

Deux succédanés du thym:

**L'*Origanum heracleoticum* L. et la *Majorana onites*
(L.) Benth.**

Hakikî kekik yerine kullanılan iki bitki:

***Origanum heracleoticum* L. ve *Majorana onites* (L.) Benth.**

Mekin TANKER *

En Anatolie, le thym véritable a au moins deux succédanés: *Origanum heracleoticum*, dont les tiges fleuries sont vendues à İstanbul, et la *Majorana onites* dont on consomme les tiges fleuries à İzmir. Les premières sont surnommées «thym d'İstanbul (İstanbul kekiği)» et les secondes «thym d'İzmir (İzmir kekiği)».

Notre travail porte sur l'étude pharmacognosique de ces deux plantes. Il est divisé en deux parties. Dans la partie botanique, nous allons étudier les caractères morphologiques externes de ces plantes et nous déterminerons leurs caractères anatomiques (tige, feuilles et bractées). Dans la partie chimique-analytique, nous nous occuperons de l'huile essentielle qu'elles contiennent et nous allons comparer ces essences avec celles des divers origans commerciaux.

ÉTUDE BOTANIQUE

Morphologie

Origanum heracleoticum L. Plante vivace de 40-50 cm, d'un vert pâle. Tige plus ou moins pubescente à poils hérissés. Feuilles ovales, entières ou faiblement dentés; les inférieures brièvement pétiolées, les supérieures sessiles. Epis denses, ovoïdes ou oblongs, groupés au sommet des rameaux et formant une panicule. Bractées vertes, petites, ovales, aigues,

[*] Farmakognozi Kürsüsü, Eczacılık Fakültesi, Üniversite, İstanbul.

glabres ou à poils courts et raides, dépassant à peine le calice; face intérieure très ponctuée de glandes, face extérieure presque nue; bractées inférieures glanduleuses sur les deux faces. Calice à dents égales, lancéolées, aiguës, ponctuées de glandes. Corolle blanche, à tube inclus dans le calice ou émergeant faiblement (Fig. 1).

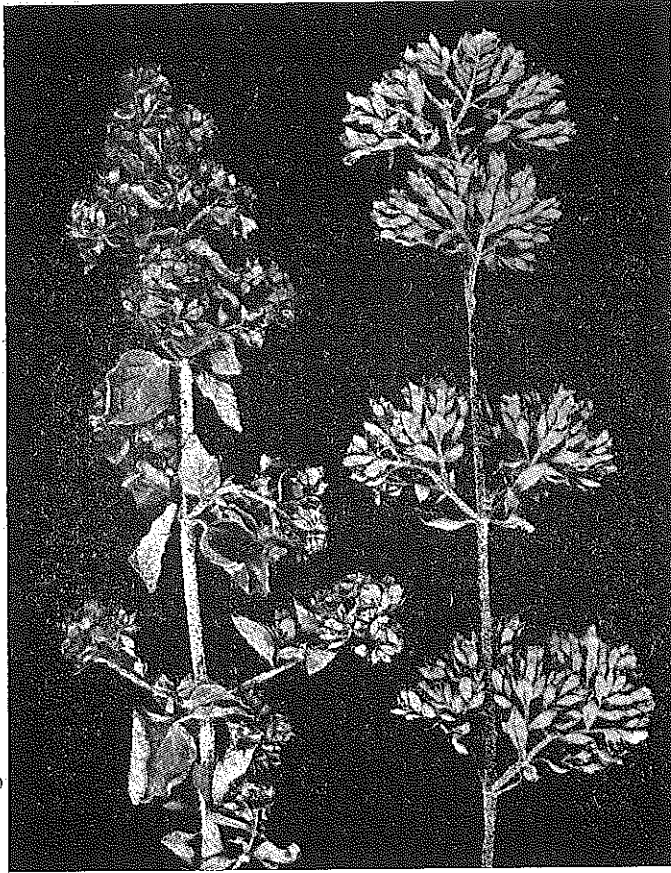


Fig. 1. *Origanum heracleoticum* L. Rameaux feuillés et fleuris.

Majorana onites (L.) Benth. Plante vivace de 40-50 cm. d'un gris verdâtre. Tige ligneuse à rameaux érigés; poils de deux types: poils sécréteurs à tête unicellulaire et poils tecteurs pluricellulaires assez rares. Epis denses, ovoïdes, formant une corymbe composée, plane. Feuilles florales oblongues-lancéolées, plus courtes que la pédoncule. Bractées ovales-orbiculaires, aiguës, disposées sur 4 rangs, un peu plus longues que le

calice; face extérieure à nervures prononcées, poilue, face intérieure nue. Calice non bilabié, fendu en avant jusqu'à la base, ovale - spatulé, pourvue au sommet de 3 dents très courtes, poilu sur les deux faces; face extérieure glanduleuse. Corolle petite, blanche, à tube aussi long que le calice (Fig. 2).

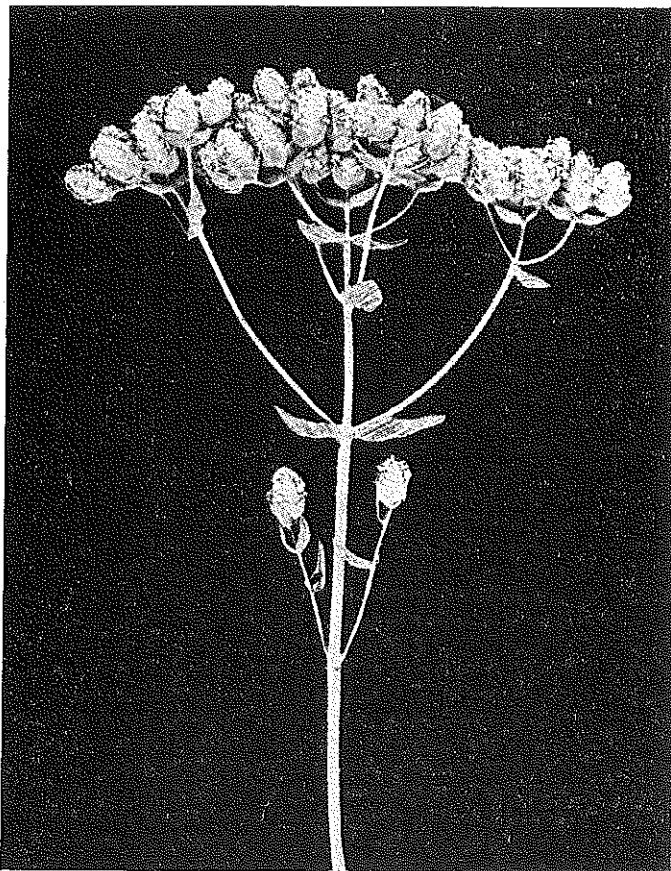


Fig. 2. *Majorana onites* (L.) Benth. Tige fleurie.

