



**T.C.
MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**HATAY İLİ PROPOLİSLERİNİN UÇUCU YAĞ İÇERİKLERİ VE UÇUCU
YAĞLARIN BAZI PATOJEN BAKTERİLERE ANTİMİKROBİYAL
ETKİSİ**

Nadir YILMAZ

GIDA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**HATAY
ŞUBAT-2018**



T.C.
MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**HATAY İLİ PROPOLİSLERİNİN UÇUCU YAĞ İÇERİKLERİ VE UÇUCU
YAĞLARIN BAZI PATOJEN BAKTERİLERE ANTİMİKROBİYAL
ETKİSİ**

Nadir YILMAZ

**GIDA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI
YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**HATAY
ŞUBAT-2018**

22.02.2018

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını ve tez üzerinde Yükseköğretim Kurulu tarafından hiçbir değişiklik yapılamayacağı için tezin bilgisayar ekranında görüntülendiğinde asıl nüsha ile aynı olması sorumluluğunun tarafıma ait olduğunu beyan ederim.

Nadir YILMAZ

ÖZET

HATAY İLİ PROPOLİSLERİNİN UÇUCU YAĞ İÇERİKLERİ VE UÇUCU YAĞLARIN BAZI PATOJEN BAKTERİLERE ANTİMİKROBİYAL ETKİSİ

Bu çalışmada, Hatay ilinin Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas ve Hassa ilçelerinden temin edilen propolis örnekleri kullanılmıştır. Propolis örnekleri su buharı distilasyonuna tabi tutulmuş ve elde edilen propolis uçucu yağ bileşenlerinin GC/MS kullanılarak analizleri yapılmış ve miktarları belirlenmiştir. Ekstrakte edilen propolis uçucu yağlarının patojen bakteriler *S. aureus*, *E. coli* ve *S. entritidis* üzerindeki mikrobiyolojik etkileri; disk difüzyon yöntemi ile analiz edilmiş ve CLSI de belirtilen kıstaslara göre değerlendirilmiştir. Propolisten elde edilen ekstraktların disk difüzyon testinde oluşturduğu inhibisyon zon çapları ile antimikrobiyal etkili penisilin, rifampisin ve vankomisin zon çapları kıyaslanmıştır. Örneklerde belirlenen farklı miktarlardaki bileşenler; sembren, benzaldehit, junipen, δ -kadinen, dekanal, dokosan, karyofilen oksit'tir. sembren'nin miktarı Hassa ilçesinde % 47.4 olarak tespit edilmiştir.

Belen ilçesinden alınan örneklerde başlıca bileşenler β -karyofillin (% 13.75), α -pinen (% 12.83), δ -kadinen (% 9.12), sembren (% 9.10), Yayladağı ilçesinden alınan örneklerde; sembren (% 22.52), 2-metil-3-buten-2-ol (% 18.24), 2-buten-1-ol, 3-metil- (% 7.92), cedrol (% 5.25), bununla birlikte Samandağ ilçesinden alınan örneklerde; sembren (% 12.87), benzaldehit (% 11.31), β -karyofillin (% 6.48), sinamaldehit (% 6.24), Payas ilçesinden alınan örneklerde; 3-buten-2-ol, 2-metil- (% 11.63), sembren (% 9.93), hentriakontan (% 5.40), son olarak Hassa ilçesinden alınan örneklerde; sembren (% 47.04), β -karyofillin (% 11.04), benzil sinnamat (% 9.30) saptanmıştır.

Propolis uçucu yağlarının mikrobiyal analizlerinde *S. aureus*'a karşı Yayladağı ve Hassa ilçelerinde 6 mm inhibisyon zon çapı ölçülmüştür. Fakat belirlenen inhibisyon zon çaplarının antimikrobiyal etkisi duyarlı ya da orta düzeyde etkili olarak belirlenememiştir. Mikrobiyal analizlerde *S. aureus*, *E. coli* ve *S. entritidis*'in propolis uçucu yağ ekstraktlarına karşı bütün örneklerde dirençli (R) olduğu belirlenmiştir.

2018, 54 sayfa

Anahtar Kelimeler: Propolis, Uçucu yağ, Patojen bakteriler, Sembren

ABSTRACT

THE VOLATILE OIL CONTENT OF PROPOLIS FROM HATAY DISTRICT AND ANTIMICROBIAL EFFECT OF VOLATILE OILS ON SOME PATHOGENIC BACTERIA

In this study, propolis samples obtained from Belen, Yayladagi, Samandag, Payas and Hasa districts of Hatay province were used. The samples were subjected to water vapour distillation and the analysis of propolis volatile oil component in the samples obtained was carried out by using GC / MS and then determined their amounts. Microbiological effects of the volatile oils extracted from propolis on pathogenic bacteria *S. aureus*, *E. coli* and *S. enteritidis* were investigated by disc diffusion method and assessed according to the criteria established by CLSI. The diameters of the inhibition zones formed in the disk diffusion test of the propolis oil extracts were compared with the diameters of antimicrobial penicillin, rifampicin and vancomycin zones. The different amounts of components dedected in the samples were Cembrene, Benzaldehyde, Junipene, δ -Cadinene, Decanal, Docosane and Caryophyllene oxide. The content of Cembrene from Hasa district was detected to be 47.4%.

β -Caryophyllene (13.75%), α -Pinene (12.83%), δ -Cadinene (9.12%), Cembrene (9.10%) were in the samples from Belen district. 2-Methyl-3-buten-2-ol (18.24%), 2-Buten-1-ol, 3-methyl- (7.92%), Cedrol (%5.25) were in the samples obtained from Yayladagi district. Additionally, Cembrene (12.87%), Benzaldehyde (11.31%), β -Caryophyllene (6.48%), Cinnamaldehyde (6.24%) were in the samples from Samandağ district. 3-Buten-2-ol, 2-methyl- (11.63%), Cembrene(9.93%), Hentriacontane (5.40%) were in the samples from Payas district. Finally, Cembrene (47.04%), β -Caryophyllene (11.04%) and Benzyl cinnamate (9.30%) were determined in the samples from Hasa district.

In microbial analyses of volatile compounds, inhibition zone diameter was measured as 6 mm against *S. aureus* in Yayladağı and Hasa districts. However, the antimicrobial effect of the inhibition zone diameters detected were found neither as sensitive nor moderately sensitive. *S. aureus*, *E. coli* and *S. enteritidis* were found to be resistant towards propolis volatile oil extracts in all samples.

2018, 54 page

Key words: Propolis, Volatile oil, Pathogenic bacteria, Cembrene

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans eğitimim süresince akademik desteğini esirgemeyen, bilgi ve tecrübeleriyle bu yolda bana ışık tutan saygıdeğer danışman hocam Yrd. Doç. Dr. Dilşat BOZDOĞAN KONUŞKAN'a sonsuz saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Çalışmalarım sırasında değerli görüşlerini ve yardımlarını esirgemeyen Sn.Yrd. Doç.Dr. Aziz GÜL hocama, GC/MS analizlerinde yardım eden Prof. Dr. Filiz AYANOĞLU'na, Gıda Yüksek Mühendisi Hasan Özkan YORULMAZ, Arş. Gör. Musa TÜRKMEN ve Arş. Gör. Nadire Pelin BAHADIRLI'ya, mikrobiyal analizlerde desteğini benden esirgemeyen Yrd. Doç. Drç Emine AKSAN ALDANMAZ'a ve Arş. Gör. Rabia Mehtap TUNCAY'a en içten teşekkürlerimi sunarım.

Üzerimde büyük emeği olan dayım Nihat GEZGİN ve dedem Bereket GEZGİN'e sonsuz şükranlarımı sunarım.

Bu tez çalışması sürecinde yanımda olan ve her türlü desteği benden esirgemeyen babam Necdet YILMAZ'a, abim Ender YILMAZ'a, kız kardeşim Nilay YILMAZ'a, ve burada ismini anmadığım başta diğer aile büyüklerim olmak üzere bu günlere gelebilmemde üzerimde emeği olan tüm dostlarıma sonsuz şükranlarımı sunarım.

Bu çalışmayı; dünyaya gözlerimi açtığım dan beri üzerime titreyen, sevgi ve şefkatini bir an olsun esirgemeyen, özellikle tez yazım sürecimde bir an olsun beni yalnız bırakmayan; emekçi kadının, çalışma azminin ve dürüstlüğün dünya üzerinde canlı bir emsali olarak kabul ettiğim sevgili annem Emel YILMAZ'a ithaf ediyorum.

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER.....	IV
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	V
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	VI
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ.....	VII
1. GİRİŞ.....	1
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	3
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	16
3.1. Materyal.....	16
3.1.1. Propolis Örneklerinin Temini.....	16
3.1.2. Mikroorganizma ve Antibiyotiklerin Temini.....	17
3.2. Yöntem.....	17
3.2.1. Propolis Uçucu Yağ Ekstraksiyonu.....	17
3.2.2. Gaz Kromatografisi-Kütle Spektrometresi (GC/MS) Analizi.....	21
3.2.3. Propolis Uçucu Yağlarının Mikrobiyolojik Analizi.....	21
3.2.4. İstatistiksel Değerlendirme.....	23
4. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA.....	24
4.1. Propolis Uçucu Yağ Bileşenleri.....	24
4.1.1. Sembren.....	28
4.1.2. Benzaldehit.....	29
4.1.3. Junipen.....	30
4.1.4. δ-kadinen.....	30
4.1.5. Dekanal.....	31
4.1.6. Dokosan.....	32
4.1.7. Karyofilen oksit.....	33
4.1.8. β-Karyofilen.....	34
4.1.9. Diğer Bileşenler.....	35
4.2. Propolis Uçucu Yağlarının Mikrobiyolojik Etkileri.....	37
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	44
6. KAYNAKLAR.....	46
ÖZ GEÇMİŞ.....	50
7. EKLER.....	51
EK 1. Propolis Uçucu Yağ Ekstraktlarının GC/MS Kromatogramları.....	51

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 3.1.	Toplanan propolis örneklerinin haritadaki konumu ve GPS koordinatları.....	16
Şekil 3.2.	Clevenger Cihazı.....	18
Şekil 3.3.	Propolis örneklerinin tartılması.....	18
Şekil 3.4.	Clevenger cihazında hidrodistilasyon işlemi.....	19
Şekil 3.5.	Şeffaf tiplere aktarılan propolis uçucu yağları.....	19
Şekil 3.6.	Clevenger cihazı ekstrakt biriktirme üniteleri ve biriken uçucu yağ ekstraktları.....	20
Şekil 3.7.	Propolis uçucu yağ ekstraktları.....	20
Şekil 3.8.	GC/MS Gaz Kromatografisi-Kütle Spektrometresi.....	21
Şekil 3.9.	Kolonilerin 0.5 McFarland standart yoğunluğunun hazırlanması.....	22
Şekil 4.1.	Propolis yağ ekstraktlarının E. Coli ATCC 25922 üzerindeki etkileri...	37
Şekil 4.2.	Propolis uçucu yağ ekstraktlarının S. Entritidis ATCC 13076 üzerindeki etkileri.....	38
Şekil 4.3.	Propolis uçucu yağ ekstraktlarının S. Aureus ATCC 29213 üzerindeki etkileri.....	38
Şekil 4.4.	Mikrobiyal analizlerde antibiyotik disk difüzyon metodu ile oluşan inhibisyon zon çapları.....	41
Şekil 7.1.	Belen ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı.....	52
Şekil 7.2.	Yayladağı ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı	52
Şekil 7.3.	Samandağ ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı	53
Şekil 7.4.	Payas ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı.....	53
Şekil 7.5.	Hassa ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı.....	54

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 4.1.	Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması.....	25
Çizelge 4.1. (Devam)	Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması.....	26
Çizelge 4.1. (Devam)	Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması.....	27
Çizelge 4.2.	Propolis örneklerinin Sembren içeriğine ilişkin ortalama değerler...	28
Çizelge 4.3.	Propolis örneklerinin Benzaldehit içeriğine ilişkin ortalama değerler	29
Çizelge 4.4.	Propolis örneklerinin Junipen içeriğine ilişkin ortalama değerler....	30
Çizelge 4.5.	Propolis örneklerinin δ -kadinen içeriğine ilişkin ortalama değerler..	31
Çizelge 4.6.	Propolis örneklerinin Dekanal içeriğine ilişkin ortalama değerler....	32
Çizelge 4.7.	Propolis örneklerinin Dokosan içeriğine ilişkin ortalama değerler...	32
Çizelge 4.8.	Propolis örneklerinin Karyofilen oksit içeriğine ilişkin ortalama değerler.....	33
Çizelge 4.9.	Propolis örneklerinin β -Karyofilen içeriğine ilişkin ortalama değerler.....	34
Çizelge 4.10.	Propolis örneklerinin diğer içeriklerine ilişkin ortalama değerler.....	35
Çizelge 4.11.	İncelenen Hatay propolis ekstraktları ve antibiyotiklerden tespit edilen inhibisyon zon çapları.....	39
Çizelge 4.12.	CLSI dokümanlarına göre antibiyotiklerin patojen bakterilere karşı sınır değerleri (CLSI, 2015).....	40

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

SİMGELER

mg	: Miligram
µg	: Mikrogram
≥	: Büyük eşit
≤	: Küçük eşit
°C	: Santigrat derece
µl	: Mikrolitre
mL	: Mililitre
L	: Litre
mm	: Milimetre
dk	: Dakika

KISALTMALAR

GC	: Gaz Kromatografisi
MS	: Kütle Spektrometresi
MIC	: Minimum inhibisyon konsantrasyonları
TLC	: İnce tabaka kromatografisi, Thin Layer Chromatography
v/v	: Hacim/hacim
M.Ö	: Milattan Önce
CLSI	: Clinical and Laboratory Standards Institute
Lot	: Parti
GPS	: Global Positioning System; Küresel Konumlama Sistemi
E	: Dietil Eter
MAE	: Mikrodalga Destekli Ekstraksiyon.
MBC	: En düşük bakteri yok edici konsantrasyon, Minimal bactericidal concentration
FID	: Alev İyonizasyon Dedektörü , Flame Ionization Detector,
ESI-MS	: Elektrosprey İyonizasyon Kütle Spektrometresi, Electrospray Ionisation Mass Spectrometry
RP-HPLC	: Ters Fazlı Yüksek Performanslı Sıvı Kromatografisi.
DCM	: Diklorometan
EDTA	: Etilendiamin Tetra Asetik Asit
CFU	: Colony Forming Unit
S. Aureus	: Staphylococcus Aureus
E. Coli	: Escherichia Coli
S. Entritidis	: Salmonella Entritidis

1. GİRİŞ

İlk kez Yunanlılar tarafından keşfedilen propolis, özellikle tıpta çok eski çağlardan beri çeşitli amaçlar için kullanılmaktadır. Eski Yunan kaynakları bu maddenin iltihaplı yaralar ve çürüklerde küller şeklinde ‘doğal bir antibiyotik’ olarak kullanıldığını belirtmektedir (Ghisalberti, 1979; Crane, 1999).

Propolis temelde işçi arılar tarafından bitkilerin filiz ile tomurcuklarından topladıkları reçinensi maddeler ve bitki yara salgılarından oluşturulur. Propolis kirli sarıdan koyu kahverengiye kadar değişen farklı renkte ve oda sıcaklığında yarı katı halde olan bir maddedir. Propolisin kimyasal bileşimi, toplandığı hammaddelerin tür ve çeşitlerine göre değişmektedir. Propolis daha çok kayın, karaağaç ve kozalaklı ağaçlardan toplanır. Propolis, arılar tarafından kovanlarının dış ortamdan izole edilmesi, sağlamaştırılması ve dezenfeksiyonu amacıyla kullanılır (Dığrak ve ark., 1995; Bonvehi, ve ark., 1995; Şahinler, 2000).

Doğadan toplanan propolislerin dışında arıların sindirilemeyen polen kabuklarını kullanarak midelerinde ürettikleri ikinci bir propolis türüne ise “balm” denir. Propolis halk arasında “eğin mumu” olarak da bilinir. Üretim için en uygun bölgeler ormanlık alanlardır. Kovan girişinden toplanan propolisler genellikle yabancı maddeler bulundurduğundan düşük kalitededir (Genç ve Dodoloğlu, 2002; Genç ve Dodoloğlu, 2011).

Arılar tarafından elde edilen propolislerin; aynı toplanma sezonunda aynı bölgeden toplanmalarına rağmen kimyasal yapılarında farklılıkların oluşabileceği ifade edilmektedir (Silici, 2003). Son zamanlarda propolis değerli bir arı ürünü olarak ön plana çıkmakta; antibakteriyel, antifungal, antiviral özellikleriyle beraber antiülser, antitümör, antiemflamatuvar, lokal anestezik ve bağışıklık uyarıcı gibi yararlı birçok biyolojik aktivite göstermektedir (Kumova ve ark., 2002). Çoğunlukla ağaç reçineleri, propolis, yumuşak deniz canlıları gibi birçok karasal ve deniz organizmalarından elde edilebilen Sembren tipi diterpenoidler, yapısal olarak çeşitlilik gösteren uçucu yağlardır. Sembren ve türevleri; biyomedikal, antitümör, antimikrobiyal, antiinflamatuvar, antiparazitik ve daha sık olarak sitotoksik özelliklerle beraber geniş bir biyolojik aktivite sergilerler (Tursch, 1976; Al-Lihaibi ve ark., 2014).

Günümüzde propolislerin biyoaktif özelliklerinden yararlanmak amacıyla kozmetik sanayi, ilaç sanayi, tıp, alternatif tıp, mobilyacılık, kimya sanayi, gıda sanayi ve gıda katkı maddesi gibi birçok alanda kullanılmaktadır (Lotfy, 2006; Mohammadzadeh ve ark., 2007).

Ham propolisin bileşimi kaynağına göre değişmekle birlikte, genellikle % 50 reçine, % 30 mum, % 10 uçucu ve aromatik yağlar, % 5 polen ve % 5 diğer organik maddelerden oluşmaktadır (Silici, 2003).

