ein destilliertes ätherisches Öl über einen Gesamtzeitraum von 3 Monaten alle 2-3 Wochen mittels der GC-MC auf seine Inhaltsstoffe analysiert. Trotz der erwähnten Entfärbung konnten keine Veränderungen über die Lagerzeit festgestellt werden.

Ebenfalls wurde die Destillationszeit als Einflussfaktor untersucht. Für die Destillationszeiten von 0,5h bis 3h (Abstufungen 0,5h, 1h, 1,5h, 2h, 2,5h und 3h) wurden jeweils dreifach-Destillationen des Sommerbohnenkrautes italienischer Herkunft vorgenommen und durch GC-MS bei gleichbleibender Methodik untersucht. Für die Inhaltsstoffe Carvacrol, γ -Terpinen, p-Cymen, Terpinen-4-ol und α -Thujen konnte ein leichter Anstieg bei einer Destillationszeit von 1,5h nachgewiesen werden. Der Gehalt von p-Cymen lag bei einer Destillationszeit von 0,5h am höchsten und sank bereits nach der ersten Erhöhung der Destillationszeit stark ab. Durch die Kreislaufführung des Destillationswassers weist dies auf eine zeitabhängige Veränderung der Hydrolatzusammensetzung hin und auf unterschiedliche Flüchtigkeiten der Einzelkomponenten hin.

Mittels externer Standards von Carvacrol, γ -Terpinen, p-Cymen und β -Myrcen wurden die Mengen dieser Inhaltsstoffe im ätherischem Öl des Sommerbohnenkrautes ermittelt. In 15g getrocknetem Sommerbohnenkraut italienischer Herkunft, wurden 0.0007916 μ L bis 0.006497 μ L (durchschnittlich 0.0006960 μ L) an p-Cymen, für Carvacrol 0.0183 μ L bis 0.0193 μ L (durchschnittlich 0.0189 μ L), für γ -Terpinen 0.0109 μ L bis 0.0121 μ L (durchschnittlich 0.0116 μ L) und für β -Myrcen von 0,0004334 μ L bis 0,0005416 μ L (durchschnittlich 0,0004869 μ L) festgestellt.

Literaturverzeichnis

- Bahramikia S1, Yazdanparast R., Institute of Biochemistry and Biophysics, University of Tehran, Tehran, Iran. (2012, November). www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/22344867. Retrieved Februar 1, 2018, from <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/22344867>
- Ewalt, K. (n.d.). *online-shop.eppendorf*. Retrieved June 22, 2018
- Gulsum Yadiz, M. C. (July 2017). Antioxidant Activities of *Satureja hortensis* L. Essential Oil during the Flowering Periode.
- Hajhashemi, V., Sadraei, H., Ghannadi, A., & Mohseni, S. (2000). *Antispasmodic and antidiarrhoeal effect of Satureja hortensis L. essential oil*. *Journal of Ethnopharmacology* 71, 187–192.
- Hovsepyan, R., Stepanyan-Gandilyan, N., & Stollberg, C. (2017). *Ethnomedicinal knowledge and exploitation of medicinal plants resources by local population in Tatev and surrounding villages (Syunik, Armenia)*.
- Lamnauer, D. (n.d.). *A Guide to Medicinal Plants in North Africa*. Retrieved Februar 1, 2018
- Mahmoudi, R. a. (2013). *International food research journal*. Retrieved Februar 1, 2018, from [http://www.ifrj.upm.edu.my/20%20\(04\)%202013/27%20IFRJ%2020%20\(04\)%202013%20Mahmoudi%20\(266\).pdf](http://www.ifrj.upm.edu.my/20%20(04)%202013/27%20IFRJ%2020%20(04)%202013%20Mahmoudi%20(266).pdf).
- Mahmoudi, R. a. (2013, Januar 4). *Teucrium polium* L. essential oil: phytochemical component and antioxidant properties. *International Food Research Journal*.
- Purle, T. (2017, Juli 22). *Kraeuter-buch.de*. Retrieved from <http://www.kraeuter-buch.de/kraeuter/Bohnenkraut.html>