Anatomie

O. heracleoticum. Tige: Epiderme à cuticule assez finement striée pourvus de poils tecteurs unisériés et de poils sécréteurs à pied pluri - et à tête unicellulaire; un collenchyme angulaire s'étend de l'épiderme jusqu'à l'endoderme, endoderme net; fibres péricycliques très rares:

formations libéro-ligneuses constituant un anneau continu; moelle selérifiée, pas d'oxalate de calcium (Fig. 3 et 4).

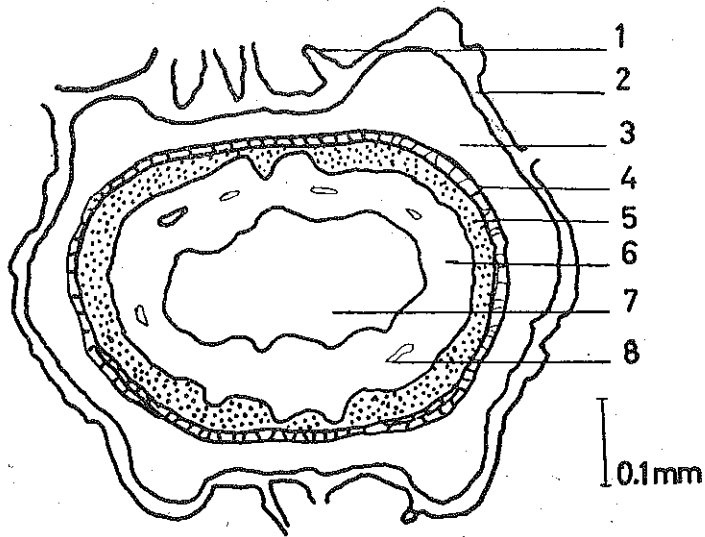


Fig. 3. *O. heracleoticum*. Coupe transversale de la tige (schéma): 1 poil tecteur, 2 épiderme, 3 collenchyme, 4 endoderme, 5 phloème, 7 moelle, 8 ilot libérien.

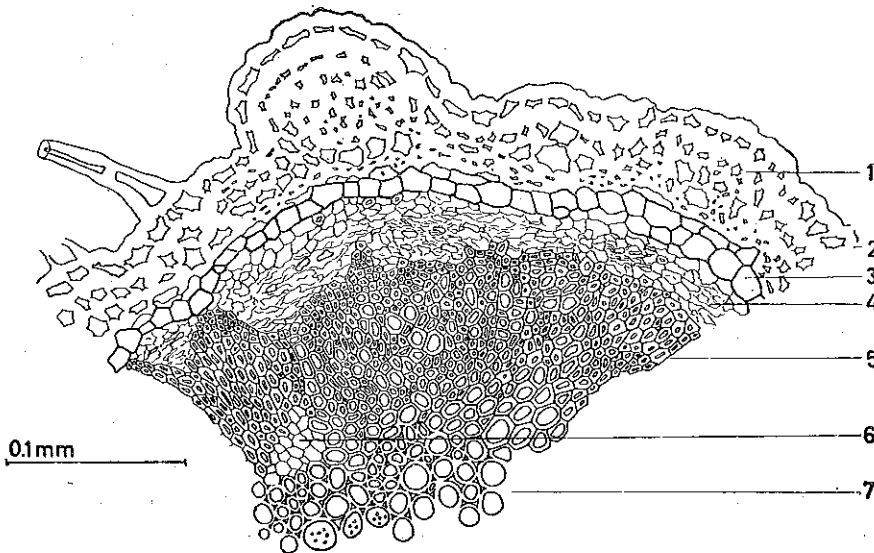


Fig. 4. *O. heracleoticum*. Coupe transversale de la tige (détail): 1 collenchyme, 2 épiderme, 3 endoderme, 4 phloème, 5 xylème, 6 ilot libérien, 7 moelle.

Feuilles: Epiderme supérieur à cuticule épaisse; poils tecteurs unisériés nombreux, à parois épaisses et ponctuées; poils sécréteurs de deux types: à pied pluri- et à tête unicellulaire et poils sécréteurs sessiles dont la tête est formée de 8 cellules. Les premiers sont rares, les seconds assez nombreux; le tissu palissadique à une ou quelquefois à deux assises

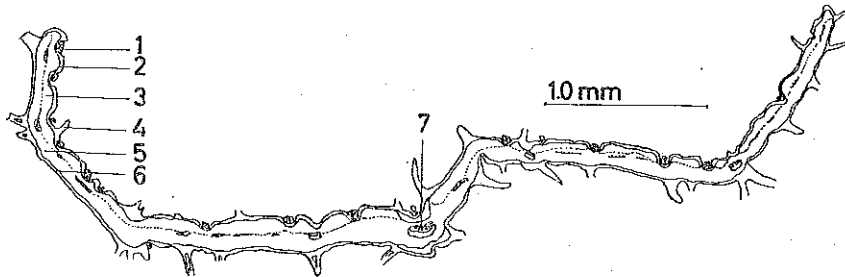


Fig. 5. *O. heracleoticum*. Coupe transversale de la feuille (schéma): 1 poil sécréteur sessile, 2 épiderme supérieur, 3 tissu palissadique, 4 poil tecteur, 5 parenchyme lacuneux, 6 épiderme inférieur, 7 nervure médiane.

