

不同種類蜂膠之組成分分析及抗生特性研究

解玉軫、徐泰浩；張世揚

E-mail: 8809516@mail.dyu.edu.tw

摘要

蜂膠是蜜蜂採自植物不同部位所產生的樹脂、膠質經其酵素作用後所形成物質，蜂膠具有廣泛之生物活性，如抗細菌、抗真菌、抗病毒、抗腫瘤、抗氧化等。主要成份為類黃酮、芳香族醇、醛類、酸及其衍生之酯類、脂肪酸族及其衍生之酯類、碳氫化合物、胺基酸、醣類等。本研究選擇不同產地蜂膠分析，進行色澤分析、一般化學成份分析、游離胺基酸分析、薄層色層分析、分光光度計、高效能液相層析將主要之抗生成分定性定量。並篩選適當菌株作為其抗生特徵之應用，選擇不同溶劑系統，包括甲醇、乙醇、乙醚、氯仿，就脂溶性、醇溶性、水溶性等不同條件下萃出物，與常用抗生素、食品級防腐劑比較其抗菌性，並進一步探討其在應用上之協力作用。研究結果顯示，不同產地蜂膠其色澤有明顯差異，如台灣蜂膠為淡黃綠色，而澳洲蜂膠為紅棕色。一般化學成份以粗脂肪含量最高，介於41.63~81.12%平均為59.03%，總糖含量介於1.80~9.65%平均為6.65%居次；而蜂膠萃出物以粗脂肪含量最高，介於23.2~87.9%平均為42.98%，總糖含量介於5.84~10.18%平均為8.30%居次。就總胺基酸而言，佔蜂膠2.20~5.79%，除台灣蜂膠以天門冬胺酸及麩醯胺含量較高，其他產地蜂膠則以麩醯胺含量較高。而蜂膠萃出物總胺基酸佔0.07~0.94%，除台灣蜂膠以脯胺酸含量較高，其他產地蜂膠仍以麩醯胺含量較高。總類黃酮含量以中國大陸（華南）蜂膠最高佔13.02%，而總類黃酮中槲皮酮含量則以台灣12.02%最高。利用薄層色層分析，可簡易定性總類黃酮中之槲皮酮及金黃素，其Rf分別為0.37及0.65，在不同產地蜂膠均可發現此Rf值。萃出量會因產地、處理方式不同有明顯差異，以95%乙醇萃取蜂膠最高為62.39%；不同方式的水萃取最高為6.67%，多種溶劑萃取不同產地之蜂膠發現以氯仿萃取率最高為45.40%。於測試之九種細菌、三種黴菌、三種酵母菌評估蜂膠之抗菌性，不同產地蜂膠最低抑菌濃度平均顯示其抑制格蘭氏陰性菌的效果較佳，餘依次為黴菌、酵母菌、格蘭氏陽性菌，抑菌效果較好有綠膿桿菌、圓假絲酵、大腸桿菌。以不同溶劑系統萃取蜂膠發現，脂溶性萃出物抑菌效果較水溶性及醇溶性佳，蜂膠抑菌效果較食品用防腐劑佳，介於常用抗生素之間，並與抗生素有協力作用。