Uçucu yağlar antiseptik ve antimikrobiyal özellikler göstermektedir. Gıdaları bozan, gıda zehirlenmelerine neden olan mikroorganizmalara, bozucu ve mikotoksin üreten küflere, patojenik ve dimorfik mayalara, hayvan ve bitki virüslerine karşı uçucu yağların etkileri konusunda pek çok araştırma bulunmaktadır. Bazı baharatlar ve bitkilerden elde edilen uçucu yağlar, sahip oldukları antimikrobiyal aktiviteden dolayı gıda sanayinde kullanılan doğal olmayan koruyucu maddelere alternatif olabilirler. Bu bileşiklerin, gıda katkı maddeleri olarak kullanılmalarında, gıda zehirlenmelerine neden olan patojenlerin çoğalmasını önlemede ya da gıda raf ömrünü uzatmakta önemli payları vardır. Doğal antimikrobiyal bileşenlerin kullanımı sadece gıdaların dayanıklılık kazanmasında değil, aynı zamanda mikrobiyal kaynaklı bitki ve insan hastalıklarının kontrollerinin sağlanmasında da önemlidir (Uçan.,2008). Özellikle gıda patojenlerine karşı koruyucu olarak kimyasal koruyucu ve antibiyotiklere alternatif olabileme potansiyelleri nedeniyle de uçucu yağlar önemli antimikrobiyal ajanlardır (Evren ve Tekgüler, 2011).

Bu çalışmada 2016 yılı sonbahar mevsiminde Hatay ilinin Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas, Hassa ilçelerinde yerleşik olarak faaliyet gösteren arıcılardan temin edilen propolis örneklerinin, uçucu yağ bileşenlerinin tespiti ve bu uçucu yağların patojen bakteriler (*Staphylococcus aureus*, *Escherichia coli*, *Salmonella Entritidis*) üzerindeki etkilerinin saptanması amaçlanmıştır. Böylelikle Hatay propolisi uçucu yağlarının il genelindeki bileşen haritasının belirlenmesi, Hatay ilinde propolis uçucu yağlarının koruyucu gıda katkı maddelerine doğal alternatif olarak değerlendirilebilmesi, propolis üreticilerinin doğru yönlendirilebilmesi gibi önemli konularında üreticilere nitel ve nicel veriler sunarak il ekonomisine katkı verecek çalışmalara destek sağlanması amaçlanmıştır.

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Grange ve Davey (1990), Fransa'nın Lyon kentinden temin ettikleri propolisin antibakteriyel özellikleri üzerine yaptıkları çalışmalarında; etanolik ekstraktı buharlaştırılmak suretiyle 1 ml'sinden 60 mg katı reçineli malzeme elde etmişlerdir. Propolisin antibakteriyel etkisini minimal bakteri konsantrasyonları yöntemi ile değerlendirmişlerdir. Araştırmacılar, inceledikleri propolis örneğinin, insan tüberkülozu basili de dâhil olmak üzere yaygın olarak karşılaşılan Kok ve Gram pozitif çubuklarına karşı antibakteriyel etkiye sahipken, Gram negatif basillere karşı sınırlı etkiye sahip olduğunu bildirmişlerdir. Araştırmacılar, propolisin antimikrobiyal özelliklerinin muhtemelen yüksek flavonoid içeriklerinden kaynaklanabileceğini bildirmişlerdir.

Dığrak ve ark. (1995), Elazığ ilinin farklı bölgelerinden topladıkları propolis örneklerini % 95 etanol içerisinde ekstrakte ettikleri çalışmalarında, elde ettikleri yağ asidi ekstraktının içeriğini GC ile belirlemişlerdir. Araştırmacılar, mikrobiyal analizi agar disk difüzyon metodu ile gerçekleştirmişlerdir. Propolis ekstraktlarının disklerle 5 ile 100 µL aralığında emdirilerek mikrobiyal analizlerin yapıldığını bildirmişlerdir. Araştırmacılar, propolis etanolik ekstraktında genel bir antimikrobiyal etkinin saptandığını ifade etmişlerdir. *E. coli*'ye karşı inhibisyon zonları tespit edilmediğini, *S. Aureus*'a karşı 7 ile 20 mm arasında değişen inhibisyon zon çapı tespit ettiklerini bildirmişlerdir. Propolis etanolik ekstraktının farklı konsantrasyonlardaki çözeltilerinin, *Escherichia coli* dışında çalışmada kullanılan bakteri ve maya suşlarının gelişimlerini engellediklerini bildirmişlerdir. Farklı yörelerden toplanan propolislerin antimikrobiyal etkilerinin benzer olduğunu bildirmişlerdir.

Bankova ve ark. (1995), Güney Amerikanın 4 farklı bitki örtüsüne sahip bölgesinden topladıkları propolis örneklerini % 70'lik etanol içerisinde ekstrakte etmişlerdir. Uçucu bileşenlerin, propolis örneklerinin 4 saat hidrodistilasyonu ile elde edildiği çalışmada bileşenler GC/MS ile analiz edilmiştir. Araştırmacılar, uçucu bileşenlerden δ-Kadinen'i en fazla % 3.3 en az % 0.7 olarak belirlediklerini bildirmişlerdir. Aynı çalışmada uçucu bileşenlerin *Staphylococcus aureus* 209 üzerindeki antibakteriyel etkisi de incelenmiş ve 11 ile 13 mm aralığında inhibisyon zon çaplarının belirlendiğini bildirmişlerdir. Araştırmacılar, Brezilya propolisinin karakteristik özelliklerini flavonoidler ve fenolik asit esterleri bakımından düşük, dihidroksisinnamik

asit bakımından ise yüksek konsantrasyona sahip olduğunu ifade etmişlerdir. Şaşırtıcı bir şekilde, Bulgar propolisinin uçucu bileşenlerinin antibakteriyel aktivite göstermediğini; bu durumun, Brezilya ve Bulgar propolislerinin kimyasal bileşimleri ile özellikle fenollerin alt içeriklerinde belirlenen önemli farklılıklar sebebiyle açıklanabileceğini bildirmişlerdir.

İtalya'da ticari marketlerde tüketime sunulan saf İtalya propolislerinin farklı solventler ile hazırlanarak antimikrobiyal etkileri incelendiği araştırmada % 30'luk propolis ekstraktları; % 60'luk etanol, saf gliserin, yenilebilir tahılların harmanlanmış yağı ve propilen glikol solventleri kullanılarak hazırlanmıştır. Propolis ekstraktlarının antimikrobiyal etkinliği agar disk (10 mm) difüzyon metodu ile gerçekleştirilmiş, disklere 0.2 mL propolis ekstraktları emdirilerek hazırlanmıştır. Sonuç olarak solventlerde yalnız başlarına etki gözlemlenmezken, tüm propolis preparatları için inhibasyon zon çapı belirlediklerini özellikle tahıl yağı solventi ile hazırlanan propolis ekstraktının *Staphylococcus aureus*'a karşı 15 ile 30 mm arasında değişen inhibasyon zon çapları oluşturduğunu bildirmişlerdir. Harmanlanmış tahıl yağı, etanol ve propilen glikol çözeltilerinin 2 haftaya kadar mikrobiyal inhibasyonu sağladığı, gliserin çözeltisinin ise sadece birkaç gün kadar inhibasyonu sağladığını bildirmişlerdir. Propolisin etanolik ekstraktının *Escherichia coli* 'ye karşı biraz aktiflik gösterdiği fakat etkin olmadığını, propolis harmanlanmış tahıl yağı ekstraktının *Escherichia coli* 'ye karşı 6 ile 15 mm aralığında inhibasyon zon çapı oluşturduğunu, gliserin solventinin *Staphylococcus aureus* ve *Escherichia coli* karşı daha aktif olduğunu bildirmişlerdir. Bulgular, ekstraksiyon için kullanılan solventlerin propolis antimikrobiyal aktivite gücünü artırabildiğini göstermiştir (Tosi ve ark., 1996).

Menezes ve ark. (1997), São Paulo (Brezilya) şehrinden alınan etanollü ekstraktlar, tabletler, kapsüller, tozlar gibi propolis ve propolis içeren ticari ürünleri analiz etmişlerdir. Katı ürünlerin reçinelerinin % 95 saflıktaki etanol ile ekstrakte edildiği ifade edilmiştir. Bu reçinelerin *S. Aureus*, *Bacillus cereus* ve *Bacillus subtilis* karşı in vitro aktivitesinin olduğu ifade edilmiştir. Araştırmacılar, kalite kontrol için propolis konsantrasyonundan ziyade antibakteriyel aktivitenin göz önüne alınması gerektiğini ve bazı reçinelerin türlere özgü bir etki gösterebileceğini bildirmişlerdir.

Bankova ve ark. (1998), Brezilya propolisindeki esansiyel yağların mevsimsel değişimlerini incelemişlerdir. Araştırmacılar, Afrika kökenli balarları ile Avrupa kökenli balarlarının ürettiği propolis örneklerini 4 saat boyunca su buharı distilasyonuna tabi tutmuşlardır. Brezilya propolisinin uçucu yağın kimyasal bileşimlerinin GC ve GC/MS ile araştırıldığını, mevsimsel farklılıkların çok önemli olmadığını bildirmişlerdir. Yağın ana bileşenlerini; spathulenol (% 3.0-13.9), (2Z, 6E)-farnesol (% 1.6-14.9), Benzil benzoat (% 0.3-18.3) ve Prenile asetofenonlar (% 3.4-17.1) olarak bildirmişlerdir. Bileşenlerden δ -Cadinene'nin ise % 0.2-4.9 aralığında gözlemlendiğini bildirmişlerdir.

Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölgesinin, iğnesiz yerli arı propolis örneklerinin esansiyel yağlarını anti-bakteriyel aktiviteleri bakımından incelemişlerdir. Esansiyel yağ bileşenlerinin GC/MS ile analiz edildiğini ifade etmişlerdir. Anti-bakteriyel aktivite analizlerinin ise modifiye difüzyon yöntemiyle yapıldığını bildirmişlerdir. İki bölge ekstraktında sırasıyla; % 0.7 ve % 0.2 oranında benzaldehit, % 3.1 ve % 1.4 oranında verbenol, % 0.4 ve % 3.5 oranında τ -muurolol bileşeni, bir bölgede ise % 2 δ -kadinen bileşeni gözlemlediklerini bildirmişlerdir. Çalışma sonucunda; propolis örneklerinin kimyasal bileşenlerindeki farklılıklara rağmen hepsinin *Staphylococcus aureus*'a karşı 8 ile 10 mm arasında inhibisyon zon çapı belirlediklerini ve bu değerliklerin zayıf mikrobiyal aktivite ifade ettiğini, incelenen uçucu yağların literatür verilerinde iddia edildiği gibi *Escherichia coli*'ye karşı hiçbir aktiflik göstermediğini bildirmişlerdir.

Kujungiev ve ark. (1999), Farklı coğrafi bölgelerden temin edilen propolis örneklerini % 70'lik etanol ile ekstrakte ettikleri çalışmalarında, propolis ekstraktlarını kurutarak tortular elde etmişlerdir ve tortuları 4 saat süreyle su buharı distilasyonuna tabi tutmuşlardır. Propolis uçucu yağlarının (0.4 mg/disk) antibakteriyel aktivite analizi agar disk difüzyon yöntemi ile gerçekleştirdikleri çalışmalarında kontrol antibiyotiği olarak Streptomisin 0.1 mg kullanıldığını ifade etmişlerdir. Analiz sonucunda *Staphylococcus aureus* 209 karşı oluşan inhibisyon çapları bölgelere göre farklılık göstererek; Streptomisin 0.1 mg için 28 ± 1 mm, propolislerde ise sadece bir bölge örneği için $4 >$ mm, geriye kalan örneklerde ise en fazla 23 ± 1.3 mm, en az 11.2 ± 0.3 mm aralığında değişen inhibisyon çapları gözlemlediklerini bildirilmişlerdir. Tüm örneklerin; mantar ve gram pozitif bakteri suşlarına karşı aktiflik gösterdiğini ve çoğunluğunun antivirüs aktivitesi gösterdiğini ifade etmişlerdir. Kimyasal bileşimlerindeki farklılıklara rağmen

tüm örneklerin aktivitelerinin benzerlik gösterdiği rapor edilmiştir. Ilıman bölge propolis içeriğini çoğunlukla flavonoidlerin ve fenolik asit esterlerinin oluşturduğunu belirtmişlerdir.

Ahn ve ark. (2004), yaptıkları çalışmada, Kore'nin çeşitli bölgelerinden gelen propolis örneklerinin in vitro antioksidan aktivitesini araştırmışlardır. Araştırmacılar önemli bileşenler saptamışlar ve kantitatif olarak her bileşeni analiz etmişlerdir. Propolisteki bileşenlerin ve niceliksel değerlerinin coğrafi kökene göre değişiklik gösterdiğini, Pocheon'den (Güney Kore) gelen propolis örneği dışında tüm Kore propolis örneklerinin nispeten benzer bileşenleri ihtiva ettiği ve benzer antioksidan faaliyetlerinin olduğunu rapor etmişlerdir.

Silici ve Kutluca (2005), üç farklı *Apis Mellifera* balırsı ırkının benzer kovanlarından topladıkları propolis örneklerinin kimyasal içerikleri ve antibakteriyel aktivitelerini araştırmışlardır. Propolis örnekleri GC / MS ile incelenmiş ve propolis için 32'si yeni olmakla beraber 48'den fazla bileşen tespit edildiğini ifade etmişlerdir. Bileşenlerden docosane'nin *Apis mellifera anatolica* örnek ekstraktında % 1.32, *Apis mellifera carnica* örnek ekstraktında % 1.21 olarak belirlediklerini bildirmişlerdir. Araştırmacılar; agar seyreltme analizleri sonucu, propolis örneklerinin etanolik ekstraktlarının *Staphylococcus aureus*'a karşı yüksek antibakteriyel etki gösterdiğini, *Escherichia Coli* ise zayıf antimikrobiyal etki gösterdiklerini ifade etmişlerdir. Aynı araştırmada; *Apis mellifera carnica* kovanlarından toplanan propolisin, *Apis mellifera anatolica* ve *Apis mellifera caucasica*'ya göre daha zayıf bir antimikrobiyal aktivite gösterdiğini bildirmişlerdir. *Apis mellifera caucasica* propolis örneğinin diğer örneklere kıyasla maya ve bakteriler üzerindeki etkinliğinin daha yüksek olduğu bunun sebebinin ise içerdiği farklı kimyasal bileşimleri ve bileşik konsantrasyonlarına atfedilebileceğini de bildirmişlerdir.

Popova ve ark. (2005), Türkiye'nin farklı illerinden temin edilen propolis örneklerini % 70'lik etanol ile ekstrakte ettikleri araştırmalarında, propolis ekstraktlarının kimyasal kompozisyon analizlerinin TLC ve GC/MS ile birlikte yapıldığını bildirmişlerdir. Antibakteriyel aktivite testlerinin agar seyreltme yöntemi ile gerçekleştirildiği, kontrol gurubu olarak etanol solventinin incelendiği belirtmişlerdir. Araştırmacılar, incelenen tüm ekstraktların antibakteriyel etki gösterdiğini bildirmişlerdir. TLC kıyaslamasında incelenen tüm propolis numnelerinin kavak

taksonomik belirteçleri bulduklarını, fenolik ve flavodin içeriklerinin ise değişken olduğunu vurgulamışlardır. Propolis örneklerinin fenolik ve flavodin içeriklerinin azalması ile antibakteriyel aktivitelerinin de azaldığını ifade etmişlerdir.

Şahinler ve Kaftanoğlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında; propolis örnekleri % 70'lik etanol ile ekstrakte edilerek, bileşen analizlerini GC/MS ile gerçekleştirmişlerdir. Bileşenlerden junipen, sembren ve nonanal Hatay ve Adana ekstrakt bileşenlerinde gözlemlenmezken Mersin'de sırasıyla % 0.65, % 13.34, % 0.47 olarak belirlemişlerdir. Karyofilen oksit bileşenine Hatay örneğinde rastlanmazken Mersin örneğinde % 2.49, Adana örneğinde % 2.51 olarak belirlemişlerdir. Araştırmacılar tarafından Hatay propolis örneğinin ana bileşenlerinin; metil sinamat (% 6.23), benzil sinamat (% 9.37), α -copaene (% 7.65), α -elemen (% 3.70), β -edüsmol (% 19.41), α -edüsmol (% 15.39), α -bisabolol (% 12.25), 10-methylnonadecane (% 6.52), tetratetracontane (% 3.99), 17-pentatriacontene (% 11.66) ve tetracosanoik asit (% 8.87) olarak tespit edilmiştir.

Aslan ve ark. (2007), Hatay bölgesinin propolis örneklerini % 70 etanol ile ekstrakte ederek, ekstraktlarının uçucu yağ bileşimini GC/MS ile incelemişlerdir. Araştırmacılar, terpenoidleri; α -pinen (% 0.53), cyercene (% 3.65), α -copaene (% 2.65), β -maalien (% 2.83), α -elemene (% 3.70), β -eudesmol (% 9.41), α -eudesmol (% 5.39), α -bisabolol (% 2.25), yağ asitlerini; 13-tetradekanol (% 0.52), heksadekanoik asit (% 1.55), 9-oktadekanoik asit (% 2.12), docosanoik asit (% 1.02), tetracosanoik asit (% 1.87), heksakosanoik asit (% 3.56), oktakosanoik asit (% 2.19), triakontanoik asit (% 1.83), butandioik asit (% 2.26), oktadekanoik asit (% 3.28), 8-oktadekanoik asit (% 2.08), 9,12,15-oktadekatrienoik asit (% 1.13), eikozanoik asit (% 1.73) ve tetracosanoik asit (% 3.35) olarak belirlemişlerdir.

Lemos ve ark. (2008), Brezilya yeşil propolisinden su buharı distilasyonu ile elde ettikleri uçucu yağ kimyasal bileşimlerini GC-FID ve GC/MS ile analiz ederek tanımlamışlardır. Yaptıkları çalışmaya göre; esansiyel yağ bileşenleri, oksitlenmiş monoterenler (% 0.4), seskiterpen hidrokarbonlar (% 67.2) ve oksijenli seskiterpenler (% 23.6) olarak sınıflandırılmıştır. Yağın % 91'ini oluşturduğu belirlenen 17 bileşen arasında (E)-nerolidol (% 17.1), β -karyofilen (% 13.4) ve selin-3.7(11)-dien (% 10.4), α -copaene (% 4), karyofilen oksit (% 1) gözlemlendiğini, yağın seskiterpen, hidrokarbonlar ve oksijenli seskiterpenlerin yüksek yüzdeleri ile karakterize olduğunu bildirmişlerdir.