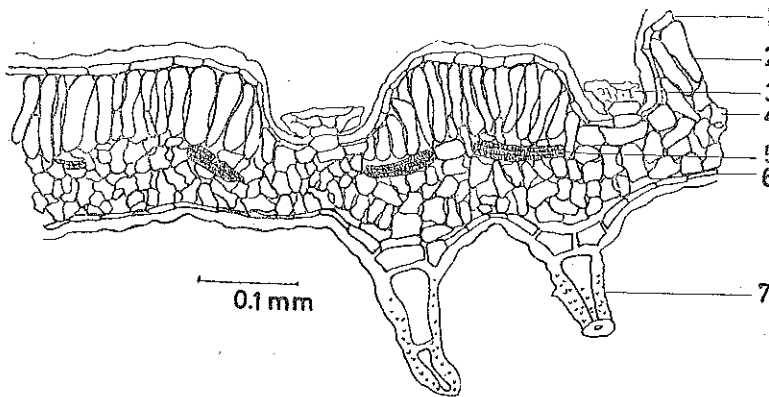


Fig. 6. *O. heracleoticum*. Feuille, coupe transversale au niveau du limbe (détail): 1 épiderme supérieur, 2 parenchyme palissadique, 3 poil sécréteur sessile, 4 parenchyme lacuneux, 6 épiderme inférieur, 7 poil tecteur.

de cellules, surmonte un tissu peu lacuneux. Pas d'oxalate de calcium. Les poils sécréteurs sur l'épiderme inférieur sont rares. La nervure médiane possède un arc libéroligneux collatéral avec quelques fibres péricycliques; massifs de collenchyme sous l'épiderme de la face ventrale ainsi que celui de la face dorsale (Fig. 5 et 6).

Bractées: Epidermes avec poils tecteurs et sécréteurs assez nombreux (Fig. 7 et 8). L'épiderme extérieur des bractées supérieures ne possède pas de poils sécréteurs sessiles.

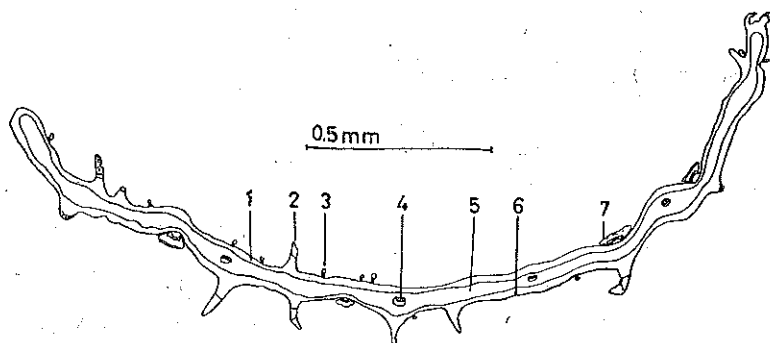


Fig. 7. *O. heracleoticum*. Bractée inférieure, coupe transversale (schéma): 1 épiderme intérieur, 2 poil tecteur, 3 poil sécréteur à tête unicellulaire, 4 nervure médiane, 5 tissu chlorophyllien, 6 épiderme extérieur, 7 poil sécréteur sessile.

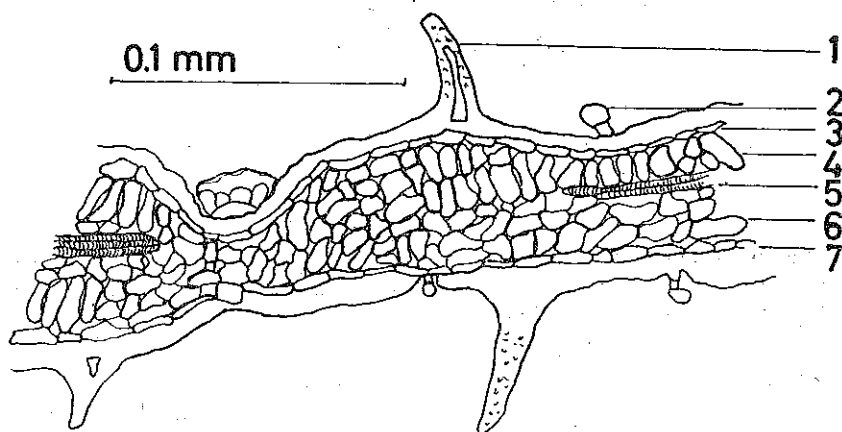


Fig. 8. *O. heracleoticum*. Bractée; coupe trasversale (détail): 1 poil tecteur, 2 poil sécréteur, 3 épiderme intérieur, 4 tissu palissadique, 5 faisceau conducteur, 6 parenchyme lacuneux, 7 épiderme extérieur.

M. onites. Tige: Epiderme avec épaisissements cuticulaires pourvus de poils tecteurs et de poils sécréteurs à pied pluri- et à tête unicellulaire; de l'épiderme jusqu'à l'endoderme, un tissu continu de collenchyme angulaire; endoderme net; îlots de fibres péricycliques; formations libéro-ligneuses constituant un anneau continu; moelle sclérifiée, pas d'oxalate de calcium (Fig. 9 et 10).