關鍵詞：蜂膠；萃取；抗菌性；抗生素；分析

目錄

壹、前言 1 貳、文獻回顧 3 一、蜂膠來源 3 二、蜂膠一般化學成分 4 三、蜂膠的化學組成分 4 四、蜂膠胺基酸組成 7 五、蜂膠中脂肪酸及其他酸類 7 六、蜂膠的抗生成份 8 七、蜂膠功效 14 八、研究蜂膠常用的菌株 17 九、常用於萃取蜂膠之溶劑 18 十、蜂膠之商業使用性和經濟價值 19 參、材料與方法 24 一、樣品來源 24 二、樣品製備 24 (一)原膠 24 (二)乙醇萃出液 24 (三)乙醇萃出物 24 三、分析方法 25 (一)色澤分析 25 (二)一般化學成分分析 26 1、粗蛋白測定 25 2、粗脂肪測定 26 3、總醣測定 27 4、灰分測定 27 5、水份測定 28 (三)游離胺基酸之分析 28 (四)抗生成分之分析 28 1、總類黃酮分析 29 2、總類黃酮中槲皮酮含量HPLC分析 29 3、紫外線吸收光譜分析 30 4、乙醇萃出液的薄層層析 30 5、萃取條件之探討 31 (五)抗生特徵 31 1、蜂膠溶液製備 31 2、防腐劑(依食品法規)之製備 31 3、抗生素環環 31 4、菌株/培養基 32 5、抑菌環測試 33 6、總生菌數之探討 33 肆、結果與討論 34 一、不同產地蜂膠之色澤分析 34 二、不同產地蜂膠之一般化學成份分析及游離胺基酸分析 35 三、不同產地蜂膠之總類黃酮及槲皮酮分析 42 四、利用紫外線吸收光譜及薄層層析分析蜂膠成份 44 (一)紫外線吸收光譜 44 (二)薄層層析法 44 五、萃取率之探討 45 (一)不同乙醇濃度萃取不同產地蜂膠萃取之萃取率 45 (二)不同方式萃取巴西蜂膠之水萃取率 45 (三)不同產地蜂膠於不同溶劑之萃取 46 六、蜂膠抗生特性之探討 51 (一)蜂膠之最低抑菌濃度探討 51 (二)不同溶劑系統萃取蜂膠抑菌效果比較 53 (三)蜂膠與抗生素抑菌效果比較 54 (四)蜂膠與防腐劑抑菌效果比較 55 (五)蜂膠對抗生素抑菌效果之協力作用 56 (六)蜂膠中總生菌數之探討 56 伍、結論 66 參考文獻 68 圖目錄 圖一、不同產地蜂膠 36 圖二、不同產地蜂膠粉末 37 圖三、不同產地蜂膠萃出物 37 圖四、不同產地蜂膠之總類黃酮含量(%) 43 圖五、經HPLC分析不同之槲皮酮(mg/g) 43 圖六、不同產地蜂膠的紫外線吸收光譜 47 圖七、不同產地蜂膠之薄層層析圖(槲皮酮) 48 圖八、不同產地蜂膠之薄層層析圖(金黃素) 48 圖九、不同酒精濃度對不同產地蜂膠之萃取率 49 圖十、不同方式萃取巴西蜂膠之水萃取百分率 49 圖十一、Tetracycline (30MCG) 添加不同蜂膠稀釋液後對革蘭氏陽性抑菌性比較 63 圖十二、Tetracycline添加不同蜂膠稀釋液後對革蘭氏陰性菌抑菌性比較 64 表目錄 表一、蜂膠中常見之類黃酮 10 表二、蜂膠中的化學組成 11 表三、研究蜂膠抗生特性常用之菌株 20 表四、不同產地蜂膠95%乙醇萃出物之L、a、b值 38 表五、不同產地蜂膠之一般化學成份 38 表六、不同產地蜂膠95%乙醇萃出物之一般成份比較 39 表七、不同產地蜂膠之胺基酸組成 40 表八、不同產地來源蜂膠95%乙醇萃出物之胺基酸含量 41 表九、不同產地來源蜂膠以各種溶劑處理的萃取率比較 50 表十、不同產地來源蜂膠對格蘭氏陽性及陰性菌之最低抑菌濃度比較 (mg/ml) 58 表十一、不同來源蜂膠對黴菌、酵母菌之最低抑菌濃度比較 (mg/ml) 58 表十二、以不同

溶劑萃取蜂膠抑菌效果比較 59 表十三、巴西蜂膠與多種抗生素抑菌效果比較 60 表十四、不同濃度巴西蜂膠萃取物加於 Polymyxin B 紙環後，抑菌效果比較 61 表十五、蜂膠與多種防腐劑抑菌效果比較 62 表十六、不同產地蜂膠中總生菌數之探討 65

