

# Influência de períodos de secagem de folhas no óleo essencial de erva-cidreira (quimiotipo limoneno-carvona)<sup>1</sup>

## Influence of drying periods of leaves on *Lippia alba* (limonene-carvone chemotype) essential oil

Maurício Reginaldo Alves dos Santos<sup>1</sup> e Renato Innecco<sup>2</sup>

### RESUMO

O objetivo do presente trabalho foi avaliar o efeito de diferentes períodos de secagem natural de folhas de *Lippia alba*, quimiotipo limoneno-carvona, nas estações chuvosa e seca, no óleo essencial e seus constituintes. Foram avaliados sete períodos de secagem (0, 2, 4, 6, 8, 12 e 16 dias). Utilizou-se o delineamento inteiramente casualizado com quatro repetições, de 500 g de folha fresca. Determinou-se o teor de óleo essencial e de seus constituintes majoritários. Na estação seca, a obtenção de óleo essencial foi numericamente superior à estação chuvosa. Em ambos os casos, o rendimento foi crescente até o quarto dia, decrescendo em seguida. Os teores de limoneno e carvona foram afetados pelo período de secagem.

**Termos para indexação:** Verbenaceae, *Lippia alba*, planta medicinal, pós-colheita.

### ABSTRACT

The objective of this work was to evaluate the effects of natural drying periods of *Lippia alba* (limonene-carvone chemotype) leaves, at the rainy and dry seasons, on essential oil and their constituents. Seven drying periods (0, 2, 4, 6, 8, 12 and 16 days) were evaluated. The entirely randomized design with four replications of 500 g of fresh leaves was used. Essential oil content and its principal compounds were determined. Essential oil production was numerically higher at the dry than at the rainy season. In both seasons essential oil extraction increased until the fourth day, then it decreased. Limonene and carvone yields were influenced by drying periods.

**Index terms:** Verbenaceae, *Lippia alba*, medicinal plant, post-harvest.

<sup>1</sup> Parte de tese de Doutorado, do primeiro autor, defendida junto à UFC, com concessão de bolsa pela CAPES.

<sup>2</sup> Biólogo, D.Sc., Universidade Federal do Ceará. E-mail: mrasantos@zipmail.com.br

<sup>3</sup> Engenheiro Agrônomo, D.Sc., Prof. Adjunto da Universidade Federal do Ceará, Dep. de Fitotecnia. E-mail: innecco@ufc.br

## Introdução

*Lippia alba* (Mill.) N.E. Brown é uma espécie herbácea, cujo valor terapêutico tem sido bastante explorado na fitoterapia brasileira, no tratamento de ansiedade, insônia, doenças respiratórias e distúrbios gastrointestinais (Craveiro et al., 1987; Siminionato, 1994; Pascual et al., 2001). Conhecidas principalmente pelo nome popular de erva-cidreira, as plantas pertencentes a esta espécie caracterizam-se pela grande plasticidade fenotípica e ampla distribuição pelo Brasil e América do Sul (Vale, 1999).

As variações nos constituintes do óleo essencial de *L. alba* permitiram a divisão desta espécie em quimiotipos. As plantas do quimiotipo limoneno-carvona, objeto deste estudo, caracterizam-se pela predominância de limoneno e carvona e ausência de citral em seu óleo essencial (Matos, 1996). O limoneno é utilizado industrialmente como solvente para produtos à base de óleo e resina e para dar sabor e/ou aroma de laranja em produtos de limpeza, alimentícios e cosméticos. A carvona é usada como carminativa e em produtos cosméticos; em alguns estudos foi demonstrada sua atividade bactericida e fungicida (Opdyke, 1979; Clayton e Clayton, 1981; Karr et al., 1990; Badies, 1992).