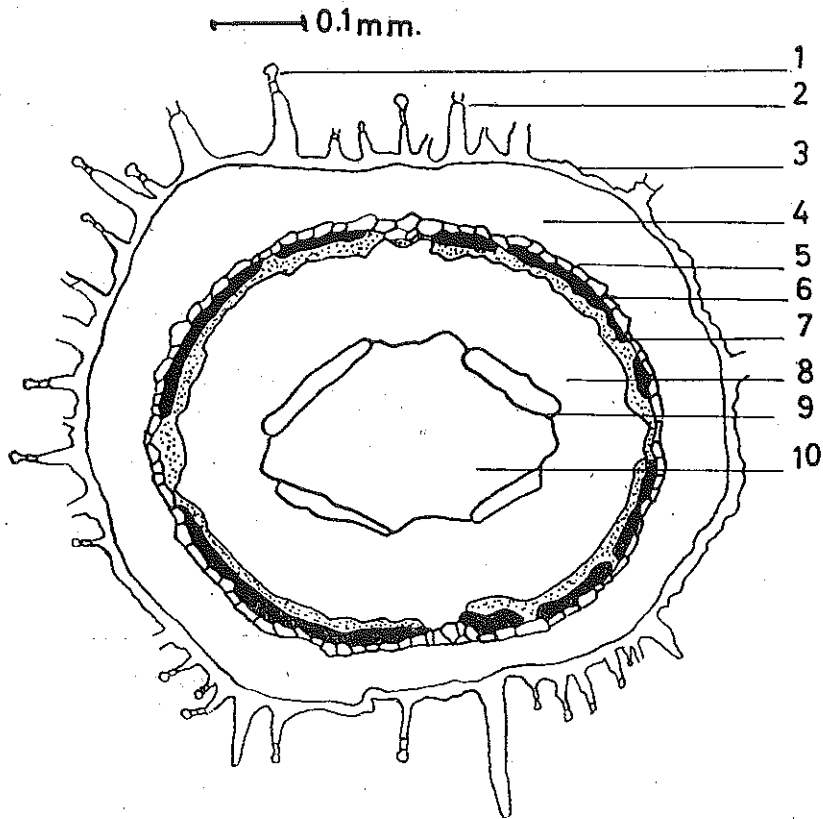


Fig. 9. *M. onites*. Coupe transversale de la tige (schéma): 1 poil sécréteur, 2 poil tecteur, 3 épiderme, 4 collenchyme, 5 endoderme, 6 faisceau sclérenchymatique, 7 phloème, 8 xylème, 9 flot libérien, 10 moelle.

Feuilles: Epidermes avec poils tecteurs et sécréteurs nombreux. Poils tecteurs à 2-3 cellules uniseriées. Poils sécréteurs à pied pluricellulaire et à tête unicellulaire très abondants; poils sessiles très rares. Le tissu pallissadique à une assise de cellule surmonte un tissu assez lacuneux. Pas d'oxalate de calcium. L'arc libéro-ligneux de la nervure médiane est entouré par un cercle de fibres péricycliques presque continu, formé d'une ou de deux assises de cellules sclérenchymatiques; massifs de collenchyme sous l'épiderme de la face ventrale, ainsi que celui de la face dorsale (Fig. 11 et 12).

Bractées: Epiderme extérieur à parois minces, avec poils tecteurs et sécréteurs nombreux. Epiderme intérieur à cuticule épaissie et presque nue (Fig. 13 et 14).

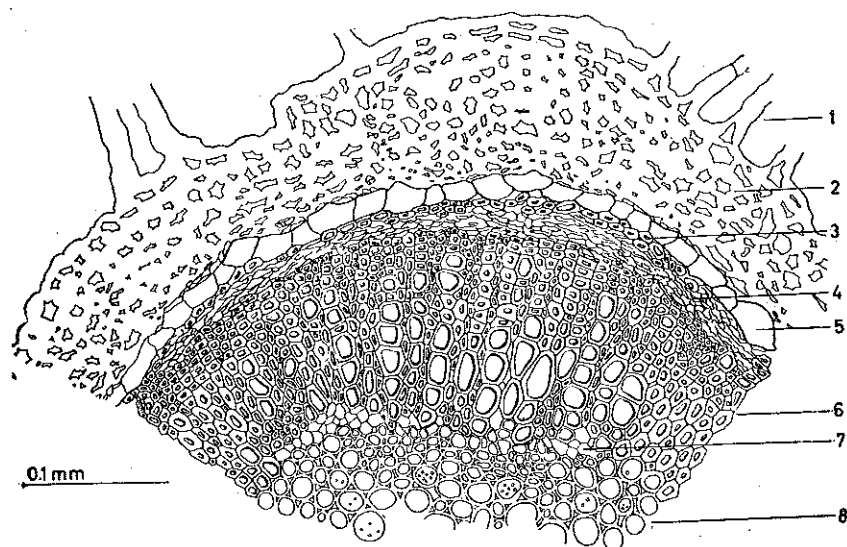


Fig. 10. *M. onites*. Coupe transversale de la tige (détail): 1 poil tecteur, 2 collenchyme, 3 faisceau sclérenchymatique, 4 phloème, 5 endoderme, 6 xylème, 7 îlot libérien, 8 moelle.

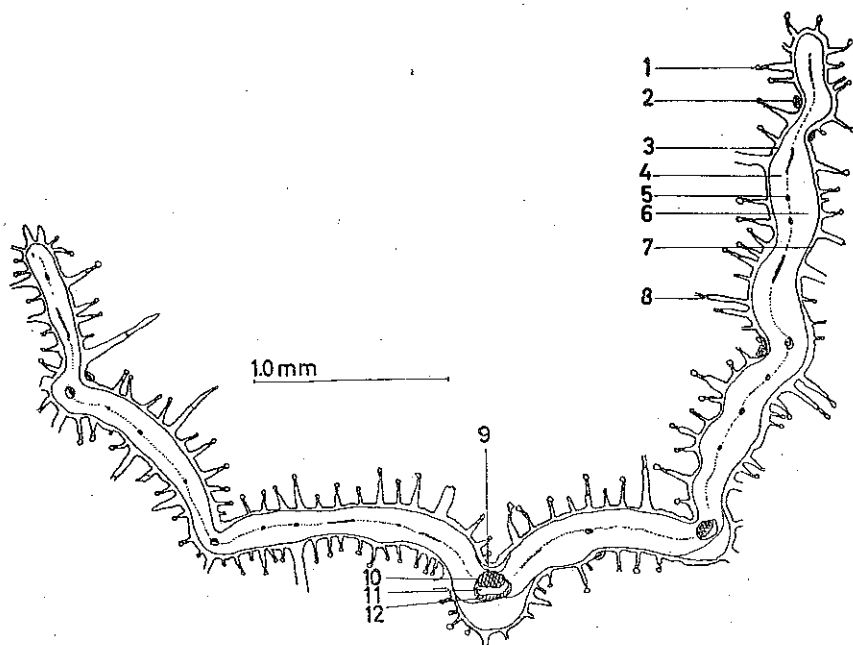


Fig. 11 *M. onites*. Coupe transversale de la feuille (schéma): 1 poil sécréteur à tête unicellulaire, 2 poil sécréteur sessile, 3 épiderme supérieur, 4 tissu palissadique, 5 faisceau conducteur, 6 parenchyme lacuneux, 7 épiderme inférieur.