參考文獻

- 參考文獻 1.王金鏞。1995。蜂產品與惡性腫瘤。蜜蜂雜誌 9:5-7。 2.王南舟、薄菊坤和陳光虹。1993。蜂膠中抗菌活性物質的提取及其 MIC 的測定。蜜蜂雜誌 11:3-5。 3.任峻峨和宋愛青。1992。蜂膠對實驗腫瘤細胞培養作用的觀察。蜜蜂雜誌 9:3-5。 4.朱燕華。1998。類黃酮之介紹。食品工業月刊 9 (30) :1-5。 5.余楊林。1987。蜂膠片治療著色真菌病療效觀察。中國養蜂 4:20。 6.吳萍。1995。蜂膠對微生物抑制作用的試驗報告。蜜蜂雜誌 12:3-4。 7.吳萍和李正鵬。1996。蜂膠加多菌群作為防污劑在平菇、金針菇、香菇中的應用。生物學雜誌 4:34-35。 8.吳粹文、張復興、方兵兵、李熠、丁烈佛和張國南。1997。真理蜂膠營養液抗疲勞作用實驗研究。中國養蜂 6:9-10。 9.李文源和陳莉萍。1992。蜂膠酊治療外耳道炎的臨床和實驗觀察蜜蜂雜誌 2:3-4。 10.李榮明、陳宗欣和李炳鈺。1995。蜂膠臨床應用之展望。藥學雜誌 3 (11) :103-108。 11.李樹榮、尹培輝和王豔芬。1997。蜂膠劑對羊鼻繩幼蟲禽體殺滅試驗。養蜂科技 6:5-6。 12.林敬二、楊美惠、楊寶旺、廖德章和薛敬和。1993。英、中、日化學大辭典。高立。台北。台灣。pp629-631, 1160-1161。 13.花美君、王金庸、張艷儒和李月賓。1991。蜂膠對高黏滯血症患者血液流變學的影響。蜜蜂雜誌 11-12:4-5。 14.俞俊鰲。1996。蜂膠的研究。蜜蜂 3:23-25。 15.柯清水。1992。化學新辭典。正文。台北。台灣。pp431。 16.柯清水。1993。化學化工大辭典。正文。台北。台灣。pp728。 17.茅力、楊森、陳景衡、金念組和魏國勳。1998。蜂膠醇溶液營養成分分析。南京醫科大學學報 18(6):543-544。 18.唐金賢、李素英、丁蓉民、史俊南和宋素萍。1995。用蜂膠劑失活牙髓 300 例效果觀察。中國養蜂 4:3-4。 19.徐玲云和袁譯良。1989。蜂膠質量標準的探討。中國養蜂 2:6-8。 20.徐誠、王國斌、陳恕仁、張恕峰和陳欣。1995。蜂膠酊抑制流感病實驗研究。蜜蜂雜誌 3:5-6。 21.徐誠、王國斌、陳恕仁和陳欣。1994。蜂膠酊抑制白色念珠菌的實驗觀察。蜜蜂雜誌 8:6。 22.曹瑤和凌姬。1997。蜂膠中黃酮類化合物含量測定方法的改進。蜜蜂雜誌 12:3。 23.郭芳彬。1996。淺談蜂膠的抗癌作用。養蜂科技 2:30-32 24.陳福生。1991。蜂膠的抗菌性。中國養蜂 4:41。 25.陳譯棣。1992。蜂膠在鴨蛋保鮮貯存中的應用試驗。蜜蜂雜誌 8:5-6。 26.章景瑞。1996。蜂膠王漿和干擾素對純胞疹病毒的作用。蜜蜂 3:21-22。 27.彭和祿、李樹榮、易嘉賓和葛長榮。1993a。蜂膠、蜂花粉對豬肉質影響的研究。養蜂科技 4:9-10。 28.彭和祿、李樹榮和李雲川。1992。蜂膠混懸劑皮下注射對小白鼠增重的試驗。養蜂科技 2:6-7。 29.彭和祿、李樹榮和易嘉賓。1993b。蜂膠殘渣劑對育肥豬增重效果的觀察。養蜂科技 2:6-7。 30.曾新星、岑新蘭、羅豔和陳恕仁。1993。複方蜂膠酊藥膏局部治療肛周疾患的臨床觀察。蜜蜂雜誌 12:5-6。 31.黃文誠。1997。蜂膠對小白鼠腹水癌的抗腫瘤作用。蜜蜂雜誌 1:7。 32.黃榮茂、王禹文、林聖富和楊得仁。1992。化學化工百科辭典。曉園。台北。台灣。pp433, 729-730。 33.蜂膠食品規格基準。1995。日本健康、營養食品協會。 34.蕭鳳岐。1996。蜂膠生物效用的利用。食品資訊 122:41-45。 35.賴滋漢和賴業超。1994。食品科技辭典。富林。台中。台灣。pp566-568, 1090-1091。 36.顏貽本。1996。蜂膠對血小板凝聚的體外效應。蜜蜂 3:19。 37.蘇華。1996。蜂膠在農產品防腐保鮮中的應用概況。蜜蜂雜誌 12:5-6。 38.饒如龍。1988。蜂膠與其對糖尿病和癌症的醫療作用。中國養蜂 6:42-43。 39.龔薇。1994。蜂膠治療昆明犬腸炎有奇效。養蜂科技 3:23-25。 40.Aga, H., Shibuty, T., Sugimoto, T., Kurimoto, M. and Nakajima, S. 1994. Isolation and identification of antimicrobial compounds in Brazilian propolis. Biosci. Biotech. Biochem. 58(5): 945-946. 41.Amoros, M., Lurton, E., Boustie, J., Girre, L., Sauvager, F. and Cormier, M., 1994. Comparison of the anti-herpes simplex virus activities of propolis and 3-methyl-but-2-enyl caffeate. J. Nat. Pro. 57(5) : 644-647. 42.Amoros, M., Simoes, C.M.O. and Girre, L., 1992. Synergistic effect of flavones and flavonols against herpes simplex virus type 1 in cell culture comparison with the activity of propolis. J. Nat. Pro. 12(55) : 1732-1740. 