A tecnologia de produção de metabólitos secundários pelas plantas envolve o estabelecimento, para cada cultura, de diversas técnicas que visam a maximização do aproveitamento destas substâncias. A secagem de plantas medicinais tem por objetivo retirar o alto teor de água presente em células e tecidos frescos, permitindo a manutenção da qualidade do material vegetal por um período de tempo maior (Oliveira et al., 1991; Martins, 2000). Este processo evita a proliferação de microrganismos e permite manter as características físico-químicas do material (Svoboda et al., 1990; Bacchi, 1996), através da estabilização dos metabólitos secundários, principalmente quando estes são passíveis de degradação por enzimas presentes no tecido (Di Stasi, 1996). Especialmente no caso de plantas produtoras de óleos essenciais, a secagem deve ser muito criteriosa, pois estes compostos são altamente voláteis e instáveis (Blanco et al., 2000a; Blank et al., 2002).

Neste trabalho, objetivou-se determinar o tempo adequado de secagem das folhas de erva-cidreira, quimiotipo limoneno-carvona, visando a maximização da extração dos seu óleo essencial, nas condições do Ceará, nas estações seca e chuvosa.

## Material e Métodos

O ensaio de campo foi realizado no Horto de Plantas Medicinais da Fazenda Experimental do Vale do Curu, do Centro de Ciências Agrárias da Universidade Federal do Ceará, no município de Pentecoste, CE. Nesta região, a estação chuvosa (1º semestre) apresenta médias de 711,17 mm de precipitação pluviométrica, 27,21°C de temperatura, 77,11% de umidade e 7,02 horas de luz por dia; a estação seca (2º semestre) se caracteriza por médias de 68,12 mm de precipitação, 27,59°C de temperatura, 62,50% de umidade e 9,50 horas de luz por dia (dados do Departamento de Engenharia Agrícola/UFC - médias de 1997 a 2001).

Utilizou-se delineamento experimental inteiramente casualizado, com quatro repetições, sendo a unidade experimental constituída de 500 g de folha fresca, colhida manualmente. As colheitas foram realizadas em maio e novembro de 2002, às nove horas, em plantas de erva-cidreira (*Lippia alba* Mill. N.E. Brown - Verbenaceae; det.: FR.S. Pires; exsicata n°21.806 - Herbário Prisco Bezerra/UFC; coleta: Horto de Plantas Medicinais/UFC, 21.02.1995) com oito meses de idade na primeira colheita, em fase vegetativa, mantidas sob irrigação e espaçamento de 0,50 x 0,50m. Avaliou-se sete períodos de secagem (0, 2, 4, 6, 8, 12 e 16 dias). As amostras do controle foram submetidas imediatamente à extração, as demais foram levadas para secador natural a plena sombra do Horto de Plantas Medicinais da FEVC, acondicionadas em bandejas de tela plástica para maior circulação de ar.

Foram também coletadas oito amostras de 20g de folhas que foram submetidas a secagem em estufa a 45°C até atingirem peso constante, a fim de determinar a umidade média das amostras no início do experimento.

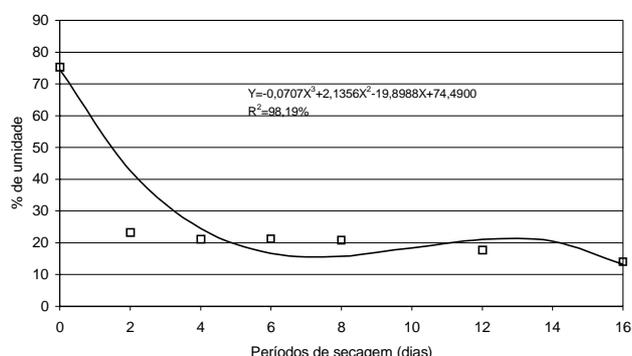
Determinou-se a percentagem de umidade, a quantidade de óleo essencial por quilo de matéria seca, extraído por arraste a vapor (Craveiro et al., 1981), e o teor de limoneno e carvona no óleo essencial, através da CG/EM (Alencar et al., 1984). Estes procedimentos foram repetidos nas estações chuvosa e seca.