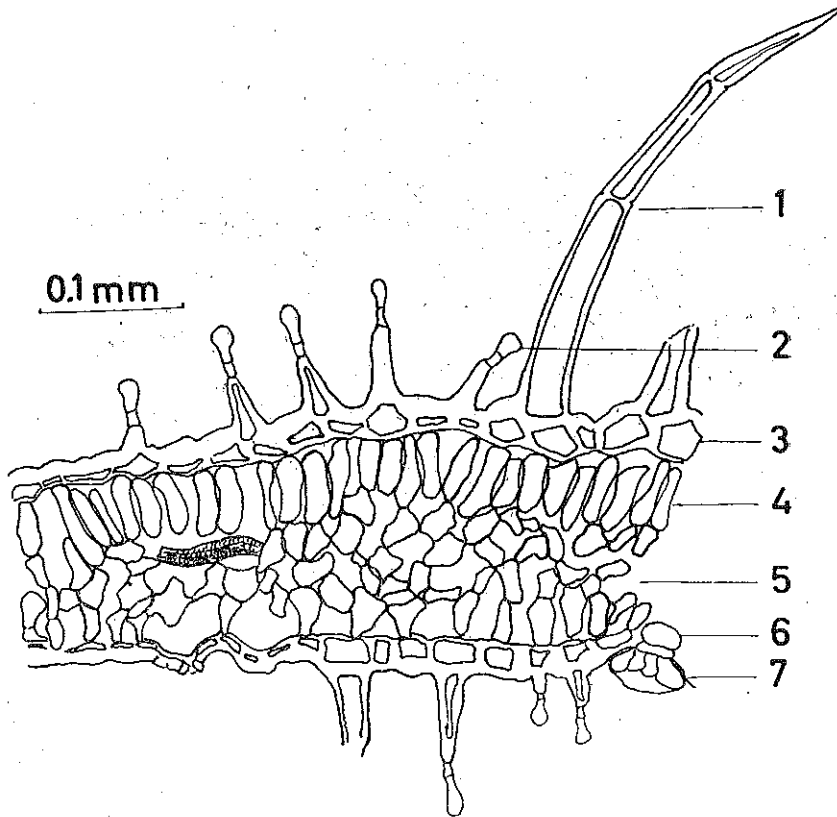


Fig. 12. *M. onites*. Feuille, coupe transversale au niveau du limbe (détail): 1 poil tecteur, 2 poil sécréteur, 3 épiderme supérieur, 4 tissu palissadique, 5 parenchyme lacuneux, 6 épiderme inférieur, 7 poil sécréteur sessile.

ÉTUDE CHIMIQUE - ANALYTIQUE

Provenance des drogues analysées

Les tiges fleuries d'*O. heracleoticum* ont été achetées dans les drogueries d'Istanbul. Elles étaient cueillies aux alentours d'Orhangazi (province de Bursa).

Les tiges fleuries de *M. onites* ont été achetées dans quelques drogueries d'Izmir. Elles provenaient des environs de la ville.

Isolement de l'huile volatile et détermination de la teneur en essence: L'essence a été isolée de la drogue par distillation à vapeur d'eau

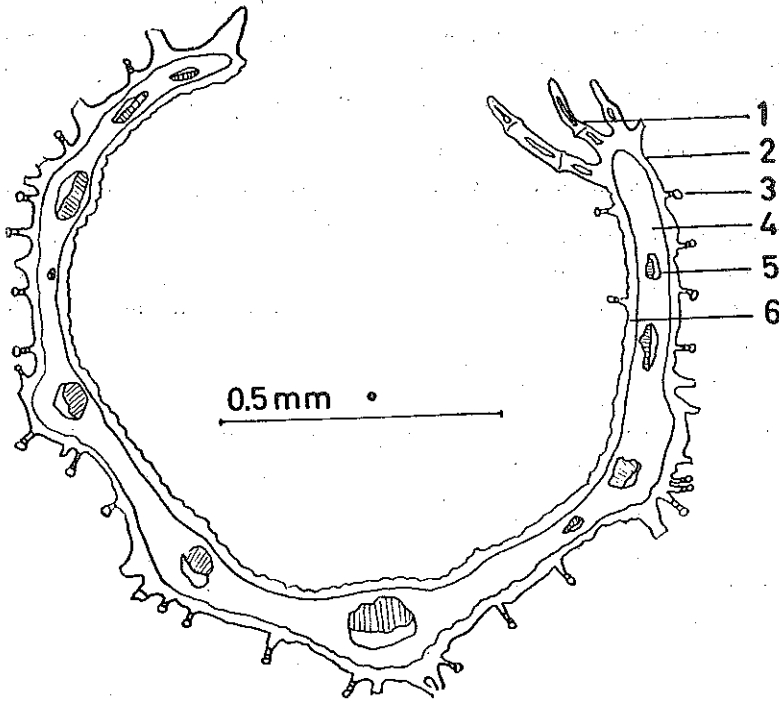


Fig. 13. *M. onites*. Bractée, coupe transversale (schéma): 1 poil tecteur, 2: épiderme extérieur, 3 poil sécréteur, 4 tissu chlorophyllien, 5 faisceau conducteur, 6 épiderme intérieur.