43.Assegid, G. and Lamprecht, I. 1997. Microclometric investigations on the influence of propolis on the bacterium Micrococcus luteus. Thermochemica Acta 290: 155-166. 44.Aviado, D.M., Bacalzo, L.V. and Belej, M.A. 1974. Prevention of acute pulmonary insufficiency by eriodtyol. J. Pharm. Exp. Therap. 189: 157-166 45.Bankova, V. S., Christov, R. S., Tejera, A. D. 1998. Lingans and other constituents of propolis from Canary Islands. Phytochem. 49(5) : 411-415. 46.Bankova, V., Dylgerov, A., Popov, S. and Marekov, N. 1987. A GC/MS Study of the propolis phenolic constituents. Z. Naturforsch. 42C: 147-151. 47.Bankova, V., Popov, S., Bocari, G. and Haxhialushi, E. 1994. Phenolics in Albanian poplar buds and their relationship to propolis. Fitoterapia LXV(4) : 326-330. 48.Bankova, V., Christov, R., Stoev G. and Popov, S. 1992. Determination of phenolics from propolis by capillary gas chromatography. J. Chromatogr. 607: 150-153. 49.Bankova, V.S., Popov S.S. and Marekov N.L. 1982. High-performance liquid chromatographic analysis of flavonoids from propolis. J. Chromatogr. 242: 135-143. 50.Bankova, V.S., Popov, S.S. and Marekov, N.L. 1983. A study on flavonoids of propolis. J. Natural Prod. 46: 471-474. 51.Bankova, V.S., Popov, S.S. and Marekov, N.L. 1989. Isopentenyl cinnamates from poplar buds and propolis. Phytochem. 28: 871-73. 52.Christov, R. and Bankova, V., 1992. Gas chromatographic analysis of underivatized phenolic constituents from propolis using an electron-capture detector. J. Chromatogr. 623: 182-185. 53.Christov, R., and Bankova, V., Tsvetkova, I., Kujumgiev, A., Delgado Tejera, A. 1999. Antibacterial furofuran lignans from Canary Island propolis. Fitoterapia 70: 89-92. 54.de Castro, S.L. and Higashi. K.O. 1995. Effect of different formulations of propolis on mice infected with Trypanosoma cruzi. Journal of Ethnopharmacol. 46: 55-58. 55.Dobrowolski, J. W., Vohora, S. B., Sharma, K., Shah, S. A. and Naqvi, S.A.H., Dandiya, P.C.D. 1991. Antibacterial, antifungal, antiamebic, antiinflammatory and antipyretic studies on propolis bee products. J. Ethnopharmacol. 35: 77-82. 56.Focht, J., Hansen, S.H., Nielsen, J.V., Berg-Segers, A. and van den Riezler, R., 1993. Bactericidal effect of propolis in vitro against agents causing upper respiratory tract infections. Arzneimittel.-Forsch./Drug Res. 43-II(8): 921-923. 57.Fujimoto, T. 1992. Qualitative and quantitative characteristics of propolis and its products. Honeybee Sci. 13(4): 145-150. 58.Gabrys, J., Konecki, J., Krol, W., Scheller, S. and Shani. J. 1986. Free amino acids in bee hive product