Os dados obtidos foram submetidos à análise de variância; determinou-se equações de regressão para as médias de percentagem de umidade e de teor de óleo essencial; as médias dos teores de limoneno e carvona foram comparadas pelo teste de Tukey, ao nível de 5% de significância (Gomes, 1986).

## Resultados e Discussão

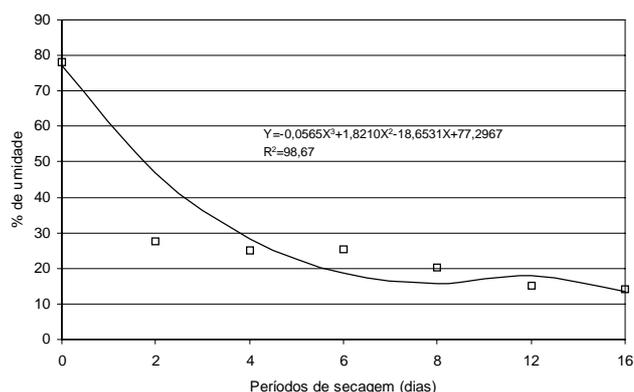
Na análise de variância, apresentada na Tabela 1, observa-se que o período de secagem influencia significativamente a percentagem de umidade e os teores de óleo essencial, limoneno e carvona, nas duas estações climáticas estudadas.

Nas Figuras 1 e 2 observa-se que, nas duas estações, a perda de água pelos tecidos vegetais foi mais intensa nos dois primeiros dias de secagem. A partir daí, até o oitavo dia, tendeu à estabilização. Mattos (2000) atribui este tipo de estabilização temporária ao equilíbrio higroscópico que se estabelece entre o material vegetal e o ambiente.



**Figura 1** - Percentagem de umidade de folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação chuvosa. Pentecoste-CE, 2002.

Do oitavo ao 16º dia houve nova perda de umidade. Dessa forma, obteve-se um comportamento representado pela equação cúbica, com coeficientes de determinação bastante expressivos, em torno de 98%.



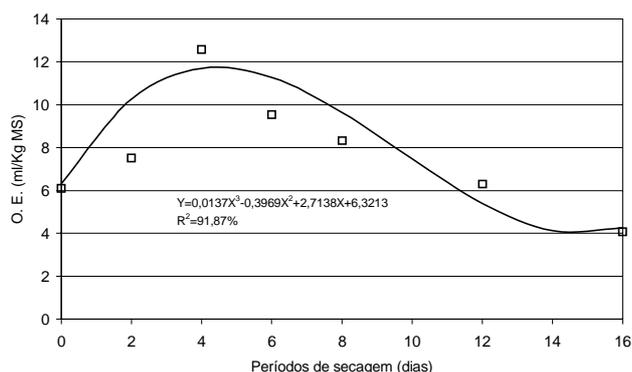
**Figura 2** - Percentagem de umidade de folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação seca. Pentecoste-CE, 2002.

Nas Figuras 3 e 4, pode-se observar que os teores de óleo essencial foram superiores na estação seca em relação à estação chuvosa. Pode-se atribuir este fato ao aumento da temperatura e, principalmente, da intensidade luminosa durante a estação seca. Estes resultados estão de acordo com os obtidos por Mattos (2000) e Cruz (1999), que trabalharam com hortelã-japonesa (*Mentha arvensis* L.) e hortelã-rasteira (*Mentha x villosa* Huds.), respectivamente. Nestes trabalhos, também se considerou a intensidade luminosa e a temperatura como os principais fatores responsáveis pelo aumento da produção de óleo essencial na estação seca. Estes fatores ambientais atuam diretamente em processos primários, como fotossíntese e respiração, e podem influenciar indiretamente a produção de metabólitos secundários, cuja síntese depende de produtos do metabolismo primário. Além disso, a intensidade luminosa pode influenciar a produção de óleo essencial através da ativação de enzimas fotosensíveis envolvidas na rota do ácido mevalônico (Bell, 1981; Taiz e Zeiger, 1991).