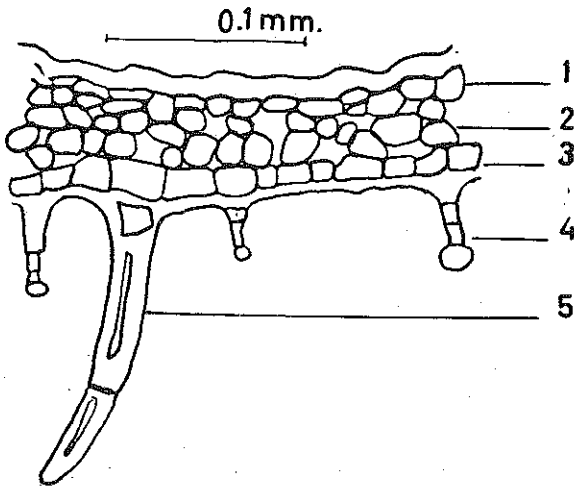


Fig. 14. *M. onites*. Bractée, coupe transversale (détail): 1 épiderme intérieur, 2 tissu chlorophyllien, 3 épiderme extérieur, 4 poil sécréteur, 5 poil tecteur.

dans le système de Clevenger (1), modifié par Hegnauer (2), ce qui permet aussi de déterminer en ml la quantité d'essence obtenue, qui multipliée par la densité, donne le poids de l'essence produite par la quantité de drogue soumise à la distillation, d'où le pourcentage est aisément calculé.

Détermination de la densité:

La densité a été déterminée à 15°C à l'aide d'un pycnomètre de 10 ml.

Détermination du pouvoir rotatoire:

L'angle de rotation de l'essence a été mesuré au «Polarimeter nach Lippich» à la lumière de sodium, à la température du milieu (20°C) et sous une longueur du tube de 1 dm.

Détermination de l'indice de réfraction:

Cette détermination a été faite au «Réfractomètre Universel O.P.L.» à une température de 20°C.

Détermination de la solubilité dans l'alcool:

Dans une éprouvette graduée de 10 ml, on introduit 1 ml d'essence et l'on ajoute goutte à goutte de l'alcool à 60°. On note le volume minimum d'alcool ajouté qui dissout sous forme d'une solution limpide la quantité d'essence prise.

Détermination de phénols totaux (thymol + carvacrol):

Les principales méthodes déjà employées pour la détermination quantitative des phénols totaux dans les essences de thym sont les suivantes:

1°. Extraction en milieu alcalin. Le Codex Turc, D.A.B.6, et N.F. 1960 emploient cette méthode.

2°. Détermination bromométrique. Cette méthode est prescrite dans Ph. Helv., Ph. franç. et A.O.A.C.

3°. D'après Bordeianu (3) le thymol dissout dans l'acide acétique à 50 % est précipité par une solution d'acétate mercurique.

4°. Folin et Ciocalteu (4) ont proposé une méthode colorimétrique ($\lambda=700 \text{ m}\mu$). Leur réactif contient les acide phosphorique, tungstique et molybdique.

5°. Brandrup (5), Mühlemann (6) et Hegnauer (2) ont donné une méthode colorimétrique basée sur la réaction que donne le thymol avec le mélange diazo (acide sulphanilique et nitrite de soude).

6. Il existe une autre méthode colorimétrique où l'on mesure l'absorption de la coloration jaune obtenue dans la réaction que donne le thymol avec le 4-amino-antipyrine (7, 8).

7°. Fibranz, Blake et Miller (9) ont employé une méthode colorimétrique basée sur la coloration jaune fournie par le p-diméthylaminobenzaldéhyde.

Nous nous sommes servis de trois méthodes pour doser le phénol total dans l'essence. L'une repose sur l'extraction, les deux autres sont colorimétriques dont l'une est élaborée par nous-mêmes.

Méthode 1. Pour l'extraction, nous avons employé la technique du Codex Turc pareille à celle de D.A.B.6 et utilisé un mélange à parties égales des solutions aqueuses d'hydroxyde de sodium à 5 % et d'hydroxyde de potassium à 5 %.

Méthode 2. Méthode colorimétrique de Gibbs (10) modifiée: C'est une méthode basée sur la coloration bleue que donnent les phénols avec le 2,6-dibrom quinon-chlorimide. Le procédé est comme suit.

On dissout 0,5 g d'huile volatile exactement pesés dans 50 ml d'alcool isopropylique. On introduit 0,5 ml de cette solution dans un ballon jaugé de 100 ml et l'on complète le volume avec la solution tampon de Palitzsch (pH 9,24). A 1 ml de ce mélange, on ajoute 0,2 ml d'une solution de 0,4 g de 2,6-dichlorquinonchlorimide dans 100 ml d'alcool isopropylique et l'on ajoute 14 ml de la solution tampon. Après dix minutes de repos, on lit l'absorption de la coloration obtenue, dans l'électrophotomètre de B. Lange (Model IV) en utilisant l'écran rouge RG (625 m μ) et le tube de 10 ml dont le diamètre est 16 mm.

Solution étalon: On dissout 125 mg de thymol exactement pesés dans 50 ml d'alcool isopropylique, on introduit 0,5 ml de cette solution dans un ballon jaugé de 100 ml, et l'on complète le volume avec la solution tampon. Dans une série des tubes à essai, on introduit dans l'ordre: 0,5; 1,00 1,5; 4,0; 4,5 ml de cette solution et 9,5; 9,0; 8,5; 6,0; 5,5 ml de la solution tampon. A chaque tube de la série, on ajoute 0,2 ml du réactif et 15 ml de la solution tampon. Après 10 minutes de repos, on procède à la lecture de l'absorption. La Fig. 15 représente la graphique obtenue.