(propolis) as identified and quantified by gas-liquid chromatography. *Pharm. Res. Communications*. 18(6) : 513-518

59. Ghisalberti, E.L. 1979. Propolis: a review. *Bee World* 60: 59-84.

60. Ghisalberti, E.L., Jefferies, P.R., Lanteri, R. and Mathison, J. 1978. Constituents of propolis. *Experientia* 34: 157-58.

61. Grange, J. M. and Davey, R. W. 1990. Antibacterial properties of propolis (bee glue). *J. R. Soc. Med.* 83: 159-160

62. Grunberger, D., Ganerjee, R., Eisinger, K., Oltz, E.M., Efros, L., Caldwell, M., Estevez, V. and Nakanishi, K. 1988. Preferential cytotoxicity on tumor cells by caffeic acid phenethyl ester isolated from propolis. *Experientia* 44: 230-32.

63. Hausen, B.M. and Wollenweber, E. 1988. Propolis allergy (III). sensitization studies with minor constituents. *Contact Dermatitis* 19: 296-303.

64. Hausen, B.M., Wollenweber, E., Senff, H. and Post, B. 1987. Propolis allergy (I). origin, properties, usage and literature review. *Contact Dermatitis* 17: 163-70.

65. Higashi, K. O., and de Castro, S.L., 1994. Propolis extracts are effective against *Trypanosoma cruzi* and have an impact on its interaction with host cells. *Journal of Ethnopharmacology*. 43: 149-155.

66. Iannuzzi, J. 1983. Propolis: the most mysterious hive element. *Amer. Bee. J.* 123: 631-633.

67. Iannuzzi, J. 1990. America's propolis king. *Gleaning Bee Cult.* 188: 480-481.

68. Ikeno, K., Ikeno, T. and Miyazawa, C. 1991. Effects of propolis on dental caries in rats. *Caries Res.* 25: 347-351.

69. Inayama, S., Harimaya, K., Hori, H., Ohkura, T., Kawamate, T., Hikichi, M. and Yokokura, T. 1984. Studies on non-sesquiterpenoid constituents of *Gaillardia pulchella*. II. less lipophilic substances, methyl caffeate as an antitumor catecholic. *Chem. Pharm. Bull.* 32: 1135-1141.