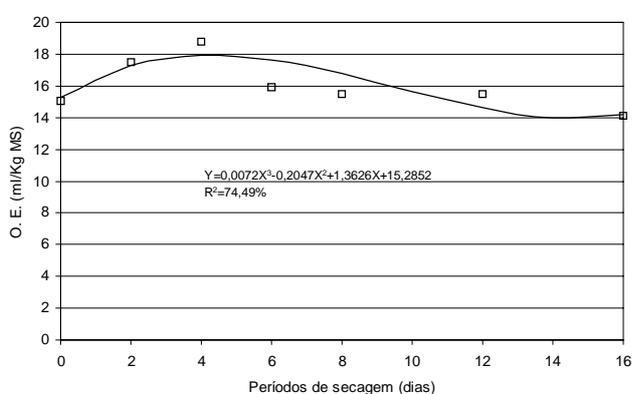
**Tabela 1** - Quadrados médios das análises de variância para percentagem de umidade, teores de óleo essencial, limoneno e carvona em folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem. Pentecoste, CE, 2002.

FV	GL	Q. M.							
		Estação chuvosa				Estação seca			
		Umidade	Óleo	Limoneno	Carvona	Umidade	Óleo	Limoneno	Carvona
Secagem	6	1.802,65**	30,17**	2,52**	3,75**	1.990,22**	9,95**	0,82**	1,24**
Resíduo	21	4,90	3,75	0,65	0,76	5,77	0,67	0,14	0,21
C. V. (%)		8,01	19,80	3,43	3,18	7,87	5,84	1,38	1,67

\*\* - F significativo ao nível de 1% de probabilidade.



**Figura 3** - Concentração de óleo essencial em folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação chuvosa. Pentecoste-CE, 2002.



**Figura 4** - Concentração de óleo essencial em folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação seca. Pentecoste-CE, 2002.

Em relação aos períodos de secagem, os teores em óleo essencial obedeceram ao comportamento cúbico, com  $R^2$  acima de 90 %. Nas duas estações, o rendimento foi crescente até atingir seu máximo aos quatro dias de secagem, obtendo-se 12,6 mL.kg<sup>-1</sup> na estação chuvosa e 18,8 mL.kg<sup>-1</sup> na estação seca; a partir daí decresceu até o 16° dia, quando os teores de óleo essencial foram os menores obtidos: 4,1 e 14,2 mL.kg<sup>-1</sup> nas estações chuvosa e seca, respectivamente. É possível que, até o quarto dia, tenha ocorrido síntese de óleo essencial a partir de precursores acumulados nos tecidos vegetais. A síntese e a degradação de substâncias que compõem o óleo essencial são processos bioquímicos dinâmicos que podem ocorrer mesmo após a morte celular (Gottlieb e Salatino, 1987).

Também pode-se supor que tenha aumentado a disponibilização do óleo essencial até o quarto dia, devido à perda de integridade das membranas celulares que retêm o óleo nas células vivas. Do quarto

ao 16° dia, a redução no óleo essencial pode ser atribuída à sua volatilização. Estudos realizados com menta (*Mentha piperita* L.) e alecrim (*Rosmarinus officinalis* L.) evidenciaram a fragilidade das estruturas secretoras e a suscetibilidade dos constituintes de óleos essenciais à volatilização durante o processo de secagem do material vegetal (Blanco et al., 2000a; Blanco et al., 2000b).

Mattos (2000) também obteve o maior teor de óleo essencial de hortelã-japonesa (*Mentha arvensis* L.) aos quatro dias de secagem, na estação seca (5,9 mL.kg<sup>-1</sup>). Porém, na estação chuvosa, o maior teor foi obtido aos oito dias de secagem (4,8 mL.kg<sup>-1</sup>).