Buriol ve ark. (2009), Propolis örneklerinin yemeklik yağ ve etanol ile hazırlanan ekstraksiyonlarının, kimyasal bileşenleri ile biyolojik aktivitelerini karşılaştırdıkları çalışmalarında; nitel ve kantitatif analizleri sırasıyla ESI-MS ve spektrofotometrik yöntemler kullanarak, antibakteriyel aktivitelerini ise agar difüzyon yöntemi ile değerlendirdiklerini bildirmişlerdir. Mikrobiyal analizlerin petri içerisinde hazırlanan agar üzerinde 7 mm çapında oyuklar açıldığı ve bu oyuklara 50 µL ekstrakt ilave edilerek gerçekleştirildiğini bildirmişlerdir. Ekstraktların yemeklik 25 mL kanola yağı ve % 30, % 70, % 95 v/v etanol ile ayrı ayrı hazırlandığını ifade etmişlerdir. Propolis yağı ile etanolik ekstraktların nitel kimyasal bileşimlerinin çok benzer olduğu, bitkisel yağ ekstraksiyonunun fenolik madde içeriğinin düşük olduğu ve bitkisel yağ ekstraksiyon süresi uzatılsa bile etanolik ekstraksiyonların verimine erişemeyeceğini bildirmişlerdir. Propolis yağ ekstraktının difüzyon problemleri nedeniyle antimikrobiyal aktivitesinin doğrudan agar plakalarında değerlendirilmesinin çok zor olduğunu, bileşiklerin yağda yeniden ekstre edildiğini ve daha sonra gram pozitif ve negatif bakterilere karşı aktivitelerini karşılaştırmak için etanol içinde seyreltildiğini ifade etmişlerdir. Bununla beraber tüm propolis ekstraktlarının *Staphylococcus aureus*'a karşı aktif olduğunu, yemeklik yağ ekstraktı inhibisyon zon çapının 8.05 ± 0.57 mm olarak belirlediklerini ancak *E. coli*, *Salmonella typhimurium*'a karşı hiç bir etki göstermediklerini bildirmişlerdir.

Sahinler ve ark. (2009), Hatay bölgesinin propolis örneklerini % 70 etanol ile ekstrakte ederek, ekstraktlarının kimyasal bileşimini GC/MS ile incelemişlerdir. Araştırmacılar çalışma sonucunda Hatay propolis bileşenlerini; aromatik asitler; benzil sinamat (% 4.43), sinnamil sinamat (% 6.95), metil sinamat (% 3.55), sinnamoilglisin (% 1.21), kafeik asit (% 4.37), terpenoidler; α -pinen (% 0.42), indolin, 2-metilen (% 2.31), cyercene (% 4.45), α -copaene (% 3.43), β -maalien (% 1.75), α -elemene (% 3.51), β -eudesmol (% 7.61), α -eudesmol (% 4.51), α -bisabolol (% 1.25), geranil asetat (% 1.19), calarene (% 0.92), yağ asitleri; heksakosanoik asit (% 2.45), oktakosanoik asit (% 1.79), triakontanoik asit (% 2.25), butandioik asit (% 1.32), docosanoik asit (% 2.12), tetracosanoik asit (% 2.71), 9,2,15-oktadekatrienoik asit (% 1.25), oktadekanoik asit (% 2.18) ve 9,12-oktadekanoik asit (% 1.72) olarak belirlemişlerdir.

Oliveira ve ark. (2010), Brezilya Rio de Janeiro şehrinden sonbahar ayında (Temmuz) temin ettikleri propolis örneklerinin uçucu yağlarını hidrodistilasyon yöntemi

ile ekstrakte ederek uçucu yağ bileşimi ve antibakteriyel aktivitelerini incelemişlerdir. Propolis örneklerinin uçucu yağ bileşenlerini GC/MS analizi ile belirledikleri çalışmalarında, 26 bileşenin tanımlandığını ve ana bileşenlerin β -karyofilen (% 12.7), asetofenon (% 12.3), β -Farnesen (% 9.2) ile α -terpineol (% 1.49) olarak saptandığını bildirmişlerdir. Antibakteriyel analizlerin *S. aureus* ve *E. Coli*' ye karşı agar disk difüzyon yöntemi ile gerçekleştirildiğini, Vankomisin (30 μ g / disk), penisilin (10 U / disk) ve rifampisin (5 μ g / disk) standart antibiyotik disklerini pozitif kontrol parametresi olarak kullandıklarını bildirmişlerdir. Propolis uçucu yağının, *S. Aureus*'a karşı (14 mm zon çapı), ve *E. coli*'ye (17 mm zon çapı) karşı antibakteriyel etki sergilediğini saptamışlardır. Araştırmacılar antibakteriyel analiz sonuçlarının *E. Coli* için bir ilk olduğunu bildirmişlerdir. Bu sonuçların; ekstraksiyon prosedürlerinin değişmesi ile farklı bileşenleri açığa çıkarabileceği veya miktarlarını etkileyebileceğini bununla beraber muhtemelen antibakteriyel aktivitenin etkilenebileceğini ifade etmişlerdir.

Li ve ark. (2011), Brezilya yeşil propolisinin uçucu yağlarının farelerin kaygı düzeylerine olan tedavi edici etkilerini inceledikleri çalışmalarında; propolisten uçucu yağların MAE yöntemi ile ekstrakte ettiklerini bildirmişlerdir. Araştırmacılar, mikrodalga destekli ekstraksiyon prosedürüne göre ekstrakte ettikleri propolis uçucu yağlarının bileşenlerini GC/MS ile analiz etmişlerdir. Belirlenen toplam 51 bileşende, % 1'den fazla nispi miktara sahip olan 21 bileşen belirlemişlerdir. Esansiyel yağın önemli bileşenlerini longipinen (% 24.89), α -eudesmol (% 6.94), β -eudesmol (% 6.08), β -karyofilen (% 5.27) guaiol (% 5.06) ve karyofilen oksit (% 1.29) olarak bildirmişlerdir..

Duran ve ark. (2011), Hatay ve Bursa propolisleri ile hazırladıkları % 96'lık etanol ekstraktlarının GC/MS analizini yaptıkları çalışmalarında; Hatay propolis örneğinin yüksek konsantrasyonlarda; flavonlardan 4H-1-benzopiran-4-on,5-hidroksi-7-metoksi-2-fenil (% 4.31), 4H-1-benzopiran-4-on,2,3-dihidro-5,7-dihidroksi-2-fenil (% 10.65), 4H-1-benzopiran-4-on,3,5,7-trihidroksi-2-fenil (% 3.77), krisin (% 7.04), aromatik asitlerden benzoik asit (% 4.73), 9-octadekenoik asit (% 2.89), aromatik esterlerden 2-propen-1-on (% 5.43), 3-hidroksi-4-metoksisinnamik asit (% 2.26) içerdiğini; düşük konsantrasyonda benzaldehit (% 0.07) içerdiğini belirlemişlerdir.

Probst ve ark. (2011), Propolis ve esansiyel yağların antimikrobiyal aktivitesi üzerine yaptıkları çalışmalarında; insan klinik örneklerinden elde edilen *Staphylococcus aureus* ve *Escherichia coli* suşlarına karşı *Apis mellifera*'dan alınan propolisin etanolik

(% 70'lik etanol kullanılarak hazırlanan) ekstraktları ile karanfil, zencefil, tarçın ve bahçe nanesi esansiyel yağlarının antimikrobiyal aktivitelerini incelemişlerdir. Antimikrobiyal analiz sonuçlarının, MIC metodu kullanılarak belirlendiği, buna karşılık MIC % 90 değerleri hesaplandığı ifade edilmiştir. Çalışma sonucunda, tüm örneklerin antibakteriyel etki gösterdiğini ve tarçın esansiyel yağının etki değerinin en yüksek olduğunu bildirmişlerdir. Rapor edilen diğer sonuçlarda ise zencefil ve nane esansiyel yağları ile propolisin etanol ekstraktı kombinasyonlarının sinerjik etkiler gösterdiği bildirilmiştir.

Monzote ve ark. (2012), Küba propolis ekstraktının in vitro antimikrobiyal değerlendirilmesini gerçekleştirdikleri çalışmalarında; farklı kimyasal türlerden olan kahverengi, kırmızı ve sarı 20 Küba propolis ekstraktını in vitro antibakteriyel özelliklerine göre değerlendirmişlerdir. Küba propolis örneklerini % 100 metanol içerisinde çözdürülerek hazırlandığı ifade edilmiştir. Antibakteriyel aktivite analizini *Staphylococcus aureus* ve *Escherichia coli* için koloni oluşturan birim (CFU) yöntemiyle gerçekleştirmişlerdir. Çalışma sonucunda; farklı propolis ekstraktları düşük µg/mL konsantrasyonlarında *S. Aureus*'a karşı aktivite gösterirken, en yüksek 64 µg/mL test konsantrasyonunda *E. Coli*'ye karşı hiçbir aktivite tespit edilemediğini bildirmişlerdir.

Naik ve ark. (2013), yaptıkları çalışmada Hindistan propolisi esansiyel yağlarının kimyasal bileşenlerini incelemişlerdir. Propolis esansiyel yağlarını hidrodistilasyon yöntemi ile ekstrakte ettikleri çalışmalarında, elde edilen uçucu yağların nicel ve nitel kimyasal bileşenlerini incelemek için sırasıyla GC/MS ve GC-FID analizlerini gerçekleştirmişlerdir. Belirlenen başlıca bileşenlerin trikosan (% 13.60), hekzakosan (% 11.50), heptakosan (% 7.55), linalool (% 2.67), metileugenol (% 5.96), geraniol (% 5.81), (Z) -etil sinamat (% 5.48), henikosan (% 5.12) ve pentakosan (% 1.08) olduğu bildirilmiştir. Araştırmacılar çalışma sonucunda, Hint propolisinden izole edilen uçucu yağın diğer ülkelerin propolis raporlarından farklılık gösterdiğini ve propolisin kimyasal yapısının bölgeden bölgeye değiştiğini bildirmişlerdir.

Inui ve ark. (2014), Brezilya kırmızı propolisinin etanol ekstraktlarında antibakteriyel aktiviteye katkıda bulunan fenolik bileşiklerin tanımlanması üzerine yaptıkları çalışmalarında, kırmızı propolis örneklerinden tanımlanan fenolik bileşiklerin kantitatif analizini, RP-HPLC kullanarak gerçekleştirmişlerdir. Brezilya kırmızı propolisi etanolik ekstraktının ana fenolik bileşiklerinin 72.9, 66.9 ve 30.8 mg g miktarlarında (3S) -vestitol, (3S) -neovestitol ve (6aS, 11aS) -medikarpin olarak belirlendiğini ifade

etmişlerdir. Her bir bileşiğin antibakteriyel faaliyetleri antibakteriyel aktivite minimum inhibisyon konsantrasyonlarını MIC yöntemi ile saptamışlardır. Belirledikleri fenolik bileşiklerinin *S. Aureus*'a karşı güçlü antibakteriyel aktivite sergilediğini bildirmişlerdir. Aynı çalışmada, Brezilya kırmızı propolisi bakterilere karşı koruyucu gıda katkı maddesi olarak kullanılabilceğini ifade etmişlerdir.

Graikou ve ark. (2015), Yunanistan, Yunan adaları, Kıbrıs, Hırvatistan ve Cezayir'den seçilen 32 Akdeniz propolis ekstraktının kimyasal bileşimleri, antioksidan ve antimikrobiyal aktivitelerini tespit etmişlerdir. Propolis örneklerinden % 70'lik etanol ile hazırladıkları ekstraktları GC/MS ile analiz etmişlerdir. In vitro antibakteriyel araştırmaların, agar disk difüzyon yöntemi ile inhibisyon zonlarının ölçülmesi ve ayrıca MIC metodu kullanılarak gerçekleştirildiği ifade edilmiştir. Araştırmacılar çalışmalarını sonucunda; 32 propolis örneği için inhibisyon zon çaplarının *S. aureus* için 11 mm ile 23 mm aralığında olduğunu, *E. coli* için ise inhibisyon zon çaplarının 10 mm ile 19 mm aralığında olduğunu bildirmişlerdir. Propolis standardizasyonu açısından; coğrafya, iklim kökeni ve farklı coğrafi bölge örneklerinin biyolojik özelliklerine bağlı olan propolis kompozisyon bilgilerinin çok önemli olduğunu ifade etmişlerdir. Bunların yanı sıra propolislerin potansiyel ilaç, hastalıkların tedavisinde tıbbi yararı bulunan fonksiyonel gıda, aynı zamanda gıda sistemlerinde doğal antioksidan ve antimikrobiyal katkı maddeleri olarak kullanılabilceğini belirtmişlerdir.

Fernandes ve ark. (2015), Orta Batı Brezilya'daki Cerrado biyomundan toplanan kahverengi propolislerden hidrodistilasyon yöntemiyle elde edilen esansiyel yağın antifungal ve antibakteriyel aktivitelerini dokuz patojen mikroorganizmaya karşı MIC yöntemini kullanarak değerlendirmişlerdir. GC/MS ile % 0.1'den daha yüksek konsantrasyonlarda 31 bileşen belirledikleri çalışmada, saptanan bileşenlerin % 93.5'inin seskiterpen sınıfına ait olduğu ve hidrokarbon sesquiterpenlerin ise baskın olduğunu bildirmişlerdir. Çoğu yapısal tipte ana bileşenler olmak üzere; (E)-karyofilen (% 7.85), δ -cadinene (% 7.67), spathulenol (% 6.65), viridifloren (% 4.52), α -copaan (% 4.01), aromadendrene (% 3.85), α -trans-bergamoten (% 3.73) ve (E)-nerololidin (% 3.72) ait yapı tiplerinin gözlemlendiğini bildirmişlerdir. İzole edilen propolisin esansiyel yağının; (E)-nerolidol ve spathulenol olmak üzere iki ana bileşenlerinden (E)-nerolidol'in *Staphylococcus aureus*'e karşı daha aktif olduğu ifade edilmiştir. Ayrıca, propolis uçucu

yağını potansiyel doğal bir koruyucu olarak mikroorganizmalara karşı kullanılmasını önermişlerdir.

Omar ve ark. (2015), Nijerya kırmızı propolisinin kimyasal karakterizasyonunu ve bileşenlerin izolasyonunu gerçekleştirdikleri çalışmalarında; propolis örneklerinin etanol ile ekstrakte edildiğini, kimyasal bileşenlerin ise HPLC cihazı ile analiz edildiğini bildirmişlerdir. Araştırmacılar izole edilen bileşenlerin; bir isoflavanon (kalyoksin); iki flavanon (liquiritigenin ve pinocembrin); bir isoflavan (vestitol); bir pterokarpan (medikarpin); iki prenylflavanon (8-prenilnaringenin ve 6-prenilnaringin); iki geranil flavonoid (propolin D ve macarangin); bir (dihidrobenezofuran) olduklarını bildirmişlerdir.

Naves ve ark. (2016), Brezilya Igarassu şehri kırmızı propolislerinin antimikrobiyal etkilerini inceledikleri çalışmalarında, propolislerin % 96 etanol ile ekstrakte edildiğini bildirmişlerdir. Ekstraktların ayrıca hekzan, asetat, metanol ile sıvı-sıvı ekstrakt fraksiyonları ve ham toz haldeki propolis formunda incelendiğini belirtmişlerdir. Ham toz propolis, propolis etanol özütü, fraksiyonlar ve formononetin antimikrobiyal aktivite analizlerinin MIC yöntemi ile gerçekleştirilmiştir. Ekstraktların HPLC ile analiz edildiği ve bu analiz sonucunda tanımlanan ana bileşenlerin formononetin (ham toz propoliste 12.38 µg/g, etanol ekstraktında 2.86 µg/g) ve pinosembrin (ham toz propoliste 4.86 µg/g, etanol ekstraktında 2.07 µg/g) olarak saptandığı araştırmacılar tarafından bildirilmiştir. Araştırma sonucunda etanolik ekstraktın incelenen tüm bakteriler üzerinde inhibasyon sağladığını, hekzan ve asetat ekstrakt fraksiyonlarında benzer özellikler sergilediğini bildirmişlerdir. Kırmızı Brezilya propolisinin antimikrobiyal aktivitesinde izoflavan formononetin'in kısmen de olsa etkisi olduğunu ifade etmişlerdir.

Machado ve ark. (2016), süper kritik ekstraksiyon ve etanolik ekstraksiyon (% 80 etanol) yöntemleriyle Brezilya'nın farklı coğrafi bölgelerinden elde edilen kahverengi, yeşil, kırmızı propolislerin kimyasal bileşenleri ve biyolojik aktivitelerini inceledikleri çalışmalarında; ekstrakt kompozisyonlarını HPLC ile tespit etmişlerdir. Ekstraktların mikrobiyal analizi MIC ve MBC ile gerçekleştirilmiştir. Araştırma sonuçlarına göre; örnekler arasında ($P \leq 0.05$) belirgin farklar tespit etmişler, bu kimyasal çeşitliliğe rağmen tüm propolis türlerinin önemli bir antimikrobiyal aktivite gösterdiği, bunun sebebinin örneklerin sahip olduğu fenolik bileşiklerden ileri geldiğini bildirmişlerdir. Geleneksel ekstraksiyon metodunun etanolik ekstraksiyon metodundan daha iyi sonuçlar verdiğini,

örneklerden tanımlanan bileşik konsantrasyonlarını ekstraksiyon yöntemlerinin etkileyebileceğini bildirmişlerdir. Tüm ekstraktların, *Staphylococcus aureus*'ların (gram-pozitif bakteri) *Escherichia coli* (gram-negatif bakteri) den daha yüksek antimikrobiyal aktivite gösterdiklerini ancak bu aktivitenin propolis örneklerinin ekstraksiyon yöntemine ve matris kaynağına bağlı olduğunu belirtmişlerdir.

Soltani ve ark. (2017), Cezayir'in farklı (Babor, Setif, Ain-Abbassa ve Boutaleb) bölge propolis örneklerinin etanolik ve sulu ekstraktlarının; kimyasal bileşenleri ile antibakteriyel aktiviteleri arasındaki farklılıkları incelemişlerdir. Propolis ekstraktları, % 70 saflıktaki etanol ve su içerisinde çözündürülerek ayrı ayrı hazırlandığını ifade etmişlerdir. Propolis ekstraktlarının bileşen analizlerinin GC/MS ile gerçekleştirildiğini ve propolis ekstraktlarının antimikrobiyal aktivitesinin, bakteriyel büyüme eğrileri üzerindeki etkilerinin değerlendirilmesiyle belirlendiğini ifade etmişlerdir. Etanolik ekstraktlarda sulu ekstraktlara göre daha fazla bileşen tespit edildiği bildirilmiştir. Altı ekstrakt içerisinde (Babor, Setif ve Ain-Abbassa bölgesinin etanolik ve sulu ekstraktları) yaygın olarak butandioik asit, sinnamik asit, benzoik asit, sinnamat ve bunların türevleri bulunmuştur. Bununla birlikte, sinnamik asit ve benzoik asitin ise sadece Boutaleb bölgesi sulu ekstraktında bulunduğunu ifade etmişlerdir. Araştırmacılar çalışma sonucunda; propolislerin içerdikleri farklı bileşenlerden dolayı tüm ekstraktların farklı biyolojik özellikler sergilediğini bildirmişlerdir.