Méthode 3. Méthode colorimétrique de p-nitraniline: Le réactif de p-nitraniline a été utilisé par Rayburn et coll. (11) pour la révélation des spots des phénols volatils, mais n'a pas été jusqu'ici utilisé dans la détermination quantitative du thymol. Aussi nous nous sommes servis de ce réactif pour élaborer une méthode personnelle (12). En voici le mode d'opération:

On dissout 0,5 g d'huile volatile exactement pesés dans 50 ml d'alcool éthylique. On dilue cette solution 100 fois avec le même solvant. On prend 6 ml de cette dilution et l'on ajoute 9 ml du réactif p-nitraniline.

Après 45 minutes de repos, on lit l'absorption de la coloration obtenue, à l'électrophotomètre de B. Lange (model IV) en utilisant l'écran bleu BC 12 (400 m μ) et le tube de 10 ml dont le diamètre est 16 mm.

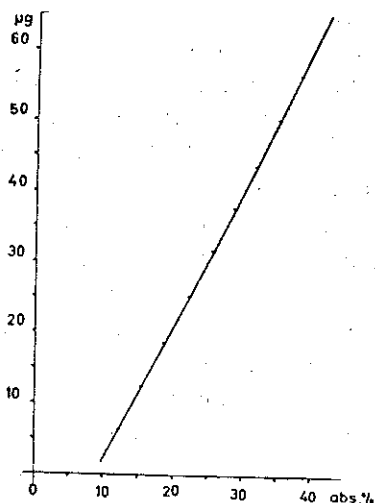


Fig. 15. Courbe d'étalonnage dans la méthode de Gibbs.

Préparation du réactif de p-nitraniline: On dissout 0,7 g de p-nitraniline dans 9 ml d'acide chlorhydrique et l'on complète à 100 ml avec l'eau distillée. On ajoute à 4 ml de cette solution refroidie à 0°C, 5 ml d'une solution de nitrite de sodium à 1 % et l'on complète à 100 ml avec l'eau distillée refroidie à 0°C.

Solution étalon: On dissout 50 mg de thymol exactement pesés dans 50 ml d'alcool éthylique. Dans une série des tubes à essai, on introduit dans l'ordre 0,1; 0,2;; 0,5; 0,6 ml de cette solution et l'on complète à 0,6 ml avec l'alcool éthylique. On ajoute 14,4 ml du réactif p-nitraniline. Au bout de 45 minutes, on mesure l'absorption sous les conditions qui sont indiquées plus haut. La graphique obtenue est représentée sur la Fig. 16.

RÉSULTATS

O. heracleoticum. Les plantes que nous avons analysées se composent entièrement des tiges fleuries. Les bons échantillons contiennent 4,7-5,4 % d'huile volatile. L'essence est jaunâtre. La saveur est piquante et rafraîchissante, l'odeur est particulière, et rappelle celle de l'essence de thym. L'essence est soluble dans 3,3 fois son volume d'alcool à 60°. Sa

densité à 15° est 0,9504, son indice de réfraction à 20° est 1,5135 et son angle de rotation est nul.

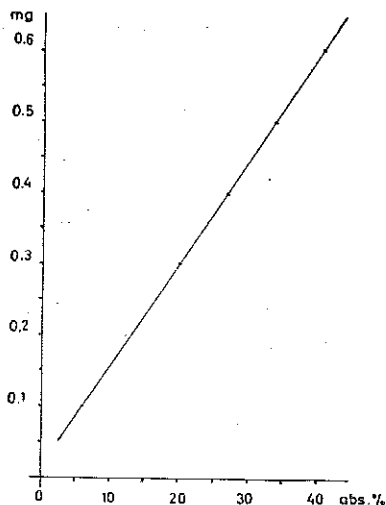


Fig. 16. Courbe d'étalonnage dans la méthode de p-nitraniline.

La teneur en phénols totaux, calculée en thymol et obtenue par la méthode extractive est 72 %. Les méthodes colorimétriques donnent des valeurs plus petites: 66,27 % par la méthode de Gibbs et 65,71 % par la méthode de p-nitraniline. Cette différence vient de ce que dans la méthode extractive, sont déterminés tous les constituants solubles dans l'hydroxyde. Au surplus, la solution aqueuse des phénolates est un meilleur solvant de la partie non phénolique d'une huile volatile qu'une solution de soude ou de potasse.

M. onites. Les drogues que nous avons analysées se composaient seulement des feuilles et des épis. Elles contiennent 2,1-3,4 % d'huile volatile. Elle est de couleur jaunâtre. La saveur est piquante et rafraîchissante, l'odeur particulière rappelle celle de thymol. L'essence est soluble dans 4,5 fois son volume d'alcool à 60°. Sa densité à 15° est 0,9694, son indice de réfraction à 20° est 1,5120 et son angle de rotation nul.

La teneur en phénols totaux, calculée en thymol et obtenue par la méthode d'extraction est 65 %. Elle est 61,74 % par la méthode colorimétrique de Gibbs et 61,54 % par la méthode de p-nitraniline.

Le tableau suivant réunit les caractères analytiques des essences que nous avons analysées et celles des diverses huiles volatiles commerciales qui contiennent plus de carvacrol que de thymol (13).

L'essence de	n_D^{15}	α_D	n_D^{20}	Solubilité dans l'alcool à 60°	Teneur en phénols totaux
O. heracleoticum	0,9504	\mp 0°0'	1,5135	3,3 v.	66,27 %
M. onites	0,9694	\mp 0°0'	1,5120	4,5 v.	61,74 %
Origan d'Espagne	0,937	\mp 0°0'	1,5024	3,0 v. (70°)	62,0 %
	0,935	+ 1°0'	1,5080		71,1 %
Origan de Maroc	0,937	+ 0°48'	1,5041	2,5 v. (70°)	61,5 %
Origan de Syrie	0,942	+ 0°52'	1,5067	2,5 v. (70°)	65,0 %

R É S U M É

1. Nous avons constaté qu'il existe au moins deux succédanés du thym en Anatolie. Ce sont: L'*Origanum heracleoticum* L. (thym d'Istanbul) et la *Majorana onites* (L.) Benth. (thym d'Izmir).