70. Jolly, B.G. 1978. Propolis varnish for violins. *Bee World* 59: 157-161

71. König, B. and Dustman, J.H. 1985. *Fortschritte. Apidologie* 16: 228-30.

72. Kosonocka, L. 1990. Propolis-snake oil or legitimate medicine. *Amer. Bee. J.* 130: 451-452.

73. Krol, W., Scheller, S., Czuba, Z., Mastuno, T., Zydowicz, G., Shani, J. and Mos, M., 1996. Inhibition of neutrophils, chemiluminescence by ethanol extract of propolis (EEP) and its phenolic components. *J. Ethnopharmacol.* 55: 19-25.

74. Krol, W., Scheller, S., Shani, J., Pietsch, G. and Czuba, Z. 1993. Synergistic effect of ethanolic extract of propolis and antibiotics on the growth of *Staphylococcus aureus*. *Arzneim.-Forsch./Drug Res.* 43(I) : 5,607-5,609.

75. Kujumgiev, A., Tsvetkova, I., Serkedjieva, Y., Bankova, V., Christov, R. and Popov, S., 1999. Antibacterial, antifungal and antiviral activity of propolis of different geographic origin. *J. Ethnopharmacol.* 64: 235-240.

76. Lindenfelser, L. A. 1968. In vivo activity of propolis against *Bacillus* larvae. *J. Invert. Path.* 12: 129-31.

77. Lindenfelser, L.A. 1967. Antimicrobial activity of propolis. *Amer. Bee. J.* 107: 90-92, 130-131.

78. Maciejewice, W., Daniewski, M. and Mielniczuk, Z. 1984. Gas Chromatography-Mass Spectrometry investigation of propolis. analysis of phenolic acid and sugars. *Chemia. Analityczna.* 29: 421-426.

79. Maciejewice, W., Daniewski, M., Mielniczuk, Z. and Suprynowyowa, Z. 1982. Gas Chromatography-Mass Spectrometry investigation of propolis. Analysis of β -Steroids. *Acta. Polon. Pharm.* XXXIX Nr 4: 277-279.

80. Marcucci, M.C., 1995. Propolis: chemical composition, biological properties and therapeutic activity. *Apidologie.* 26: 83-99

81. Marinescu, I. and Tamas, M. 1980. Poplar buds-a source of propolis. *Apiacta* 15: 121-26.

82. Markham, K.R., Mitchell, K.A., Wilkins, A.L., Daldy, J.A. and Lu, Y. 1996. HPLC and GC-MS identification of the major organic constituents in New Zealand propolis. *Phytochem.* 42(1): 205-211.

83. Matsuka, M., 1993. Content of benzoic acid in royal jelly and propolis. *Honeybee sci.* 14(2) : 79-80.

84. Matsuno, T., 1992. Isolation and characterization of the tumoricidal substances from Brazilian propolis. *Honeybee sci.* 13(2) : 49-54.

85. Menezes, H., Bacci Jr, M., Oliveira, S.D. and Pagnocca, F.C. 1997. Antibacterial properties of propolis and products containing propolis from Brazil. *Apidologie.* 28: 71-76

86. Meresta, L. and Meresta, T., 1985-86. Antibacterial activity of flavonoid compounds of propolis, occurring in flora in Poland. *Bull. Vet. Inst. Pulawy.* 28-29(1-4) : 61-63.

87. Metzner, J., Bekemeier, H., Schneidewind, E. and Schwaiberger, R. 1975. Bioautographische erfassung der antimikrobiellen wirksamen Inhaltsstoffe von propolis. *Pharmazie* 30: 799-800.

88. Metzner, J., Schneidewind, E.M. and Friedrich, E. 1977. Zur Wirkung von propolis und pinozembrin auf Sprosspilze. *Pharmazie* 32: 730.