Noureddine ve ark. (2017), Lübnan propolisinin kimyasal karakterizasyonu üzerine yaptıkları çalışmalarında, Lübnan'ın güneyinden toplanan 43 g yeşilimsi propolisi 50 ml % 70 etanol ile ekstrakte etmişlerdir. Araştırmacılar, çalışmalarında kimyasal analiz ile Lübnan propolisinde bol miktarda galangin, karysin, pinocembrin ve ferulik asit bulunduğunu belirlemişlerdir. Araştırmacılar Galangin'in' antikanser aktiviteye aracılık ettiğini saptamışlardır.

Cuesta-Rubio ve ark. (2017), Ekvador'da bulunan Quito, Guayaquil ve Cotacachi bölgelerindeki büyük biyolojik çeşitlilik ve iklim bölgeleri göz önüne alınarak propolis kimyasal profilleri üzerine araştırma yapmışlardır. Kimyasal profil analizleri GC/MS ve TLC ile gerçekleştirildiği bildirilmiştir. Araştırmacılar çalışmalarında Cotacachi bölgesi propolis örneğinden metanol ile çözünür fraksiyonundan dört flavanon türevi içeren altı flavonoid bileşiğinin saflaştırdıklarını bildirmişlerdir. Aynı çalışmada, birçoğu farklı coğrafi kökenlere ait olan propolis örneklerinin ortak bileşenlere sahip olduğunu ve

bunların şekerler (glikoz, galaktoz), alkoller (gliserin, erythritol) ile karboksilik asitler (palmitik, oleik ve tetrakosanoik asit) olduğunu bildirmişlerdir. Araştırma sonucunda; Cotacachi propolis örneğinden izole edilen flavonoidlerin hemen hemen hepsinin antimikrobiyal ile antioksidan aktiviteye sahip olduklarını, dolayısıyla gözlenen bu flavonoid ve ilgili bileşiklerin bu antiparazitik aktiviteden sorumlu olabileceğini bildirmişlerdir.

Al-Ghamdi ve ark. (2017), Yemen'deki dört ayrı bölge propolis örneklerinin organik bileşiklerinin kimyasal bileşimlerini ve konsantrasyonlarını belirlemeyi amaçladıkları çalışmalarında; Propolis örneklerinin DCM ve metanol karışımı ile ultrasonik çalkalayıcılar kullanılarak üç kez ekstrakte edildiğini ifade etmişlerdir. Propolislerin, biyolojik ve farmakolojik uygulamalarda doğal biyoaktif bileşiklerin potansiyel kaynağını teşkil ettiklerini vurgulamışlardır.

Neto ve ark. (2017), Brezilya (Pernambuco şehri) kırmızı propolisinin mevsimsel varyasyonları, antibakteriyel aktivitesi ve sinerjik etkilerini incelemişlerdir. Yağışlı mevsim (Nisan-Ağustos) ve kurak mevsim (Aralık-Mart) de toplanan propolis örneklerinin % 54 etanol ile ekstakte edildiği bildirilmiştir. Mikrobiyal analizler MIC metodu ile gerçekleştirilmiştir. HPLC analiz sonuçlarında; mevsimlere bağlı olarak propolis ana bileşenlerinin ve miktarlarının değişkenlik sergilediğini bildirmişlerdir. Bildirilen sonuçlarda; kırmızı propolis örneklerinin *E. Coli* ve *S. Aureus* suşlarına karşı etkili olduğun, *E. Coli* ve *S. Aureus*'a karşı mikrobiyal analiz sonuçlarında mevsimsel değişiklikler saptandığını ifade edilmiştir. Propolis örneklerinin toplanma mevsimine göre antibakteriyel ilaçlarla beraber kullanımında değişken bir sinerjik performansa sahip oldukları bildirilmiştir. Araştırmacılar doğal ürünlerin mevsimsel çeşitliliklerinin keşfedilmesi ve patojen bakteriler üzerinde en etkin olanlarının belirlenmesi gerektiğini vurgulamışlardır.

Todorov ve ark. (2017), EDTA, vankomisin ve propolis ile ilişkili bakteriyosinjenik *Lactobacillus plantarum* ST8SH suşları tarafından üretilen bakteriyosinler kullanılarak *Listeria monocytogenes* biyofilm oluşumunu kontrol etmek için alternatif prosedürlerin değerlendirilmesini amaçladıkları bir çalışma gerçekleştirmişlerdir. Propolis örneğini, piyasada satışa sunulmuş ticari ürün olarak temin etmişlerdir. Vankomisin ve propolisin mikrobiyal etkilerini, MIC yöntemi ile saptamışlardır. Genel olarak, vankomisin ve propolis yüksek konsantrasyonlarının

biyofilm oluřumunu inhibe etmekte daha etkili olduđunu bildirmişlerdir. Arařtırmacılar, gıda iřlemede antimikrobiyal ve kimyasal maddelerin kullanımını azaltmak için mevcut ihtiyacı göz önüne alarak, propolis ve bakteriyosinlerin *L. monocytogenes* biyofilm oluřumuna karřı inhibe edici etkisini arttırmak amaçlı bir alternatif oluřturabileceđini belirtmişlerdir. Buna ek olarak yalnız başına anti-Listeria ajanı ya da bakteriyosin maddeleriyle kombinasyon halinde *L. monocytogenes*'in biyofilm oluřumunu kontrol altına almada, propolisin gerekli alternatif bir adres olarak kullanılabileceđini belirtmişlerdir.



3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Propolis Örneklerinin Temini

Bu çalışmada, Hatay ilinin belirli bölgelerinde yerleşik (sabit) arıcılık faaliyeti sürdüren üreticilerden temin edilen propolisler araştırma materyal olarak kullanılmıştır. Propolis örnekleri Hatay ilinin Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas ve Hassa ilçelerinden 2016 yılı sonbahar (Eylül, Ekim ve Kasım) aylarında yaklaşık 500'er gram şeklinde toplanmıştır. Yerleşik arılıklar ilçelerin mümkün olduğunca sanayi bölgelerinden, yerleşim birimlerinden, asfalt ve yol kenarlarından uzak ve de farklı bitki örtüsüne sahip bölgelerde olmasına dikkat edilerek seçilmiştir. Propolis örneklerinin toplanma yerleri ve Hatay haritasındaki konumlarının GPS koordinatları aşağıdaki gibidir (Şekil 3.1.).

- 1. Örnek Belen ilçesi 36°23'31.54" K/ 36°10' 0.39"D/ Rakım 350 m
- 2. Örnek Yayladağı ilçesi 35°52'22.89" K/ 36°7'53.33" D/ Rakım 600 m
- 3. Örnek Samandağ'ı ilçesi 36°12'58.23" K/ 35°57'12.67" D/ Rakım 420 m
- 4. Örnek Payas ilçesi 36°43'41.97" K/ 36°15'17.43" D/ Rakım 650m
- 5. Örnek Hassa ilçesi 36°44'0.67" K/ 36°28'41.65" D/ Rakım 418m



Şekil 3.1. Toplanan propolis örneklerinin haritadaki konumu ve GPS koordinatları

Toplanan Propolis örnekleri, balırsı kovanlarında herhangi bir propolis toplama tuzaklaması yapılmadan, sadece kovan iç çeperleri ve çıtalarında birikmiş propolislerin kazınması suretiyle elde edilmiştir. Propolis örneklerinin her biri, örnek alma yöntemlerine uygun bir şekilde plastik buzdolabı poşetlerine konularak etiketlenmiş ve 4 saat içerisinde laboratuvara getirilmiştir. Propolis örnekleri analiz edileceği zamana kadar buzdolabında (4 ± 2 °C'de) muhafaza edilmiştir.

3.1.2. Mikroorganizma ve Antibiyotiklerin Temini

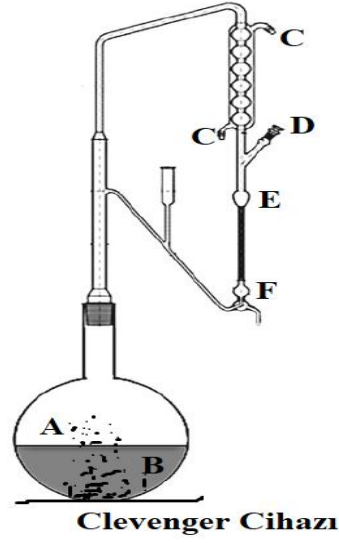
Propolis uçucu yağlarının antimikrobiyal aktivitelerini incelendiği çalışmada kullanılan patojen bakteriler; *Escherichia coli* ATCC25922 Mustafa Kemal Üniversitesi Sağlık Uygulama ve Araştırma Hastanesi mikrobiyoloji laboratuvarından, *Salmonella Entritidis* ATCC29213 Nanolab laboratuvar hizmetleri kimya gıda danışmanlık çevre sanayi ve ticaret limited şirketi/İstanbul firmasından ve *Staphylococcus aureus* ATCC29213 Yüzüncü Yıl Üniversitesi Veterinerlik Fakültesi Besin/gıda Hijyeni ve Teknolojisi Bölüm laboratuvarından temin edilmiştir.

Patojen bakteri analizlerinde kullanılan Rifampin 5 µg (Bioanalyse® Lot:170628E), Penisilin G 10 U (Bioanalyse® Lot:170531B), Vankomisin 30 µg (Bioanalyse® Lot:170502B) vitro duyarlılık antibiyotik diskleri, piyasada faaliyet gösteren üretici firmalardan soğuk zincir ile temin edilmiştir.

3.2. Yöntem

3.2.1. Propolis Uçucu Yağ Ekstraksiyonu

Propolis uçucu yağ ekstraksiyonu Clevenger aparatında su buharı distilasyonu yöntemiyle (Lemos ve ark., 2008; Bahadırılı ve ark., 2016) gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.2.).



Şekil 3.2. Clevenger Cihazı; A) Örnek, B) Su, C) Soğuk su giriş ve çıkışları, D) Yoğunlaşmamış gazlar için havalandırma deliği, E) Ekstrakt biriktirme ünitesi F) Ayırma vanası

Temin ettiğimiz 5 ilçe propolis örneği, parçalama kolaylığı için ekstraksiyon işleminden önce $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar soğutularak dondurulmuş ve ardından tahta tokmak yardımıyla dövülerek ufak parçalara ayrılmıştır. Parçalanmış örneklerin içerisinde bulunan ve gözle görülebilen yabancı cisimler (böcekler, odun parçaları v.b) el ile örneklerden uzaklaştırılmıştır. Toplanan 5 ilçenin propolis örnekleri ayrı ayrı 100 g (Şekil 3.3.) tartılmış ve 2000 ml'lik balona alınarak üzerlerine 1000 ml saf su ilave edilmiştir.



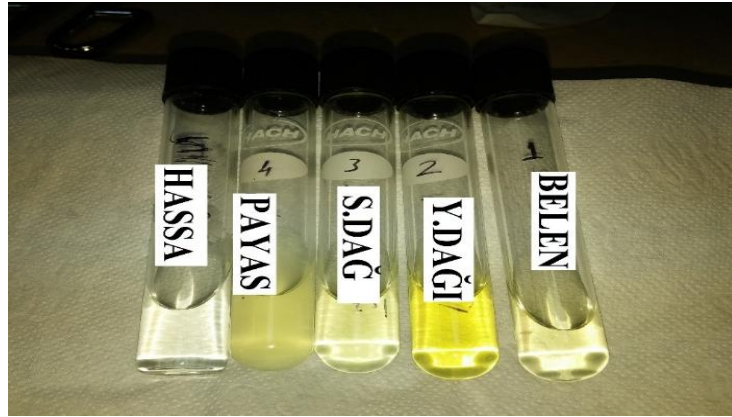
Şekil 3.3. Propolis örneklerinin tartılması; tartılma aşaması (a) ve tartılmış örnekler (b)

Örnekler 6 saat boyunca Clevenger aparatında su buharı distilasyonuna (Şekil 3.4.) tabi tutulmuştur.



Şekil 3.4. Clevenger cihazında hidrodistilasyon işlemi

Clevenger cihazında biriken propolis uçucu yağları cihazdan vana yardımıyla şeffaf tüplere aktarılmıştır (Şekil 3.5.). Ekstraktın aktarılması sırasında clevenger cihazının biriktirme ünitesinin iç çeperlerine tutunan az miktardaki uçucu yağlar biriktirme ünitesine eklenen (Şekil 3.6.) 1.5 mL Dietil eter (Merck, Darmstadt, Germany) yardımıyla aynı yöntemle aynı şeffaf tüplere aktarılması sağlanmıştır. Tüplerde ekstraktlar ile toplanan az miktardaki H₂O'nun kurutulmasında anhydrous Na₂SO₄ (Merck, Darmstadt, Germany) kullanılmıştır.



Şekil 3.5. Şeffaf tüplere aktarılan propolis uçucu yağları



Şekil 3.6. Clevenger cihazı ekstrakt biriktirme üniteleri ve biriken uçucu yağ ekstraktları

Distilasyon sonucunda elde edilen uçucu yağlar analize kadar $-4\text{ }^{\circ}\text{C}$ ' de koyu renkli cam şişelerde muhafaza edilmiştir (Şekil 3.7.).



Şekil 3.7. Propolis uçucu yağ ekstraktları

3.2.2. Gaz Kromatografisi-Kütle Spektrometresi (GC/MS) Analizi

Çalışmada kullanılan propolis örneklerinin uçucu yağları Mustafa Kemal Üniversitesi, Ziraat Fakültesi, Tarla Bitkileri Bölümü Tıbbi ve Aromatik Bitkiler Analiz laboratuvarında Gaz Kromatografisi- Kütle Spektrometresi (Şekil 3.8.) yardımı ile saptanmıştır. Uçucu yağ bileşenleri Thermo Scientific ISQ Single Quadrupole model gaz kromatografi cihazında TGWax MS model, (5% Phenyl Polysilphenylene-siloxane, 0,25 mm iç çap * 30 m uzunlukta, 0.25 µm film kalınlığı) kolon kullanılarak (Bahadırılı ve ark., 2016) belirlenmiştir. İyonizasyon enerjisi 70 eV, kütle aralığı m/z 1,2-1200 amu olarak ayarlanmıştır. Veri toplamada tarama modu (Scan Mode) kullanılmıştır. MS transfer line sıcaklığı 250 °C, MS iyonizasyon sıcaklığı 220 °C, kolon sıcaklığı başlangıçta 50 °C olup 3 °C/dk ısı artış oranı ile 220 °C'ye kadar yükselmiştir. Her bileşiğin yapısı Xcalibur programı ile kütle spektrumları kullanılarak (Wiley 9, Wiley 7, Main Library) tanımlanmıştır.



Şekil 3.8. Gaz Kromatografisi-Kütle Spektrometresi

3.2.3. Propolis Uçucu Yağlarının Mikrobiyolojik Analizi

Propolis uçucu yağlarının mikrobiyolojik analizleri agar disk difzyon yöntemiyle (Aksan Aldanmaz ve Mouhammad, 2017) gerçekleştirilmiştir.

Mueller-Hinton Agar (LABM, LAB039); dehidre besiyeri 38.0 g olacak şekilde 1L distile su içinde tümüyle çözündürülerek, otoklavda 121 °C'de 15 dakika sterilize edilmiş,

yaklaşık 47 °C'ye kadar soğutulduktan steril petri kutularına 15 ml olacak şekilde aktarılmıştır. 37 °C'de 24 saat kontaminasyon kontrolü yapılmıştır.

Whatman® No:1 kurutma kağıdından kesilen diskler 6 mm çapındaki diskler 121°C'de 15 dk steril edildikten sonra üzerine 30µl elde edilen yağ ekstraktlarından yavaş yavaş emdirilmiştir. Taze koloniden 0.5 McFarland (Grant-bio DEN-1B McFarland Densitometer) standart yoğunluğu hazırlanmıştır (Şekil 3.9.). İdeal bulanıklık ayarlandıktan hemen sonra steril pamuk uçlu eküvyon süspansiyona daldırılmış ve fazla sıvıyı uzaklaştırmak için eküvyon tüpün iç duvarında döndürülmüştür. İnokulum plağın yüzeyine, her tarafına sürülerek yayılmıştır. 6 mm çapında kesilerek elde edilen doyana kadar dietil eter ve uçucu yağ emdirilmiş Whatman® No:1 diskler ile antibiyotik standart diskleri vankomisin (30 µg/disk), penisilin G(10 U/disk) ve rifampisin (5 µg/disk) hemen yerleştirilerek, 37 °C'de 18 saat inkübasyona bırakılmıştır. İnkübasyon sonunda zon çapları ölçülüp CLSI 2015 standartlarına göre karşılaştırılarak antibiyotik dirençlilikleri belirlenmiştir (CLSI, 2015). Mikrobiyolojik analizler iki tekerrür olarak gerçekleştirilmiştir.

Mikrobiyal analiz için ilçelere kod numaraları verilmiştir.

İlçelere verilen kodlar;

- 1- Belen
- 2- Yayladağı
- 3- Samandağ
- 4- Payas
- 5- Hassa'dır.



Şekil 3.9. Kolonilerin 0.5 McFarland standart yoğunluğunun hazırlanması

3.2.4. İstatistiksel Deęerlendirme

Arařtırma sonucu elde edilen veriler SPSS 10 paket programı kullanılarak varyans analizine (One-Way ANOVA) gre deęerlendirilmiřtir (SPSS, 2012). nemli ıkan deęerler ise Duncan oklu karřılařtırma testine tabi tutularak elde edilen sonular yorumlanmıřtır ($P<0.01$). İstatistiksel analizler iki tekerrr olarak gerekleřtirilmiřtir.



4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

4.1. Propolis Uçucu Yağ Bileşenleri

Tüm propolis uçucu yağ ekstraktlarının içerikleri terpenler, esterler, alkanlar, aldehitler, ketonlar ve alkoller olarak sınıflandırılmıştır. Bu uçucu yağ kompozisyonlarının tamamı Çizelge 4.1.'de verilmiştir. Propolis uçucu yağ ekstraktlarının GC/MS analiz kromotogramları EK 1. de verilmiştir.