2. Nous avons décrit les caractères morphologiques de ces plantes. En résumé, l'*O. heracleoticum* est une plante vivace, d'un vert pâle. La face intérieure des bractées est très ponctuée de glandes, tandis que la face extérieure est presque nue. Elle croît en Thrace et en Anatolie occidentale.

La *M. onites* est une plante vivace d'un gris verdâtre. La face extérieure des bractées a des nervures prononcées et des poils tecteurs abondants, la face intérieure est nue. Elle pousse à l'Ouest et au Sud de l'Anatolie.

3. Voici les caractères anatomiques qui différencient les plantes que nous avons étudiées: Les poils sécréteurs à pied pluricellulaire sont rares sur les feuilles d'*O. heracleoticum*, tandis qu'ils sont très abondants sur les feuilles de *M. onites*. L'épiderme extérieur des bractées supérieures de l'*O. heracleoticum* ne possède pas de poils sécréteurs sessiles. Le même épiderme est pourvu de nombreux poils tecteurs et sécréteurs chez la *M. onites*, mais l'épiderme intérieur est presque nue.

4. L'*O. heracleoticum* contient 4.7-5.4 % d'huile volatile dont la teneur en phénols totaux est 66.27 %. La *M. onites* fournit 2.1-3.4 % d'essence par distillation à la vapeur d'eau; la teneur en phénols totaux est presque égale: 61.74 %.

Nous avons déterminé les constantes physiques de ces essences (densité, indice de réfraction, pouvoir rotatoire, solubilité dans l'alcool dilué).

5. L'une de trois méthodes que nous nous sommes servies pour doser les phénols totaux dans l'essence est élaborée par nous-mêmes. C'est une méthode colorimétrique basée sur la coloration jaune obtenue dans la réaction que donne le thymol avec le p-nitraniline et le nitrite de soude.

Ö Z E T

1. Anadoluda, kekik yerine kullanılan bitkilerden en önemlileri, *Origanum heracleoticum*, L. (İstanbul kekiği) ve *Majorana onites* (L.) Benth. (İzmir kekiği) dir.

2. Bu bitkilerin morfolojik vasıfları tespit edilmiştir. Bu vasıflara göre, kısaca, *O. heracleoticum* soluk yeşil renkli bir bitkidir ve braktelelerinin iç yüzünde sapsız guddeler pek çok, dış yüzde ise çok azdır veya hiç bulunmaz. Trakya ve Batı Anadolu bitkisidir.

M. onites, yeşilimsi gri renkli bir bitkidir ve brakteleri dış yüzden damarlı ve sık tüylü, iç yüzden çıplaktır. Batı ve Güney Anadolu nebatıdır.

3. Bu bitkilerde tespit edilen ve birbirinden ayırt etmeğe yarayan anatomik vasıflar şunlardır: *O. heracleoticum* yapraklarında sapı çok hücreli salgı tüyleri nadir, buna mukabil *M. onites*'inkilerde çok fazladır.

O. heracleoticum'un üst braktelerinin dış epidermasında sapsız salgı tüyleri bulunmaz, diğer tüyler nadirdir. Halbuki, *M. onites*'in braktelerinin dış epidermasında çok bol örtü ve salgı tüyelerine rastlanır, iç epiderma ise hemen hemen çıplaktır.

4. *O. heracleoticum* % 4.7-5.4 kadar uçucu yağ ihtiva eder, bu yağın % 66.27 si fenol (timol ve karvakrol) dür. *M. onites*'in su buharı distilasyonu ile verdiği uçucu yağ miktarı % 2.1-3.4 ve bunun bütün fenol miktarı da % 61.74 tür.

Bu uçucu yağların fiziksel vasıfları (yoğunluk, refraksiyon indisi, polarize ziyayı çevirmesi, dilüe alkolde erirliği) da tespit edilmiştir.

5. Uçucu yağlarda fenol miktarının tayini için tatbik edilen üç usulden biri tarafımızdan geliştirilmiştir. Bu, timolün p-nitranilin ve sodyum nitrit çözeltileriyle soğukta verdiği sarı renge dayanan kolormetrik bir metottur.

LİTÉRATURE

1. Clevenger, J.F., *J. Amer. Pharm. Ass.* 17, 345 (1928), Ref. - *Chem. Zbl.* 1928 (II) 1272.
2. Hegnauer, R., *Ber. schweiz. bot. Ges.*, 58, 391 (1948).
3. Bordeianu, C. V., *Z. anal. Chem.*, 91, 421 (1933), Ref. - *Chem. Zbl.* 1933 (I) 2436.
4. Folin, O., Ciocalteu, V., *J. Biol. Chem.*, 73, 627 (1927).
5. Brandrup, W., *Apoth. Ztg.*, 46, 609 (1931), Ref. - *Chem. Zbl.* 1931 (II) 3237.
6. Mühlemann, H., *Pharm. Acta Helv.* 16, 121 (1941), Ref. - *Chem. Zbl.* 1942 (I) 1023.
7. Johnson, C.A., Savidge, R.A., *J. Pharm. Pharmacol.*, 10, 171T (1958).
8. Pfeifer, S., Manns, O., *Pharmazie*, 12, 401 (1957).
9. Fibranz, L., Blake, M.L., Millr, C.E., *J. Amer. pharm. Ass. Sci. Ed.*, 47, 133 (1958).
10. Gibbs, H.D., *J. Biol. Chem.*, 72, 649 (1927).
11. Rayburn, C.H., *Anal. Chem.*, 25, 1419 (1953).
12. Tanker, M., Türkiyede kekik olarak kullanılan *Origanum heracleoticum* L., *Majorana onites* (L.) Benth., *Satureia spicigera* (C. Koch) Boiss. üzerinde araştırmalar, *İstanbul Üniv. Eczacılık Fak. Doçentlik Tezi* (1962).
13. Gildemeister, E., Hoffmann, Fr. *Die aetherische Öle*, Vol. VII, Berlin (1961).

(Redaksiyona verildiği tarih: 19 Mart 1965)