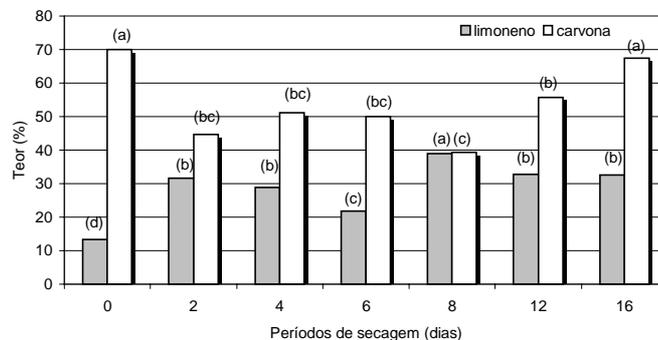
As Figuras 5 e 6 representam, nas estações chuvosa e seca, os teores dos dois constituintes majoritários do óleo essencial, limoneno e carvona.

Na estação chuvosa, o período de oito dias de secagem resultou nos maiores teores de limoneno, com média equivalente a 39,0% do óleo essencial. Na mesma estação, os maiores teores de carvona foram obtidos no óleo extraído de folhas frescas e após dezesseis dias de secagem obtendo-se, respectivamente, 70,0 e 67,5%.

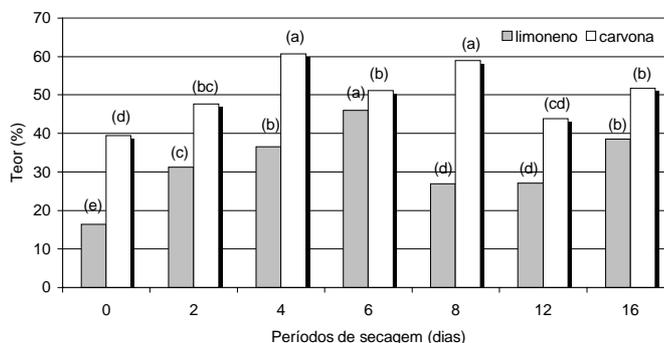
Na estação seca, o maior teor de limoneno foi 46,0%, obtido aos seis dias de secagem. Para carvona, os períodos de quatro e oito dias foram os que resultaram nos maiores teores, 60,7 e 59,0%, respectivamente.

A falta de uniformidade desses resultados reflete o dinamismo das interconversões que ocorrem continuamente entre os constituintes dos óleos essenciais. Estas interconversões envolvem reações de oxidação, redução, hidratação, desidratação, ciclização e isomerização, influenciadas por fatores ambientais, como luz, temperatura, teor de água no solo e umidade relativa do ar (Castro, 2001). Da composição do óleo resultante dependem suas propriedades medicinais e o seu valor nas indústrias de perfumaria, cosmética, aromatização de alimentos, química e outras (Costa, 1994).

As aplicações fitoterápicas e industriais dos óleos essenciais e, conseqüentemente, a importância econômica de sua produção, têm direcionado os estudos sobre secagem para a obtenção de composições que atendam às exigências do mercado. Com este objetivo, Blank et al. (2002) estudaram o efeito da secagem de folhas de *Melissa officinalis* L. no teor e na composição do óleo essencial. Observou-se que a produção do óleo essencial não foi significativamente afetada, mas os teores dos seus



**Figura 5** - Percentagens de limoneno e carvona no óleo essencial extraído de folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação chuvosa (as letras indicam significância a 5% pelo teste de Tukey). Pentecoste, CE, 2002.



**Figura 6** - Percentagens de limoneno e carvona no óleo essencial extraído de folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, submetidas a crescentes períodos de secagem natural durante a estação seca (as letras indicam significância a 5% pelo teste de Tukey). Pentecoste, CE, 2002.

componentes de interesse, geranial e neral, foram influenciados positivamente pela secagem. Martins et al. (2000) também recomendam a secagem para maximizar a obtenção de citral a partir de folhas de capim-limão (*Cymbopogon citratus* D.C. Stapf.). Por outro lado, Ehlert et al. (2000) relataram um efeito negativo da secagem de folhas de alfavaca-cravo (*Ocimum gratissimum*), que provoca perda do óleo essencial e de seus constituintes de interesse comercial.