Belen örneği ekstraktında % 2'nin üzerinde belirlenen bileşenler; β -karyofillin (% 13.75), α -pinen (% 12.83), δ -kadinen (% 9.12), sembren (% 9.10), γ -kadinen (% 5.34), junipen (% 4.22), sedrol (% 4.17), dekenal (% 2.56), terpinen-4-ol (% 4.49), ledene (% 2.27), α -muurolene (% 2.2) ve manool (% 2.10) dür.

Yayladağı örneği ekstraktında % 2'nin üzerinde belirlenen bileşenler; sembren (% 22.52), 2-metil-3-buten-2-ol (% 18.24), 2-buten-1-ol, 3-metil- (% 7.92), sedrol (% 5.25), benzaldehit (% 3.61), terpinen-4-ol (% 3.36), sklareol (% 2.53) ve trans-karofilen (% 2.81) dir.

Samandağ örneği ekstraktında % 2'nin üzerinde belirlenen bileşenler; sembren (% 12.87), benzaldehit (% 11.31), β -karyofillin (% 6.48), sinamaldehyt (% 6.24), karyofilen oksit (% 5.12), 3-buten-2-ol, 2-methyl- (% 3.9), pentatriakontan (% 3.68), δ -kadinen (% 3.09), dekenal (% 2.82), 2,5-oktadekadiynoik asit, metil ester (% 2.80), trans-karofilen (% 2.64), asetofenon (% 2.35), doconexent (% 2.34), pentacosan (% 2.09) ve fenilglioksal (% 2.04) dir.

Payas örneği ekstraktında % 2'nin üzerinde belirlenen bileşenler; 3-buten-2-ol, 2-metil- (% 11.63), sembren (% 9.93), hentriakontan (% 5.40), karyofilen oksit (% 4.85), benzil benzoat (% 3.87), 2-buten-1-ol, 3-metil- (% 3.70), sedrol (% 3.49), pentatriakontan (% 3.20), dokosan (% 3.14), 13-epimanool (% 2.93), karvakrol (% 2.35), benzil sinamat (% 2.25), guaiol (% 2.23), δ -kadinen (% 2.21) ve β -eudesmol (% 2.03) dür.

Hassa örneği ekstraktında % 2'nin üzerinde belirlenen bileşenler; sembren (% 47.04), β -karyofillin (% 11.04), benzil sinamat (% 9.30), karyofilen oksit (% 4.31), β -elemen (% 2.87), farnesil aseton (% 2.47) ve δ -kadinen (% 2.35) dir.

Çizelge 4.1. Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması

(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA	(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA
Terpenler						Terpenler					
Sembren	9.1	22.52	12.78	9.93	47.04	α -Cubebene	1.13	-	-	-	0.46
Junipen	4.22	0.72	0.84	1.66	0.23	α -Terpinil asetat	1.25	1.02	-	-	-
δ -kadinen	9.12	1.51	3.09	2.21	2.35	Alloaromadendrene	-	0.36	-	-	0.31
Karyofilen oksit	1.93	0.74	5.12	4.85	4.31	Trans-karyofillin	-	2.18	2.64	-	-
Verbenol	1.37	1.24	0.74	0.97	-	13-Epimanool	-	-	-	2.93	-
Farnesil aseton	0.45	1.96	0.21	-	2.47	Elernol	-	1.37	-	-	-
Ledene	2.27	0.38	-	0.68	0.25	Pinocarveol	-	0.9	-	-	-
Nerolidol	0.46	0.77	-	0.82	0.5	Sabinil asetat	-	-	-	1.56	-
τ -Muurolol	-	0.57	1.12	1.77	0.32	Karvakrol	-	-	-	2.35	-
α -pinen	-	1.75	0.84	1.63	0.55	Linalil asetat	-	-	-	-	0.25
Bornil asetat	0.67	0.7	-	-	0.33	Valensen	-	-	-	-	0.8
Terpinen-4-ol	2.49	3.36	-	1.3	-	α -copaene	1.17	-	1.9	0.66	1.09
Mirtenol	0.48	0.58	-	1.03	-	β -Karyofillin	13.75	-	6.48	1.76	11.4
Sklareol	0.52	2.53	-	0.77	-	α -Pinen	12.83	0.97	-	-	0.83
α -Humulene	1.41	-	0.72	-	0.81	α -Muurolene	2.2	0.58	-	-	0.39
Guaiol	-	0.94	0.53	2.23	-	Sedrol	4.17	5.25	-	3.49	-
β -pinen	1.7	-	-	-	0.23	Geranil aseton	-	0.65	0.66	-	0.57
Linalol	-	0.97	-	1.28	-	Alloaromadendren oksit-(1)	-	-	0.53	0.76	0.55
Calamenene	-	0.44	-	-	0.24	l-Limonen	0.5	-	-	-	0.22
3-karen	0.76	-	-	-	-	Trans-Pinocarveol	0.97	-	-	-	-
β -Bourbonene	0.91	-	-	-	-	Humuladienone	-	-	1.6	-	-
Neroli	0.48	-	-	-	-	β -elemen	-	-	-	0.7	2.87
Spathulenol	0.45	-	-	-	-	Germakrene D	0.78	-	-	-	-
Abietatriene	0.48	-	-	-	-	γ -Kadinen	5.34	-	-	-	-
Manool	2.1	-	-	-	-	Aromadendrenepoksit	-	-	0.94	1	-

Çizelge 4.1. (Devam) Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması

(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA	(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA
Terpenler						Alkanlar					
Farnesol	0.64	-	-	-	-	Dokosan	0.45	0.78	1.42	3.14	1.21
Solanon	-	1.43	-	-	-	Pentatriakontan	0.85	-	3.68	3.2	-
α -Copaen-11-ol	-	-	-	0.83	-	Hentriakontan	-	-	-	5.4	-
α -Cadinol	-	-	-	-	0.88	Dotriakontan	-	-	-	-	0.44
Esterler						Pentacosan	0.97	0.43	2.09	1.71	-
Doconexent	-	-	2.34	-	0.21	Eicosan	-	-	0.51	-	-
2-Feniletıl asetat	-	0.76	-	-	-	Tricosan	-	-	1.89	-	-
2,5-Oktadekadiynoik asit, metil ester	-	-	2.8	-	-	Aromatik asitler					
2- (2-benziloksi-4-metil-sikloheks-3-enil) -propan-2-ol	-	-	-	1.09	-	Etil sinnamat	-	0.55	0.58	-	0.37
5,8,11-Heptadekatriynoik asit, metil ester	-	-	-	1.14	-	Benzil sinnamat	-	-	0.62	2.52	9.3
Dodekanoik asit	-	-	-	1.66	-	β -Eudesmol	-	1.02	-	2.03	-
Falcarinol	-	-	-	-	0.23	Metil sinnamat	-	-	0.62	-	0.25
Dekanoik asit	-	-	-	0.82	-	Ketonlar					
Heksadekanoik asit	-	-	-	-	1.93	Asetofenon	0.67	1.13	2.35	-	-
Aldehitler						Alkoller					
Dekanal	2.56	0.93	2.82	2.72	0.25	Vitamin A alkol	-	-	-	-	0.39
Benzaldehit	1.1	3.61	11.31	11.22	0.37	Sinnamil alkol	-	0.46	0.95	-	-
Sinamaldehit	-	1.95	6.24	0.67	-	Vinilfenilkarbinol	-	0.5	-	-	-
Fenilglioksal	-	-	2.04	-	-	2-metil-3-büten-2-ol	-	18.24	-	-	-
Nonanal	0.94	0.4	0.98	0.7	-	1-Heptatriacotanol	-	-	0.58	1.34	1.09
2-Decenal, (E)-	0.63	-	-	-	-	3-Buten-1-ol, 3-metil-	-	0.91	-	-	-
						Agatadiol	0.46	-	-	-	-

Çizelge 4.1. (Devam) Propolis ekstraktları uçucu yağ kompozisyonlarının ilçelere göre % miktarları ve sınıflandırılması

(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA	(%)	BELEN	Y.DAĞI	S.DAĞ	PAYAS	HASSA
Diğerleri						Diğerleri					
Trisiklo [5.2.2.0 (1.6)] undekan-3-ol, 2-metilen- 6,8,8-trimetil-	0.62	-	-	-	-	2-Buten-1-ol, 3- metil-	-	7.92	1.75	3.7	-
1-Naftalenamin, 4-bromo-	0.55	-	-	-	-	2,7-Dimetil-okta- 2,6-diyen-1-ol	-	0.83	-	0.77	-
Pregnan-18,20-diol, (5a) -	-	0.57	-	-	-	Benzen bütanoik asit, ç-okso-	-	0.43	-	-	0.21
1-Heksen-3-ol, 5-nitro-1- fenil-	-	-	1.28	-	-	Kolestan-3-ol, 2- metilen-	-	-	0.86	0.67	-
Cis-Z-à-Bisabolen epoksit	-	-	0.83	-	-	19-DI- TORULOSOL	0.41	0.36	-	-	-
Metil 10-oktadekenoat	-	-	0.62	-	-	Dokosan, 11-desil-	0.6	0.5	1.04	-	0.51
Trans-Alilsinamat	-	-	0.7	-	-	2- Decenal, (E) -	-	0.57	1.01	-	-
Androstan-17-on, 3-etil-3- hidroksi-	-	-	-	0.64	-	4-Etilguaiacol	-	-	-	-	0.27
7,7-diklorobisiklo [3.2.0] hept-2-en-6-on	-	-	-	0.65	-	Oktaetilen glikol monododesil eter	-	-	0.7	3.78	-
Sikloartanol asetat	-	-	-	0.64	-	Benzil benzoat	-	-	3.93	11.63	-
Humulen epoksit II	-	-	-	-	0.44	3-Buten-2-ol, 2- metil-	-	-	1.11	0.91	0.53
2-Buten, 1,4-diol-1, 4-difenil	-	-	-	-	0.48	Tetrasiklo [6.3.2.0 (2.5) .0 (1.8)] tridekan-9-ol, 4,4- dimetil-					

Propolis örnekleri uçucu yağ ana bileşenlerinin ilçelere göre ortalama değerleri Çizelge 4.1., 4.2., 4.3., 4.4., 4.5., 4.6., 4.7., 4.8., 4.9. da verilmiştir. İncelenen tüm örneklerde belirlenen başlıca bileşenler; sembren, benzaldehit, junipen, δ -kadinen, dekanal, dokosan, karyofilen oksit, nonanal, dokosan, 11-desil-, verbenol, α -terpineol, β -karyofillin, pentacosan, farnesil aseton, ledene, nerolidol, α -copaene, τ -muurolol'dür.

4.1.1. Sembren

Sembren değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir ($P<0.01$).

Çizelge 4.2. Propolis örneklerinin sembren içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	Sembren(%)
Belen	9.1 ^d ±0.1
Yayladağı	22.5 ^b ±0.1
Samandağ	12.85 ^c ±0.1
Payas	9.9 ^d ±0.03
Hassa	47.0 ^a ±0.55

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir ($P<0.01$)

Çizelge 4.2'de görülebileceği gibi sembren değeri en fazla % 47 ile Hassa ilçesinde, en az % 9.1 ile Belen ilçesinde tespit edilmiştir. Sembren'nin incelenen tüm ilçelerde yüksek miktarda olduğu saptanmıştır.

Şahinler ve Kaftanoğlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında; Sembren'i Mersin'de % 13.34, Hatay ve Adana'da ise sembren bileşenini belirleyememişlerdir. Yapılan çalışmada incelenen Hatay ilinin tüm ilçe örneklerinde sembren bileşeni belirlenmiş ve ilgili çalışmanın Mersin örneği ile yapılan çalışmanın sembren (% 9.1±0.1, % 22.5±0.1, % 12.85±0.1, % 9.9±0.03, % 47.0±0.55) değerlerinin benzer özellik gösterdiği saptanmıştır.

Aslan ve ark. (2007), Hatay propolis örneğini % 70 etanol ile ekstrakte ederek, ekstraktların kimyasal bileşimini GC/MS ile inceledikleri çalışmalarında sembren bileşenini belirleyememişlerdir. Yapılan çalışmada ise incelenen örneklerin tümünde yüksek miktarda sembren bileşeni tespit edilmiştir.

4.1.2. Benzaldehit

Benzaldehit deęerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduęu belirlenmiştir ($P<0.01$)

Çizelge 4.3. Propolis örneklerinin benzaldehit içeriğine ilişkin ortalama deęerler

İLÇELER	Benzaldehit (%)
Belen	1.1 ^c ±0
Yayladağı	3.6 ^b ±0.04
Samandağ	11.3 ^a ±0.1
Payas	1.22 ^c ±0.03
Hassa	0.37 ^d ±0

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen deęerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir ($P<0.01$)

Çizelge 4.3.'te görülebileceęi gibi benzaldehit deęeri en fazla % 11.3 ile Samandağ ilçesinde, en az % 0.37 ile Hassa ilçesinde tespit edilmiştir. Benzaldehit bileşeni; Belen ve Payas ilçesinde birbirine yakın miktarda ve aralarında önemli bölgesel farklılığın olmadığı, incelenen dięer ilçelerde birbirlerinden farklı deęerlerde olduęu saptanmıştır.

Duran ve ark. (2011), Hatay ve Bursa propolis örneklerinin bileşenlerini inceledikleri çalışmalarında; Bursa örneęi ekstraktında benzaldehit belirleyememişlerdir. Hatay örneęi ekstraktında ise % 0.07 benzaldehit tespit etmişlerdir. Bu çalışmada benzaldehit bileşeni deęerinin, yapılan çalışma ile elde edilen deęerin(% 1.1±0, % 3.6±0.04, % 11.3±0.1, % 1.22±0.03, % 0.37±0) oldukça altında olduęu belirlenmiştir.

Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölgesinin propolis örneklerinden elde ettikleri esansiyel yağ ekstraktlarının bileşenlerini inceledikleri çalışmalarında; inceledikleri iki bölge ekstraktında % 0.7 ve % 0.2 benzaldehit bileşeni saptamışlardır. Bu çalışma deęerleri; yapılan çalışmanın Hassa örneęi deęeri (% 0.37±0) ile benzerlik gösterirken dięer ilçelerin örnek deęerlerinin (% 3.6±0.04, % 11.3±0.1, % 1.22±0.03, % 0.37±0) altında oldukları tespit edilmiştir.

4.1.3. Junipen

Junipen deęerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduęu belirlenmiştir ($P<0.01$).

Çizelge 4.4. Propolis örneklerinin junipen içeriğine ilişkin ortalama deęerler

İLÇELER	Junipen(%)
Belen	4.22 ^a ±0.1
Yayladaęı	0.7 ^c ±0.01
Samandaę	0.85 ^c ±0.02
Payas	1.65 ^b ±0.04
Hassa	0.23 ^d ±0

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen deęerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir ($P<0.01$)

Çizelge 4.4.'te görülebileceęi gibi junipen deęeri en fazla % 4.22 ile Belen ilçesinde, en az % 0.23 ile Hassa ilçesinde tespit edilmiştir. Junipen'in incelenen Yayladaęı ve Samandaę ilçelerinde birbirine yakın miktarda ve aralarında önemli bölgesel farklılığın olmadığı, dięer ilçelerde ise birbirlerinden farklı deęerlerde bulunduęu saptanmıştır.

Şahinler ve Kaftanoęlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında; junipen bileşenini Hatay ve Adana örneklerinde belirleyememişken, Mersin örneğinde ise % 0.65 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmadaki junipen bileşeni deęeri, yapılan çalışmanın Yayladaęı ve Samandaę'ı ilçelerinin deęerleri (% 0.7±0.01, % 0.85±0.02) ile benzerlik göstermiş, Hassa ilçesi örneğinden (% 0.23±0) fazla, Belen ve Payas ilçelerinden (% 4.22±0.1, % 1.65±0.04) ise düşük miktarda belirlenmiştir.

4.1.4. δ-kadinen

δ-kadinen deęerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduęu belirlenmiştir ($P<0.01$).

Çizelge 4.5. Propolis örneklerinin δ -kadenin içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	δ -kadenin (%)
Belen	9.15 ^a ±0.1
Yayladağı	1.50 ^d ±0.01
Samandağ	3.1 ^b ±0.05
Payas	2.2 ^c ±0.01
Hassa	2.35 ^c ±0.05

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.5.'te görülebileceği gibi δ -kadenin değeri en fazla % 9.15 ile Belen ilçesinde, en az % 1.5 ile Yayladağı ilçesinde tespit edilmiştir. δ -kadenin incelenen Payas ve Hassa ilçe örneklerinde birbirine yakın miktarda ve aralarında önemli bölgesel farklılığın olmadığı, diğer ilçe numunelerinde ise birbirlerinden farklı değerlerde bulunduğu saptanmıştır.

Bankova ve ark. (1995), Güney Amerikanın 4 farklı bölge propolisi ekstraktında inceledikleri uçucu bileşenlerde % 3.3- 0.7 aralığında δ -kadenin tespit etmişlerdir. Bu çalışmadaki değerlerle, yapılan çalışma değerlerinin (% 1.5-9.15 aralığında) benzerlik gösterdiği saptanmıştır.

Bankova ve ark. (1998), Brezilya propolisindeki esansiyel yağların mevsimsel değişimlerini inceledikleri çalışmalarında, δ -kadenin bileşen miktarının mevsimlere ve arı türlerine göre % 0.2-4.9 aralığında değiştiğini belirlemişlerdir. Bu çalışmadaki değerlerin sonbahar ayında inceledikleri örnek değeri dışında, yapılan çalışma ile benzerlik gösterdiği saptanmıştır.

Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölge propolis örneklerinin esansiyel yağlarını inceledikleri çalışmalarında; bir bölge ekstraktında % 2 oranında δ -kadenin bileşeni belirlediklerini bildirmişlerdir. Bu çalışmadaki δ -kadenin değeri; yapılan çalışmanın Yayladağı ilçe örneği değerinden (% 1.50±0.01) yüksek, diğer ilçe örnekleri değerlerinden (% 9.15±0.1, % 3.1±0.05, % 2.2±0.01, % 2.35±0.05) ise düşük olduğu tespit edilmiştir.

4.1.5. Dekanal

Dekanal değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir (P<0.01).