89. Miyakado, V. and Sulimanovic, D. 1982. Action of propolis solutions on *Bacillus* larvae. *Apiacta* 17: 16-20.

90. Miyakado, M., Kato, T., Ohno, N. and Mabry, T.J. 1976. Pinozembrin and (+)-B-endesmol from *Hymenoclea monogyra* and *Baccharis glutinosa*. *Phytochemistry* 15: 846.

91. Paintz, M. and Metzner, J. 1979. Zur lokalnarkotischen Wirkung von propolis und einigen Inhaltsstoffen. *Pharmazie* 34: 839-41.

92. Pepeljnjak, S. and Jalsenjaj, I. 1984. Usage of propolis extract for preserving food against microbiological contamination. *Microbiologie-Aliments-Nutrition.* 2: 301-302.

93. Pepeljnjak, S., Jalsenjaj, I. and Maysinger, D. 1981. Influence of microencapsulated propolis extract on *Bacillus Subtilis* Strain IP-5832. *Acta Pharm. Jugosl.* 31: 27-32.

94. Pepeljnjak, S., Jalsenjaj, I. and Maysinger, D. 1982a. Inhibition of growth and biosynthesis of ochratoxin A in *Aspergillus sulphureus* NRRL 4077 by propolis extract. *Pharmazie.* 37(6): 439-440.

95. Pepeljnjak, S., Jalsenjaj, I. and Maysinger, D. 1982b. Growth inhibition of *Bacillus subtilis* and composition of various propolis extracts. *Pharmazie.* 37(12) : 864-865.

96. Pepeljnjak, S., Jalsenjaj, I. and Maysinger, D. 1985. Flavonoid content in propolis extracts and growth inhibition of *Bacillus Subtilis*. *Pharmazie.* 40: 122-123.

97. Pepeljnjak, S., Maysinger, D. and Jalsenjaj, I. 1982c. Effect of propolis extracts on some fungi. *Sci. Pharm.* 50: 165-167.

98. Popeskovic, D., Kepcija, D., Dimitrijevic, M. and Stojanovic, N. 1980. The antioxidative properties of propolis and some of its components. *Acta Veterinaria (Beograd).* 30: 133-136.

99. Roger, C.R. 1988. The nutritional incidence of flavonoids: some physiological and metabolic considerations. *Experientia* 44: 725-33.

100. Schneidewind, E.M., Kala, H., Linzer, B. and Metzner, J. 1975. Zur Kenntnis der Inhaltsstoffe von Propolis. *Pharmazie* 30: 803.

101. Tomas-Barbran, F. A., Cristina-Viguera, C., Vit-Olivier, P., Ferreres, F. and Tomas-Lorente, F. 1993. Phytochemical evidence for the botanical origin of tropical propolis from Venezuela. *Phytochemistry.* 34(1) : 191-196.

102. Tosi, B., Donini, A., Romagnoli, C. and Bruni, A. 1996. Antimicrobial activity of some commercial extracts of propolis prepared with different solvents. *Phytotherapy Res.* 10: 335-336.

103. Vilanueva, V. R., Barbier, M., Gonnet, M. and Lavie, P. 1970. Les flavonoïdes de la propolis. isolement d'une nouvelle substance bactériostatique: la pinozembrine (dihydroxy 5, 7-flavone). *Ann. Inst. Pasteur, Paris* 118: 84-87.

104. Walker, P. and Crane, E. 1987. Constituents of propolis. *Apidologie* 18: 327-334

105. Wollenweber, E., Asakawa, Y., Schillo, D., Laelmann, U. and Weigel, H. 1987. A novel caffeic acid derivative and other constituents of *Populus* bud excretion and propolis (bee-glue). *Z. Naturforsch* 42C: 1030-1034.

106. Wright-Sunflower, C. 1988. Panning for brown gold. *Gleaning Bee Cult.* 116: 414-16.