## Conclusões

- 1) O rendimento de óleo essencial é numericamente maior na estação seca do que na chuvosa.
- 2) Após a colheita, as folhas de *L. alba*, quimiotipo limoneno-carvona, devem ser secas por quatro dias em secador natural.
- 3) Os teores de limoneno e carvona são afetados pelo período de secagem.

## Referências Bibliográficas

- ALENCAR, J.W.; CRAVEIRO, A.A.; MATOS, F.J.A. Kovats indexes as a preselection routine in mass-spectra library searches of volatiles. **Journal of Natural Products**, n.47, v.5, p.890-892, 1984.
- BACCHI, E.M. **Controle de qualidade de fitoterápicos**. Botucatu: UNESP, 1996. 186p.
- BADIES, A.Z. Antimycotic effects of Cardamom essential oil components on toxigenic molds. **Egyptian Journal of Food Science**, v.20, p.441-452, 1992.
- BELL, E.A. The physiological role(s) of secondary (natural) products. In: CONN, E.E. (Ed.) **Biochemistry of plants**. v.7. New York: Academic Press, 1981. p.1-18.
- BLANCO, M.C.S.G.; MING, L.C.; MARQUES, M.O.M.; BOVI, O.A. Influência da temperatura de secagem no teor e na composição química do óleo essencial de menta. **Horticultura Brasileira**, v.18, suplemento, p.901-903, 2000a.
- BLANCO, M.C.S.G.; MING, L.C.; MARQUES, M.O.M.; BOVI, O.A. Influência da temperatura de secagem no teor e na composição química do óleo essencial de alecrim. **Horticultura Brasileira**, v.18, suplemento, p.903-905, 2000b.
- BLANK, A.F.; ALVES, P.B.; FONTES, S.M.; SANTOS, M.F.; DANTAS, I.B.; SILVA, P.A.; MENDONÇA, M.C.; ARRIGONI-BLANCK, M.F.; COSTA, A.G.; SILVA-MANN, R. Efeito do horário de colheita e secagem no teor e na composição química de óleo essencial de erva cidreira verdadeira (*Melissa officinalis* L.). In: SIMPÓSIO DE PLANTAS MEDICINAIS DO BRASIL, 17., 2002, Cuiabá. **Resumos...** Cuiabá, 2002. (Resumo AG-40 em CDROM).
- CASTRO, D.M. **Efeito da variação sazonal, colheita selecionada e temperaturas de secagem sobre a produção de biomassa, rendimento e composição de óleos essenciais de folhas de *Lippia alba* (Mill.) N. E. Br. ex Britt. & Wilson (Verbenaceae)**. 2001. 132 f. Tese (Doutorado em Agronomia/Horticultura)–Universidade Estadual Paulista, Botucatu.
- CLAYTON, G.; CLAYTON, F. (Eds.) **Paty's industrial hygiene and toxicology**. v.2B. New York: Wiley, 1981. p.3232.
- COSTA, F.A. **Farmacognosia**. 5.ed., v.1. Lisboa: Fundação Calouste, 1994. 490p.
- CRAVEIRO, A.A.; ALENCAR, J.W.; MATOS, F.J.A.; FERNANDES, A.G. Contribuição à quimiotaxia do gênero *Lippia*. **Ciência e Cultura**, v.39, n.7, p.530, 1987.
- CRAVEIRO, A.A.; FERNANDES, A.G.; ANDRADE, C.H.S.; MATOS, F.J.A.; ALENCAR, J.W.; MACHADO, M.I.L. **Óleos essenciais de plantas do Nordeste**. Fortaleza: UFC, 1981. 209p.
- CRUZ, G.F. **Desenvolvimento de sistema de cultivo para hortelã-rasteira (*Mentha villosa* Huds.)**. 1999. 35 f. Dissertação (Mestrado em Agronomia/Fitotecnia)–Universidade Federal do Ceará, Fortaleza.
- DI STASI, L.C. **Plantas medicinais: arte e ciência**. São Paulo: UNESP, 1996. 230p.
- EHLERT, P.A.D.; LUZ, J.M.Q.; INNECCO, R.; MATTOS, S.H. Influência do período de secagem no teor de óleo essencial de alfavaca-cravo. In: WORKSHOP DE PLANTAS MEDICINAIS DE BOTUCATU, 4., 2000, Botucatu. **Anais...** Botucatu: UNESP, 2000. p.26.
- GOMES, F.P. **Curso de estatística experimental**. São Paulo: Nobel, 1986. 430p.
- GOTTLIEB, O.R.; SALATINO, A. Função e evolução de óleos essenciais e de suas estruturas secretoras. **Ciência e Cultura**, v.39, n.8, p.707-716, 1987.
- KARR, L.L.; DREWES, C.D.; COATS, J.R. Toxic effects of dextro-limonene in the earthworm *Cisenia foetida* (Savigny). **Pesticidal Biochemical Physiology**, v.36, p.175-186, 1990.
- MARTINS, P.M. **Influência da temperatura e da velocidade do ar de secagem no teor e na composição química do óleo essencial de capim-limão (*Cymbopogon citratus* (D.C.) Stapf.)**. 2000. 77 f. Dissertação (Mestrado em Agronomia)–Universidade Federal de Viçosa, Viçosa.
- MARTINS, P.M.; MELO, E.C.; CORRÊA, P.C.; BARBOSA, L.C.A.; SANTOS, R.H.S. Influência da temperatura e velocidade do ar de secagem no teor e composição química do óleo essencial de capim-limão. **Horticultura Brasileira**, v. 18, suplemento, p.911-913, 2000.
- MATOS, F.J.A. As ervas cidreiras do nordeste do Brasil: estudo de três quimiotipos de *Lippia alba*