Çizelge 4.6. Propolis örneklerinin Dekanal içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	Dekanal(%)
Belen	2.55 ^a ±0.15
Yayladağı	0.93 ^b ±0.06
Samandağ	2.8 ^a ±0.1
Payas	2.7 ^a ±0.02
Hassa	0.25 ^c ±0.02

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.6.'da görülebileceği gibi dekanal bileşeni değeri en fazla % 2.8 ile Samandağ ilçesinde, en az % 0.25 ile Hassa ilçesinde tespit edilmiştir. Dekanal bileşeninin incelenen Belen, Samandağ, Payas ilçe örneklerinde birbirine yakın miktarda ve aralarında önemli bölgesel farklılığın olmadığı, diğer ilçe numunelerinde ise birbirlerinden farklı değerlerde bulunduğu saptanmıştır.

Şahinler ve Kaftanoğlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında; dekanal bileşenini Hatay örneğinde % 1.05 ve Adana örneğinde ise % 0.26 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışma ile yapılan çalışmanın benzerlik gösterdiği saptanmıştır.

Aslan ve ark. (2007), Hatay bölgesinin propolis örneğini inceledikleri çalışmalarında % 1.05 dekanal bileşeni tespit etmişlerdir. Bu çalışmada bildirilen dekanal değerinin, yapılan çalışmada incelenen Hassa ve Yayladağı (% 0.25±0.02, % 0.93±0.06) ilçe örnek değerlerinden yüksek olduğu, incelenen diğer ilçe örnek değerlerinden (% 2.55±0.15, % 2.8±0.1, % 2.7±0.02) ise küçük olduğu belirlenmiştir.

4.1.6. Dokosan

Dokosan değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir (P<0.01).

Çizelge 4.7. Propolis örneklerinin dokosan içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	Dokosan (%)
Belen	0.45 ^d ±0
Yayladağı	0.75 ^c ±0.03
Samandağ	1.40 ^b ±0
Payas	3.1 ^a ±0.13
Hassa	1.2 ^b ±0.03

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.7.'de görülebileceği gibi dokosan değeri en fazla % 3.1 ile Payas ilçesinde, en az % 0.5 ile Belen ilçesinde tespit edilmiştir. Dokosan bileşeni incelenen Samandağ ve Hassa ilçe örneklerinde birbirine yakın miktarda ve aralarında önemli bölgesel farklılığın olmadığı, tüm ilçelerde farklı miktarda olduğu, diğer ilçe numunelerinde ise birbirlerinden farklı değerlerde bulunduğu saptanmıştır.

Silici ve Kutluca (2005), üç farklı *Apis Mellifera* balansı ırkının benzer kovanlarından topladıkları propolis örneklerinin kimyasal içeriklerini belirledikleri çalışmalarında; bileşenlerden dokosan'nin *Apis mellifera anatolica* örneği ekstraktında % 1.32, *Apis mellifera carnica* örneği ekstraktında % 1.21 olarak belirlendiğini bildirmişlerdir. Bu çalışmanın dokosan değerlerinin, yapılan çalışmanın Hassa ve Samandağ ilçesi örnek değerleri (% 1.2±0.03, % 1.40±0) ile benzerlik gösterdiği saptanmış, incelenen Payas (% 3.1±0.13) ilçe örneği değerinden düşük, Belen ve Yayladağı ilçeleri örnek değerlerinden ise yüksek değerlere sahip olduğu tespit edilmiştir.

4.1.7. Karyofilen oksit

Karyofilen oksit değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir (P<0.01).

Çizelge 4.8. Propolis örneklerinin karyofilen oksit içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	Karyofilen oksit (%)
Belen	1.9 ^d ±0.01
Yayladağı	0.75 ^e ±0.01
Samandağ	5.15 ^a ±0.03
Payas	4.85 ^b ±0.15
Hassa	4.3 ^c ±0.01

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.8.'de görülebileceği gibi karyofilen oksit değeri en fazla % 5.15 ile Samandağ ilçesinde, en az % 0.75 ile Yayladağı ilçesinde tespit edilmiştir. Karyofilen oksit bileşeninin incelenen tüm ilçelerde farklı miktarda olduğu saptanmıştır.

Li ve ark. (2011), Brezilya yeşil propolisinin uçucu yağ bileşenlerini inceledikleri çalışmalarında % 1.29 karyofilen oksit tespit ettiklerini bildirmişlerdir. Bu çalışmanın karyofilen oksit değerinin, yapılan çalışma ile belirlenen Yayladağı ilçesi örnek

değerinden (% 0.75±0.01) yüksek olduğu diğer ilçelerin örnek değerlerinden (% 1.9±0.01, % 5.15±0.03, % 4.85±0.15, % 4.3±0.01) ise düşük olduğu saptanmıştır.

Lemos ve ark. (2008), Brezilya yeşil propolisini inceledikleri çalışmalarında % 1 karyofilen oksit tespit ettiklerini bildirmişlerdir. Bu çalışma değerinin, yapılan çalışmadaki Yayladağı ilçesi örnek değerinden (% 0.75±0.01) yüksek olduğu diğer ilçelerin örnek değerlerinden (% 1.9±0.01, % 5.15±0.03, % 4.85±0.15, % 4.3±0.01) ise düşük olduğu saptanmıştır.

Şahinler ve Kaftanoğlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında karyofilen oksit bileşenini Mersin örneğinde % 2.49, Adana örneğinde % 2.51 olarak belirlemişlerdir. Bu çalışmadaki değerlerinin, yapılan çalışmada incelenen Belen ve Yayladağı (% 1.9±0.01, % 0.75±0.01) ilçe örnek değerlerinden yüksek, incelenen diğer ilçelerin örnek değerlerinden (% 5.15±0.03, % 4.85±0.15, % 4.3±0.01) ise düşük olduğu saptanmıştır. İlgili çalışmada araştırmacıların Hatay ilinde belirleyemedikleri karyofilen oksit bileşenini, yapılan çalışmada Hatay ilinin tüm ilçe örneklerinde tespit edilmiştir.

4.1.8. β -Karyofilen

β -karyofilen değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir (P<0.01).

Çizelge 4.9. Propolis örneklerinin β -karyofilen içeriğine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	β -Karyofilen(%)
Belen	13.75 ^a ±0.05
Yayladağı	-
Samandağ	6.5 ^c ±0.05
Payas	1.75 ^d ±0.05
Hassa	11.0 ^b ±0.08

Aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.9.'da görülebileceği gibi β -karyofilen değeri en fazla % 13.75 ile Belen ilçesinde, en az % 1.75 ile Payas ilçesinde tespit edilmiştir. β -karyofilen bileşenine Yayladağı ilçesi örneğinde rastlanılmamış, incelenen diğer tüm ilçe numunelerinde birbirlerinden farklı miktarda bulunduğu saptanmıştır.

Lemos ve ark. (2008), Brezilya yeşil propolisini inceledikleri çalışmalarında % 13.3 β -karyofilen tespit etmişlerdir. Bu çalışmadaki değerin, yapılan çalışmada incelenen Belen ilçe örneği (% 13.75 \pm 0.05) ile benzerlik gösterdiği, diğer ilçelerin örnek değerlerinden (% 6.5 \pm 0.05, % 1.75 \pm 0.05, % 11.0 \pm 0.08) ise yüksek olduğu belirlenmiştir.

Oliveira ve ark. (2010), Brezilya’da sonbahar ayında toplanan propolis örneği esansiyel yağ içeriğini inceledikleri çalışmalarında β -karyofilen miktarını % 12.69 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmada belirlenen β -karyofilen değerinin, yapılan çalışmada incelenen Belen ilçesi değerinden (% 13.75 \pm 0.05) düşük diğer ilçelerin örnek değerlerinden (% 6.5 \pm 0.05, % 1.75 \pm 0.05, % 11.0 \pm 0.08) ise yüksek olduğu belirlenmiştir.

4.1.9. Diğer Bileşenler

Çizelge 4.10.’da yer alan nonanal, (dokosan, 11-desil)-, verbenol, α -terpineol, pentacosan, farnesil aseton, ledene, nerolidol, α -copaene, τ -muurolol bileşenleri için değerleri bakımından ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olduğu belirlenmiştir (P<0.01).

Farnesil aseton değerleri bakımından ise ilçeler arasındaki farklılıkların istatistiki olarak önemli olmadığı belirlenmiştir (P<0.01).

Çizelge 4.10. Propolis örneklerinin diğer içeriklerine ilişkin ortalama değerler

İLÇELER	Nonanal (%)	Dokosan, 11-desil- (%)	Verbenol (%)	α -Terpineol (%)	Pentacosan (%)
Belen	0.94 ^a \pm 0.25	0.6 ^b \pm 0	1.35 ^b \pm 0.02	-	0.95 ^c \pm 0.02
Yayladağı	0.4 ^c \pm 0	0.5 ^c \pm 0	1.24 ^c \pm 0	1.75 ^a \pm 0.02	0.43 ^d \pm 0.01
Samandağ	0.95 ^a \pm 0.01	1.0 ^a \pm 0.03	0.74 ^d \pm 0.01	0.84 ^c \pm 0.01	2.09 ^a \pm 0.01
Payas	0.7 ^b \pm 0.01	-	1.63 ^a \pm 0.02	1.63 ^b \pm 0.02	1.71 ^b \pm 0.01
Hassa	-	0.5 ^c \pm 0.01	-	0.55 ^d \pm 0	-
İLÇELER	Farnesil aseton (%)	Ledene (%)	Nerolidol (%)	α -Copaene (%)	τ -Muurolol (%)
Belen	0.45 ^a \pm 0.01	2.27 ^a \pm 0.02	0.46 ^c \pm 0	1.15 ^b \pm 0.06	-
Yayladağı	1.95 ^a \pm 0.03	0.38 ^c \pm 0	0.77 ^b \pm 0.01	-	0.55 ^c \pm 0.02
Samandağ	1.21 ^a \pm 0.03	-	-	1.9 ^a \pm 0.01	1.12 ^b \pm 0.1
Payas	-	0.68 ^b \pm 0	0.8 ^a \pm 0.02	0.66 ^c \pm 0.02	1.75 ^a \pm 0.03
Hassa	1.49 ^a \pm 1.01	0.25 ^d \pm 0	0.5 ^c \pm 0	1.1 ^b \pm 0.01	0.3 ^d \pm 0.02

Her bileşen için; aynı sütunda (ilçeler arası) farklı küçük harflerle gösterilen değerler arasındaki fark istatistiksel açıdan önemlidir (P<0.01)

Çizelge 4.10.’da görülebileceği gibi Belen örneği ekstraktında α -terpineol ile τ -muurolol, Yayladağı örneği ekstraktında α -terpineol, Samandağ örneği ekstraktında

dokosan, 11-desil- ile verbenol, Payas örneđi ekstraktında dokosan, 11-desil- ile nonanal, Hassa örneđi ekstraktında nonanal, verbenol ile pentacosane bileşenleri tespit edilememiştir.

Oliveira ve ark. (2010), Brezilya propolis örneđi esansiyel yağ bileşenlerini analiz ettikleri çalışmalarında α -terpineol bileşenini % 1.49 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmadaki değerin, yapılan çalışmada belirlenen Yayladađı ve Payas ilçelerinin örnek değerlerinden (% 1.24 \pm 0, % 1.63 \pm 0.02) düşük olduđu, Samandađ ve Hassa ilçelerinden (% 0.84 \pm 0.01, % 0.55 \pm 0) ise yüksek olduđu belirlenmiştir.

Şahinler ve Kaftanođlu (2005), Hatay, Adana ve Mersin propolislerini inceledikleri çalışmalarında; Mersin örneđi ekstraktında nanonal bileşenini % 0.47 olarak belirlemiş, Hatay ve Adana örneklerinin ekstraktlarında ise nanonal bileşenini belirleyememişlerdir. Bu çalışmadaki değeri, yapılan çalışmada belirlenen Yayladađı örneđi (% 0.4 \pm 0) ile benzerlik göstermiş, Belen, Samandađ ve Payas ilçelerinin örnek değerlerinden (% 0.94 \pm 0.25, % 0.95 \pm 0.01, % 0.7 \pm 0.01) ise düşük olduđu tespit edilmiştir.

Lemos ve ark. (2008), Brezilya yeşil propolisi uçucu yağın kimyasal bileşimlerini inceledikleri çalışmalarında % 4.0 α -copaene tespit ettiklerini bildirmişlerdir. Bu çalışmanın α -copaene değerlerinin, yapılan çalışmada incelenen ilçe örneklerinin değerlerinden (% 1.15 \pm 0.06, % 1.9 \pm 0.01, % 0.66 \pm 0.02, % 1.1 \pm 0.01) yüksek olduđu tespit edilmiştir.

Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölgesi propolis esansiyel yağ bileşenlerini analiz ettikleri çalışmalarında τ -muurolol bileşenini iki bölgede % 0.4 ve % 3.5 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmada bildirilen % 0.4 değeri, yapılan çalışmanın Hassa ilçesi değerinden (% 0.3 \pm 0.02) yüksek Yayladađı, Samandađ ve Payas ilçe örneklerinin değerlerinden (% 1.12 \pm 0.1, % 1.12 \pm 0.1, % 1.75 \pm 0.03) düşük olduđu, yine bu çalışmadaki % 3.5 değeri yapılan çalışmada incelenen ilçe örneklerinin değerlerinden yüksek olduđu belirlenmiştir.

Naik ve ark. (2013), Hindistan propolisi esansiyel yağlarının kimyasal bileşenlerini inceledikleri çalışmalarında pentacosan bileşenini % 1.08 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışma değerinin, yapılan çalışmada belirlenen Samandađ ve Payas ilçe örneklerinin değerlerinden (% 2.09 \pm 0.01, % 1.71 \pm 0.01) düşük olduđu, incelenen diđer ilçe örnek değerlerinden (% 0.95 \pm 0.02, % 0.43 \pm 0.01) ise yüksek olduđu belirlenmiştir.

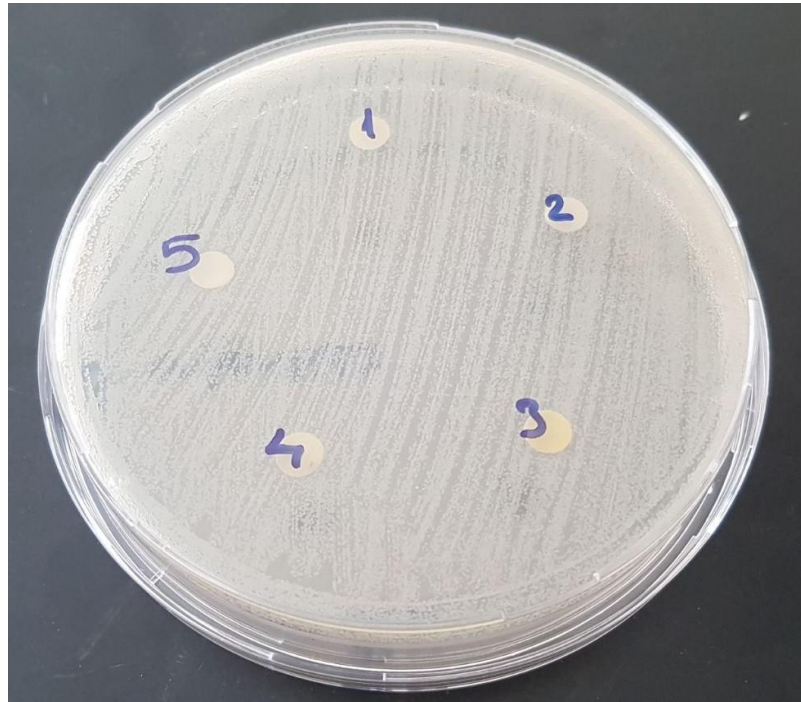
Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölgesinin esansiyel yağ bileşenlerinin GC/MS ile analiz ettikleri çalışmalarında verbenol bileşenini iki bölge de % 3.1 ve % 1.4 olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmadaki verbenol % 1.4 değeri, yapılan çalışma ile benzerlik göstermiş ve % 3.1 değeri ise incelenen tüm ilçe örneklerinin değerlerinden (% 1.35 ± 0.02 , % 1.24 ± 0 , % 0.74 ± 0.01 , % 1.63 ± 0.02) yüksek olduğu saptanmıştır.

4.2. Propolis Uçucu Yağlarının Mikrobiyolojik Etkileri

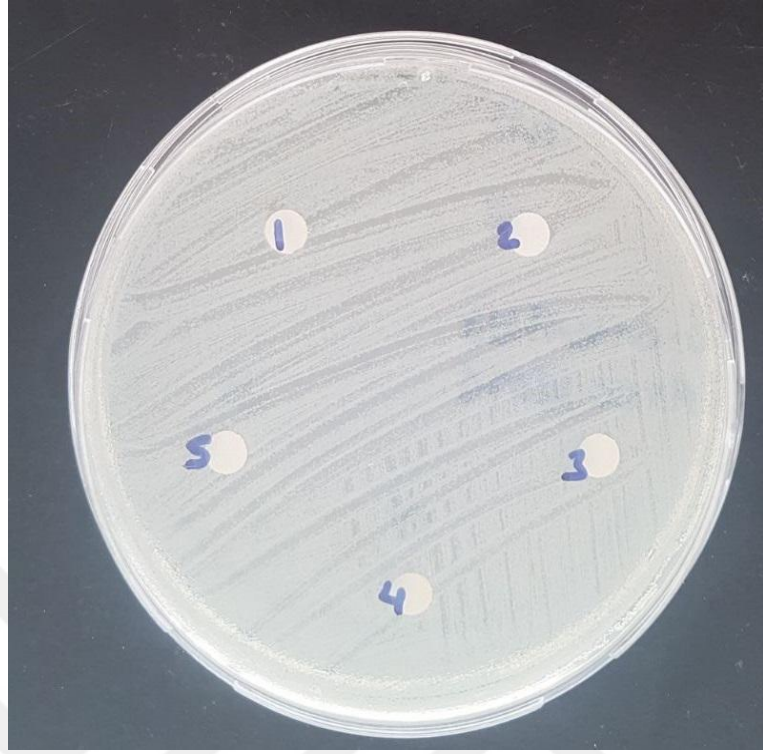
İncelenen beş ilçe propolis uçucu yağ ekstraktlarının antibiyotiklere göre tespit edilen inhibisyon zon çapları Çizelge 4.11.'de verilmiştir.

Yapılan çalışmada incelenen Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas, Hassa ilçeleri propolis uçucu yağ ekstraktlarının *E. Coli* ATCC 25922 (Şekil 4.1.), *Salmonella E.* ATCC 13076 (Şekil 4.2.) besi yerlerinde inhibisyon zon çapı oluşturmadığı tespit edilmiştir.

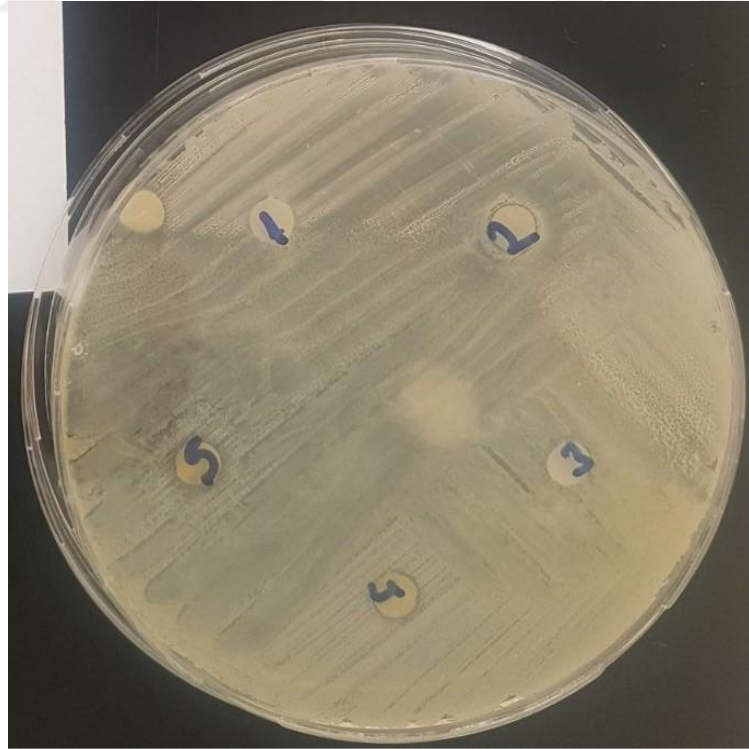
CLSI standardına göre; Belen, Samandağ, Payas ilçeleri propolis uçucu yağ ekstraktlarının *S. Aureus* ATCC 29213 besi yerlerinde inhibisyon zon çapı oluşturmadığı, Yayladağı ve Hassa ilçeleri propolis uçucu yağ ekstraktlarının ise 6 mm çapında inhibisyon zon çapı oluşturduğu belirlenmiştir (Şekil 4.3.).



Şekil 4.1. Propolis uçucu yağ ekstraktlarının *E. Coli* ATCC 25922 üzerindeki etkileri



Şekil 4.2. Propolis uçucu yağ ekstraktlarının *S. Entritidis* ATCC13076 üzerindeki etkileri



Şekil 4.3. Propolis uçucu yağ ekstraktlarının *S. Aureus* ATCC 29213 üzerindeki etkileri

Çizelge 4.11. İncelenen Hatay propolis ekstraktları ve antibiyotiklerden tespit edilen inhibisyon zon çapları

		1- BELEN 30 µL/disk	2- YAYLADAĞI 30 µL/disk	3- SAMANDAĞ 30 µL/disk	4- PAYAS 30 µL/disk	5- HASSA 30 µL/disk	Vankomisin (30 µg/disk)	Penisilin G (10 U/ disk)	Rifampisin (5 µg/ disk)	Dietil eter (E) 30 µL/disk
<i>S. Aureus</i> ATCC29213	1.Analiz	-	6 mm	-	-	6 mm	12 mm	21 mm	30 mm	-
	2.Analiz	-	6 mm	-	-	6 mm	16 mm	18 mm	17 mm	-
<i>E. Coli</i> ATCC25922	1.Analiz	-	-	-	-	-	-	9 mm	11 mm	-
	2.Analiz	-	-	-	-	-	-	13 mm	11 mm	-
<i>Salmonella E.</i> ATCC13076	1.Analiz	-	-	-	-	-	-	18 mm	8 mm	-
	2.Analiz	-	-	-	-	-	-	20 mm	7 mm	-

Çizelgede "-" ile belirtilen analizlerde zon çapı tespit edilememiştir

Mikrobiyal analizlerde antibiyotik disk difüzyon metodu ile oluşan inhibisyon zon çapları (Şekil 4.4.) Çizelge 4.12. de belirtilen sınır değerleri üzerinden değerlendirilmiştir.

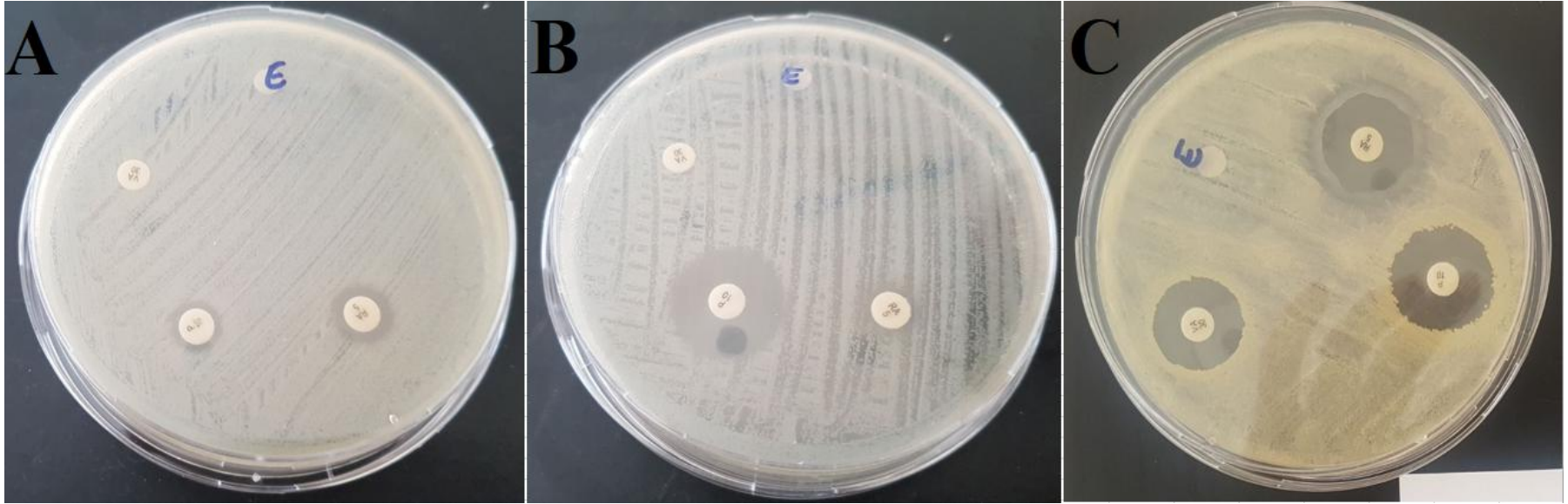
Çizelge 4.12. CLSI dokümanlarına göre antibiyotiklerin patojen bakterilere karşı sınır değerleri (CLSI, 2015)

Antimikrobiyal Ajanlar	Disk İçeriği	Zon çapı sınır değerleri (mm)			Patojen Bakteriler
		S	I	R	
Vankomisin	30 µg/disk	≥17	15-16	≤14	<i>S. Aureus</i> ATCC 29213
Penislin G	10 U/ disk	≥15	-	≤14	
Rifampisin	5 µg/ disc	≥20	17-19	≤16	
Penisilin G	10 U/ disk	≥17	14-16	≤13	<i>E. Coli</i> ATCC 25922 <i>Salmonella E.</i> ATCC 13076

Zon çapı sınır değerlerini S: Susceptible-Duyarlı, I: Intermediate -Orta Düzey, R: Resistant-Dayanıklı olarak ifade eder

Araştırma sonuçlarında; *E. Coli* ATCC 25922 ve *S. Entritidis* ATCC 13076'ın, Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas ve Hassa ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktlarına karşı dayanıklı (R) olduğu, aynı şekilde *S. Aureus* ATCC 29213 ün de, Belen, Samandağ, Payas, Yayladağı, Hassa ilçeleri propolis uçucu yağ ekstraktlarına göre dayanıklı (R) olduğu belirlenmiştir. Yayladağı ve Hassa propolis uçucu yağlarında belirlenen inhibisyon zon çapları, uçucu yağların antimikrobiyal ajanlara göre antimikrobiyal etkisi duyarlı ya da orta düzey etkili olarak belirlenememiştir.

Dıđrak ve ark. (1995), çalışmalarında; *E. coli*'ye karşı inhibisyon zonları tespit edilmediğini, *S. Aureus*'a karşı 7 ile 20 mm arasında deđişen inhibisyon zonu tespit edildiğini belirtmişlerdir. *E. Coli* bulguları açısından bu çalışma yapılan çalışmanın bulgularıyla benzerlik göstermiştir. Ancak *S.Aureus* bakterisinin bu çalışmada incelenen propolis ekstraktlarına duyarlı olduğu, yapılan çalışmada ise incelenen propolis ekstraktlarına karşı duyarlı olmadığı tespit edilmiştir.



Şekil 4.4. Mikrobiyal analizlerde antibiyotik disk difüzyon metodu ile oluşan inhibisyon zon çapları; (A) *E. Coli* ATCC 25922, (B) *S. Enteritidis* ATCC13076, (C) *S. aureus* ATCC 29213

Bankova ve ark. (1995), Güney Amerika propolisi üzerine yaptıkları çalışmalarında uçucu bileşenlerin *Staphylococcus aureus* 209 üzerindeki antibakteriyel etkisini incelemiş ve 11 ile 13 mm aralığında inhibisyon zon çapları belirlediklerini bildirmişlerdir. Bu çalışmada incelenen *Staphylococcus aureus* 209 bakterisinin propolis ekstraktlarına karşı dirençli olmadığı, yapılan çalışmada ise *Staphylococcus aureus* bakterisinin incelenen propolis ekstraktlarına karşı dirençli olduğu belirlenmiştir.

Tosi ve ark. (1996), Farklı solventler ile hazırladıkları propolis ekstraktlarının antimikrobiyal aktivitelerini inceledikleri çalışmalarında; propolis ekstraktlarının *Staphylococcus aureus*'a karşı 15 ile 30 mm arasında değişen inhibisyon zon çapı oluşturduğunu, *Escherichia coli*'ye karşı ise 6 ile 15 mm aralığında inhibisyon zon çapı oluşturduğunu bildirmişlerdir. İncelenen patojen bakterilerin; bu çalışmadaki propolis ekstraktlarına karşı dirençli olmadıkları, yapılan çalışmada ise incelenen propolis ekstraktlarına karşı dirençli oldukları belirlenmiştir.

Bankova ve ark. (1999), üç farklı Brezilya bölgesi propolis örnekleri esansiyel yağlarının antibakteriyel aktivitelerini incelemişlerdir. *Staphylococcus aureus*'a karşı 8 ile 10 mm arasında inhibisyon zon çapı belirlediklerini ve *Escherichia coli*'ye karşı zon çapı tespit edemediklerini belirtmişlerdir. Bu çalışma ile yapılan çalışmanın *Escherichia coli* sonuçlarının benzer olduğu saptanmıştır. Bu çalışmada incelenen propolis örnekleri *Staphylococcus aureus*'a karşı zayıf aktiflik göstermiş, yapılan çalışmada incelenen Hassa ve Yayladağı propolis uçucu yağ ekstraktlarının ise ihmal edilebilir inhibisyon zon çapları oluşturdukları belirlenmiş, Belen, Samandağ ve Payas ekstraktlarında ise inhibisyon zon çapı oluşturmadıkları tespit edilmiştir.

Kujungiev ve ark. (1999), Farklı coğrafi bölgelerden temin ettikleri propolis örneklerinin etanolik ekstraktlarının antibakteriyel etkilerini inceledikleri çalışmalarında *Staphylococcus aureus* 209'a karşı oluşan inhibisyon çapları bölgelere göre farklılık göstermiş ve sadece bir bölge örneği için $4 >$ mm, geriye kalan örneklerde ise en fazla 23 ± 1.3 mm, en az 11.2 ± 0.3 mm aralığında değişen inhibisyon çapları belirlediklerini bildirmişlerdir. Bu çalışmada belirlenen $4 >$ mm değeri yapılan çalışmada incelenen Hassa ve Yayladağı örnekleri ile benzerlik göstermiştir. Bu çalışmanın antibakteriyel etkinliğinin yapılan çalışmanın antibakteriyel etkinliğinden yüksek olduğu saptanmıştır.

Buriol ve ark. (2009), Propolis örneklerinin yemeklik yağ ve etanol ile hazırlanan ekstraksiyonlarının biyolojik aktivitelerini incelemişlerdir. Tüm propolis ekstraktlarının

Staphylococcus aureus 'a karşı aktif olduğunu, yemeklik yağ ekstraktının inhibisyon zon çapının 8.05 ± 0.57 mm olarak saptandığını, ancak *E. coli*, *Salmonella tiphimurium*'a karşı inhibisyon zon çapı belirleyemediklerini belirtmişlerdir. Bu çalışmanın *E. coli* ve *S. tiphimurium* bulgularının yapılan çalışma bulguları ile benzer olduğu saptanmıştır. Bu çalışmada propolis yemeklik yağ ekstraktı *S. aureus* 'a karşı zayıf antibakteriyel aktivite göstermiş, yapılan çalışmada incelenen Hassa ve Yayladağı örnekleri ile benzer antibakteriyel aktivite gösterdiği saptanmıştır.

Oliveira ve ark. (2010), Brezilya Rio de Janeiro şehrinde sonbahar ayında (Temmuz) temin ettikleri propolis örneklerinden ekstrakte ettikleri uçucu yağların antibakteriyel aktivitelerini incelemişlerdir. Propolis uçucu yağı, *S. Aureus* (14 mm zon çapı), ve *E. coli*'ye (17 mm zon çapı) karşı antibakteriyel etki göstermiştir. Bu çalışmada; patojen bakterilerin incelenen propolis ekstraktlarına karşı direnç göstermedikleri belirlenmiş, yapılan çalışmada ise incelenen propolis uçucu yağ ekstraktlarına karşı dirençli oldukları belirlenmiştir.

Graikou ve ark. (2015), Yunanistan, Yunan adaları, Kıbrıs, Hırvatistan ve Cezayir'de seçilen 32 Akdeniz propolis ekstraktının aktivitelerini tespit etmişlerdir. Araştırmacılar çalışmaları sonucunda; 32 propolis örneği için inhibisyon zon çaplarının *S. aureus* için 11 mm ile 23 mm aralığında değişkenlik gösterdiğini, *E. coli* için ise inhibisyon zon çaplarının 10 mm ile 19 mm aralığında olduğunu bildirmişlerdir. Bu çalışmada; patojen bakterilerin incelenen propolis ekstraktlarına karşı direnç göstermediği belirlenmiş, yapılan çalışmada ise incelenen propolis ekstraktlarına karşı dirençli oldukları belirlenmiştir.

5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER

Hatay ilinin Belen, Yayladağı, Samandağ, Payas, Hassa ilçelerinde yerleşik olarak arıcılık yapan arıcılardan temin edilen propolis örneklerinin su buharı distilasyonu ile ekstrakte edilen uçucu yağlarının kompozisyonları belirlenerek genel sınıflandırılması yapılmıştır. Bu uçucu yağların patojen bakteriler üzerindeki etkileri belirlenmiştir. Elde edilen sonuçların yayınlanmış diğer literatür karşılaştırılması yapılmıştır. Elde edilen araştırma bulgular aşağıda özet olarak verilmiştir.

Propolis örneklerinden elde edilen uçucu yağların bileşen türü ve miktarlarının temin edildiği ilçelere bağlı olarak farklılıklar gösterdiği, belirlenen bileşenlerden ise sembren, benzaldehit, junipen, δ -kadinen, dekanal, dokosan, karyofilen oksit'in incelenen tüm propolis örneklerinde bulunduğu belirlenmiştir.

Belen propolis örneği ekstraktı başlıca bileşenleri; β -karyofillin (% 13.75), α -pinen (% 12.83), δ -kadinen (% 9.12), sembren (% 9.10) olarak saptanmıştır.

Yayladağı propolis örneği ekstraktı başlıca bileşenleri; sembren (% 22.52), 2-metil-3-buten-2-ol (% 18.24), 2-buten-1-ol, 3-metil- (% 7.92) olarak saptanmıştır.

Samandağ propolis örneği ekstraktı başlıca bileşenleri; sembren (% 12.87), benzaldehit (% 11.31), β -karyofillin (% 6.48), sinamaldehit (% 6.24) olarak saptanmıştır.

Payas propolis örneği ekstraktı başlıca bileşenleri; 3-buten-2-ol, 2-metil- (% 11.63), sembren (% 9.93), hentriakontan (% 5.40) olarak saptanmıştır.

Hassa propolis örneği ekstraktı başlıca bileşenleri; sembren (% 47.04), β -karyofillin (% 11.04), benzil sinamat (% 9.30) olarak saptanmıştır.

Araştırmada incelenen propolis uçucu yağ ekstraktlarının ana bileşenleri; toplandığı ilçelere göre istatistiksel açıdan önemli farklılıklar göstermiştir.

Araştırmada elde edilen uçucu yağ ekstraktlarının mikrobiyal analizlerinde yalnız Yayladağı ve Hassa ilçelerinde *S. Aureus* 'a karşı 6 mm inhibisyon zon çapı belirlenmiş, diğer ilçelerde ise *Staphylococcus aureus*, *Escherichia coli*, *Salmonella Entritidis* 'e karşı inhibisyon zon çapı belirlenememiştir. Araştırmada; incelenen patojen bakterilerin incelen propolis yağ ekstraktlarına karşı dayanıklı (R) oldukları saptanmıştır.

Araştırmada elde edilen bulgular doğrultusunda uygulamaya yönelik olarak aşağıdaki önerileri yapmak mümkündür;

Hatay propolis örneklerinin uçucu yağ bileşenleri arıcılığın yapıldığı bölgenin yükseltisi, bitki örtüsü ve iklim şartlarına göre değişiklik gösterebileceğinden dolayı Hatay ilinde daha kapsamlı çalışmaların yapılmasına devam edilmelidir.

Hassa ilçesinde yüksek oranda belirlenen sembren gibi ana bileşenlerin varlığı; propolis üreticilerinin üretim yeri seçiminde daha isabetli tercihler yapabilmelerine ve sektöre uygun içeriğe sahip propolis üretmelerine olanak sağlayabilir.

Propolis uçucu yağ ekstraksiyonunda farklı yöntemler ve solventlerin kullanılması; açığa çıkacak bileşenler ile bileşen miktarlarını etkileyebileceği gibi mikrobiyal aktiviteyi de etkileyebileceği için propolisin farklı ekstraksiyonlarına yönelik araştırmaların yapılması önerilmektedir.