(Mill.) N.E. Brown (Verbenaceae). Parte II – Farmacoquímica. **Revista Brasileira de Farmácia**, v.77, n.4, p.137-141, 1996.

MATTOS, S.H. **Estudos fitotécnicos da *Mentha arvensis* L. var. *piperacens* Holmes como produtora de mentol no Ceará**. 2000. 98 f. Tese (Doutorado em Agronomia/Fitotecnia)–Universidade Federal do Ceará, Fortaleza.

OLIVEIRA, F.; AKISUE, G.; AKISUE, M. **Farmacognosia**. São Paulo: Atheneu, 1991. 412p.

OPDYKE, D.L. Monographs on fragrance raw materials. **Food and Cosmetical Toxicology Supplement**, v.17, p.695-923, 1979.

PASCUAL, M.E.; SLOWING, K.; CARRETERO, E.; SANCHEZ-MATA, D.; VILLAR, A. *Lippia*: traditional uses, chemistry and pharmacology: a review. **Journal of Ethnopharmacology**, v.76, n.3, p.201-214, 2001.

SIMINIONATO, C.P. Relato de observações sobre o uso de plantas medicinais em uma comunidade rural (Florianópolis). In: SIMPÓSIO DE PLANTAS MEDICINAIS DO BRASIL, 13., 1994, Fortaleza. **Resumos...** Fortaleza: FINEP, 1994. p.134.

SVOBODA, K.P.; HAY, R.K.M.; WATERMAN, P.G. The grow and volatile oil yield of summer savory (*Satureja hortensis*) in cool wet environment. **Journal of Horticultural Science**, v.65, p.659-665, 1990.

TAIZ, L.; ZEIGER, E. Surface protection and secondary defense compounds. In: \_\_\_\_\_. **Plant Physiology**. Redwood City: Benjamin Cummings, 1991. p.318-345.

VALE, T.G. **Estudo farmacológico comparativo de óleos essenciais de quimiotipos de *Lippia alba* (Mill.) N.E. Brown**. 1999. 121 f. Dissertação (Mestrado em Farmacologia)–Universidade Federal do Ceará, Fortaleza.