Mikrobiyal analizlerde kullanılan propolis ekstrakt miktarı artırılarak daha yüksek inhibisyon zon çapları elde edilebilir.

Ayrıca konuyla ilgili sınırlı sayıda çalışma olmasından dolayı literatüre katkı sağlayacak ve bundan sonra gerçekleştirilecek çalışmalara yol gösterecektir. Hatay propolisi konusunda incelenen ilçe sayısının artırılması, farklı patojen bakteriler üzerindeki etkilerinin araştırılması, mevsimlere göre detaylı incelenmesi ve Hatay propolis uçucu yağ karakterizasyonunun tamamlanması, piyasa taleplerine uygun standartlarda propolis üretimine katkı sağlayacaktır.

6. KAYNAKLAR

- Aslan, A., Atik, E., Polat, G., Sahinler, N., Besirov, E., Aban, N., and Parsak, C.K., 2007. Effectiveness of Mesalamine and Propolis in Experimental Colitis. **Advances in Therapy**, 24(5), 1085-1097
- Ahn, M.R., Kumazawa, S., Hamasaka, T., Bang, K.S. and Nakayama T., 2004. Antioxidant Activity and Constituents of Propolis Collected in Various Areas of Korea. **Journal of Agricultural and Food Chemistry**, 52, 7286-7992
- Al-Ghamdi, A., Bayaqoob, N.I.M., Rushdi, A.I., Alattal, Y., Simoneit, B.R.T., El-Mubarak, A.H., Al-Mutlaq K.F., 2017. Chemical Compositions and Characteristics of Organic Compounds in Propolis from Yemen. **Saudi Journal of Biological Sciences**, 24, 1094–1103 <http://dx.doi.org/10.1016/j.sjbs.2016.12.012>
- Al-Lihaibi, S.S., Alarif, W.M., Lateef, A.A., Ayyad, S.N., Abdel-Naim, A.B., El-Senduny, F.E., and Badria, F.A., 2014. Three New Cembranoid-type Diterpenes from Red Sea Soft Coral *Sarcophyton glaucum*: Isolation and Antiproliferative Activity Against HepG2 cells, **Eur. J. Med. Chem.** 81, 314-322
- Aksan Aldanmaz, E., Mouhammad, F., 2017. Investigation of Yeast Microflora in Various Traditional Foods and Investigation of Some Technological Properties of These Yeast, II. International Conference; The West of The East, The East of The West , **Prizren Uksin Hoti University**, 4-6 July, Prague, Czechia.
- Bonvehi, J., Coll, V., 1995. Study on Propolis Quality from China and Uruguay, **Z.Naturforsch**, 55c, 778, 26: 83-99.
- Bankova, V., Christov, R., Kjumgiev, A., Marcucci, M, V. and Popov, S., 1995. Chemical Composition and Antibacterial Activity of Brazillian Propolis. **Z. Naturforsch**, 50c, 167- 171, Bulgaria
- Bankova, V., Boudourova-Krasteva, G., Popov, S., Sforcin, J.M. and Cunha Funari, S.R. 1998. Seasonal Variations in Essential Oil from Brazilian Propolis. **Journal of Essential Oil Research**, 10:6, 693-696 <http://dx.doi.org/10.1080/10412905.1998.9701012>
- Bankova, V., Christov, R., Popov, S., Marcucci, M.C., Tsvetkova, I., and Kujumgiev, A., 1999. Antibacterial Activity of Essential Oils from Brazilian Propolis. **Fitoterapia**, 70, 190-193
- Buriol, L., Finger, D., Schmidt, E.M., Santos, J.M.T., Rosa, M.R., Quináia, S., Torres, Y.R., Santa, H.S.D., Pessoa, C., Moraes, M.O., Costa-Lotufo, L.V., Ferreira. P.M.P., Sawaya, A.C.H.F., Eberlin, M.N., 2009. Composição Química e Atividade Biológica de um Extrato Oleoso de Propolis: uma Alternativa ao Extrato Etanólico. **Quim Nova**. 32: 296-302.
- Bahadırılı, N.P., Türkmen, M. ve Mert A., 2016. Hatay Koşullarında Yetiştirilen Aşotu (*Coriandrum sativum* L.) Bitkisinin Yaş Herba ve Tohum Uçucu Yağ Oranlarının ve İçeriklerinin Belirlenmesi, **Biyoloji Bilimleri Araştırma Dergisi**. 9(2):20-22
- Cuesta-Rubio, O., Fernández, M.C., Hernández, I.M., Jaramillo, C.G.J., González, V.G., De Oca Porto, R.M., Delange, D.M., Fidalgo, L.M., Piccinelli, A.L., Campone, L., Rastrelli, L., 2017. Chemical Profile and Antileishmanial Activity of three Ecuadorian Propolis Samples from Quito, Guayaquil and Cotacachi Regions. **Fitoterapia**, 120, 177–183 <http://dx.doi.org/10.1016/j.fitote.2017.06.016>

- CLSI, 2015. M100-S25 Performance Standards for Antimicrobial Susceptibility Testing; Twenty- Fifth Informational Supplement, **Clinical and Laboratory Standards Institute**, January, 1-240
- Crane, E., 1999. History of Other Pucts from Bees. In: The World History of Beekeeping and Honey Hunting, **Gerald Duckworth and Co Ltd, London**, 545-553.
- Duran, N., Muz, M., Culha, G., Duran, G. ve Ozer, B., 2011. GC/MS Analysis and Antileishmanial Activities of Two Turkish Propolis Types, **Parasitology Research**, 108: 95–105
- Dıđrak, M., Yılmaz, Ö., Çelik, S. ve Yıldız, S., 1995. Propolisteki Yağ Asitleri ve Antimikrobiyal Etkisi Üzerinde in Vitro Arařtırmalar. **Gıda**, 20(4) 249-255
- Evren, M., Tekgöler, B., 2011. Uçucu Yağların Antimikrobiyal Özellikleri **Elektronik Mikrobiyoloji Dergisi TR (Eski adı: OrLab On-Line Mikrobiyoloji Dergisi)** Cilt: 09 Sayı: 3 Sayfa: 28-40 www.mikrobiyoloji.org/pdf/702110304.pdf
- Fernandes, F.H., Guterres, Z.R.,Violante, I.M.P., Lopes, T.F.S., Garcez, W.S., and Garcez, F.R., 2015. Evaluation of Mutagenetic and Antimicrobial Properties of Brown Propolis Essential Oil from the Brazilian Cerrado Biome. **Elsevier/ Toxicology Reports**, 2, 1482-1488 <https://doi.org/10.1016/j.toxrep.2015.11.007>
- Ghisalberti, E.L., 1979. Propolis: A review. **Bee World**, 60, 59-84
- Genç, F., ve Dodolođlu A., 2002. Arıcılıđın Temel Esasları. **Atatürk Üniversitesi Ziraat Fakültesi., Ders Yayınları** No:166, 338s, Erzurum
- Genç, F., ve Dodolođlu, A. 2011. Arıcılıđın Temel Esasları. **Atatürk Üniversitesi Yayınları** No: 931. Ziraat Fakültesi Yayın No: 341 Erzurum
- Grange, J.M. and Davey, R.W., 1990. Antibacterial Properties of Propolis. **Journal of the Royal Society of Medicine**, 83 (3), 159-160
- Graikou, K., Popova, M., Gortzi, O., Bankova, V. and Chinou, I., 2015 Characterization And Biological Evaluation Of Selected Mediterranean Propolis Samples. Is it a new Type?, **LWT - Food Science and Technology**, <https://doi:10.1016/j.lwt.2015.08.025>
- Inui, S., Hatano, A., Yoshino, M., Hosoya, T., Shimamura, Y., Masuda, S., Ahn,M-R., Tazawa, S., Araki, Y., & Kumazawa, S., (2014) Identification of the Phenolic Compounds Contributing to Antibacterial Activity in Ethanol Extracts of Brazilian Red Propolis, **Natural Product Research: Formerly Natural Product Letters**, 28:16, 1293-1296, DOI: [10.1080/14786419.2014.898146](https://doi.org/10.1080/14786419.2014.898146)
- Kujumgiev, A., Tsvetkovs, I., Serkedjieva, Yu., Bankova, V., Christov, R. and Popov, S., 1999. Antibacterial, Antifungal and Antiviral Activity of Propolis of Different Geographic Orgin. **Journal of Ethnopharmacology**, 64, 235-240
- Kumova, U., Korkmaz, A., Avcı B.C. ve Ceyran, G., 2002. Önemli bir arı Ürünü: Propolis. **Uludağ Arıcılık Dergisi.**, 2(2), 10-24
- Lotfy, M., 2006. Biological activity of bee propolis in health and disease, **The Asian Pacific Journal of Cancer Prevention**, 7, 22-31.
- Lemos, T.L.G., De Albuquerque, I. L., Alves, L.A., Dorneles, C.A. and De Morais, M.O., 2008. Constituents of the Essential Oil of Brazilian Green Propolis from Brazil. **Journal of Essential Oil Research**, 20:5, 414-415 <http://dx.doi.org/10.1080/10412905.2008.9700044>
- Li, Y-J., Xuan, H-Z, Shou, Q-Y, Zhan, Z-G., Lu, X. and Hu, F-L., 2011. Therapeutic Effects of Propolis Essential oil on Anxiety of Restraint-Stressed Mice. **Human**

- & **Experimental Toxicology**, 31(2), 157–165.
<http://het.sagepub.com/content/31/2/157>
- Mohammadzadeh, S., Shariatpanahi, M., Hamedi, M., Ahmadkhaniha, R., Samadi, N. ve Ostad, S.N., 2007. Chemical Composition, Oral Toxicity and Antimicrobial Activity of Iranian Propolis. **Food Chemistry**. 103(4), 1097-1103.
<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2006.10.006>
- Menezes, H., Bacci Jr, H., Olivera, SD. and Pagnocca, FC., 1997. Antibacterial Properties of Propolis and Products Containing Propolis from Brazil. **Elsevier/ Apidologie**, 28, 71-76
- Monzote, L., Rubio, O.C., Fernandez, M.C., Hernandez, I.M., Farga, J., Perez, K., Kerstens, M., Maes, L., and Cos, P., 2012. In vitro Antimicrobial Assessment of Cuban Propolis Extracts. **Mem Inst Oswaldo Cruz, Rio de Janeiro**, Vol. 107(8): 978-984
- Machado, B.A.S., Silva, R.P.D., Barreto, Gd.A., Costa, S.S., Silva, D.Fd., Brandão, H.N., et al. 2016 Chemical Composition and Biological Activity of Extracts Obtained by Supercritical Extraction and Ethanolic Extraction of Brown, Green and Red Propolis Derived from Different Geographic Regions in Brazil. **PLoS ONE** 11(1): e0145954. [doi:10.1371/journal.pone.0145954](https://doi.org/10.1371/journal.pone.0145954)
- Naik, D.G., Valdyia. H.S. and Namjoshi, T.P., 2013. Essential Oil of Indian Propolis: Chemical Composition and Repellency against the Honeybee Apis florea. **Chemistry & Biodiversity**, 10, 649-657
- Naves, M.V.M., Silva, T.M.S., Lima, E.O., Cunha, E.V.L., and Oliveira, E.J., 2016. Isoflavone Formononetin from Red Propolis Acts as a Fungicide Against Candida sp. **Brazilian Journal of Microbiology**, 47, 159-166
<http://dx.doi.org/10.1016/j.bjm.2015.11.009>
- Neto, M.S.R., Tintino, S.R., Da Silva, A.R.P., Costa, M.S., Boligo, A.A., Matias, E.F.F., Balbino, V.Q., Menezes, I.R.A. Coutinho, H.D.M., 2017. Seasonal Variation of Brazilian Red Propolis: Antibacterial Activity, Synergistic Effect and Phytochemical Screening. **Food and Chemical Toxicology**, xxx, 1-9
<http://dx.doi.org/10.1016/j.fct.2017.03.052>
- Nouredine, H., Hage-Sleiman, R., Wehbic, B., Fayyad-Kazand, A.H., Hayara, S., Traboulssie, M., A. Alyamanif, O., H. Faourg, W., and ElMakhoura, Y., 2017. Chemical Characterization and Cytotoxic Activity Evaluation of Lebanese Propolis. **Biomedicine & Pharmacotherapy**. 95, 298-307
- Omar, R.M.K., Igoli, J., Gray, A.I., Ebiloma, G.U., Clements, C., Fearnley, J., Ebel, R.A.E., Zhang, T., Koning, H.Pd., and Watson, D.G., 2015. Chemical Characterisation of Nigerian Red Propolis and its Biological Activity Against Trypanosoma Brucei. **Phytochemical Analysis**, 27, 107-115 DOI [10.1002/pca.2605](https://doi.org/10.1002/pca.2605)
- Oliveira, A.P., França, H.S., Kuster, R.M., Teixeira, L.A., and Rocha L.M., 2010. Chemical Composition and Antibacterial Activity of Brazilian Propolis Essential Oil. **J Venom Anim Toxins incl Trop**. 16(1): 130
- Probst, I.S., Sforcin, J.M., Rall, V.L.M., Fernandes, A.A.H. and Fernandes, J.A., 2011. Antimicrobial Activity of Propolis and Essential Oils and Synergism Between These Natural Products. **The Journal of Venomous Animals and Toxins Including Tropical Diseases**, 17 (2), 159-167

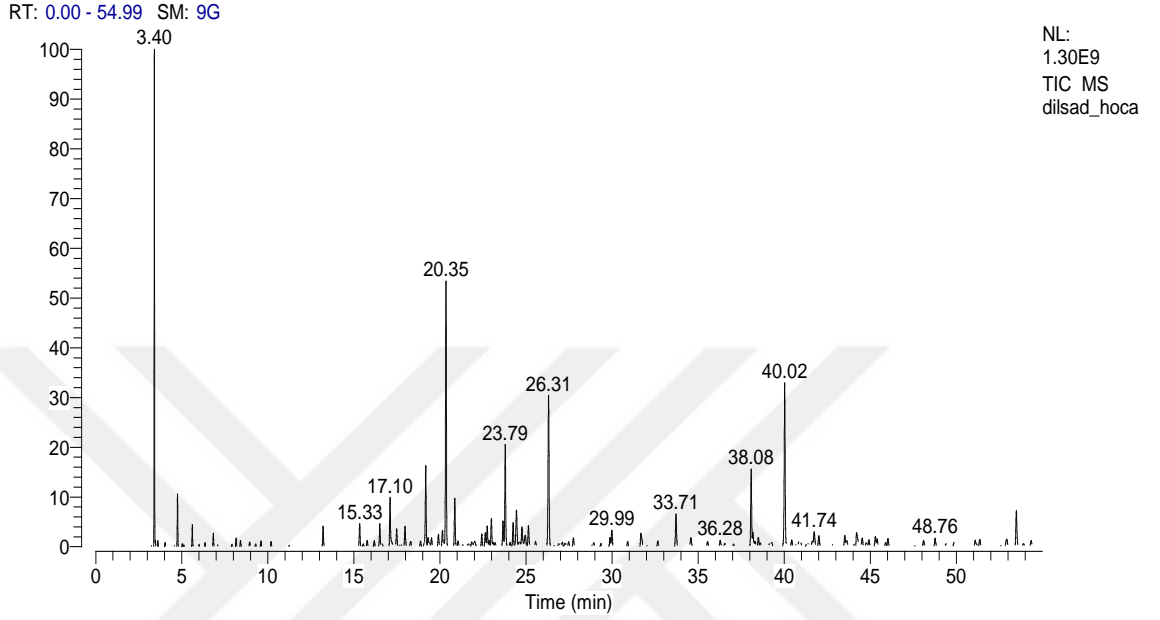
- Popova, M., Silici, S., Kaftanoğlu, O. and Bankova, V., 2005. Antibacterial Activity of Turkish Propolis And Its Qualitative And Quantitative Chemical Composition, **Phytomedicine**, 12, 221-228.
- Soltani, E-K., Cerezuela, R., Charef, N., Mezaache-Aichour, S., Esteban, M.A., and Zerroug, M.M., 2017. Algerian Propolis Extracts: Chemical Composition, Bactericidal Activity and in Vitro Effects on Gilthead Seabream Innate Immune Responses, **Fish and Shellfish Immunology**, <http://doi:10.1016/j.fsi.2017.01.009>
- SPSS, 2012. IBM Corp. Released 2012. IBM SPSS Statistics for Windows, Version 21.0. Armonk, NY: IBM Corp
- Silici, S., 2003. Propolisin bazı antimikrobiyal ve farmakolojik aktiviteleri üzerine bir araştırma, **Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Zootekni Anabilim dalı**, Adana.
- Silici, S. ve Kutluca, S. 2005 Chemical Composition and Antibacterial Activity of Propolis Collected by Three Different Races of Honeybees in the Same Region. **Journal of Ethnopharmacology**, 99, 69-73
- Şahinler, N., 2000. Arı ürünleri ve insan sağlığı açısından önemi. **MKÜ Ziraat Fakültesi Dergisi**, 5(1-2) 139-148.
- Şahinler, N. ve Kaftanoğlu, O., 2005. Natural Product Propolis: Chemical Composition. **Natural Product Research**, 19(2), 183-188. <http://dx.doi.org/10.1080/14786410410001704877>
- Şahinler, N., Gül, A., and Copur, G., 2009. Chemical Composition and Preservative Effect of Turkish Propolis on Egg Quality Durig Storage. **Asian Journal of Chemistry**. 21(3), 1877-1886
- Tosi, B., Donini, A., Romagnoli, C. and Bruni, A., 1996. Antimicrobial activity of Some Commercial Extracts of Propolis Preperad with Different Solvents. **Phytotherapy Research**, 10, 335-336, Italy
- Tursch, B. 1976. Chemical Studies of Marine Invertebrates 15. Some Recent Developments in Chemistry of Alcyonaceans, **Pure Appl. Chem.** 48, 1-6
- Todorov, D, S.. de Paula, O.A.L., Camargo, A.C, Lopes, D.A., and Nero, L.A., 2017. Combined Effect of Bacteriocin Producedby Lactobacillus Plantarum ST8SH and Vancomycin, Propolis or EDTA for Controlling Biofilm Developmentby Listeria Monocytogenes. **Rev Argent Microbiol.** xxx-xx
- Uçan, F., 2008. DL-Limonenin mayalar üzerine antifungal etkisi. **Ç.Ü., FenBil. Enst., Biyoteknoloji ABD.**, Yüksek lisans tezi. Adana. 62 s.

ÖZ GEÇMİŞ

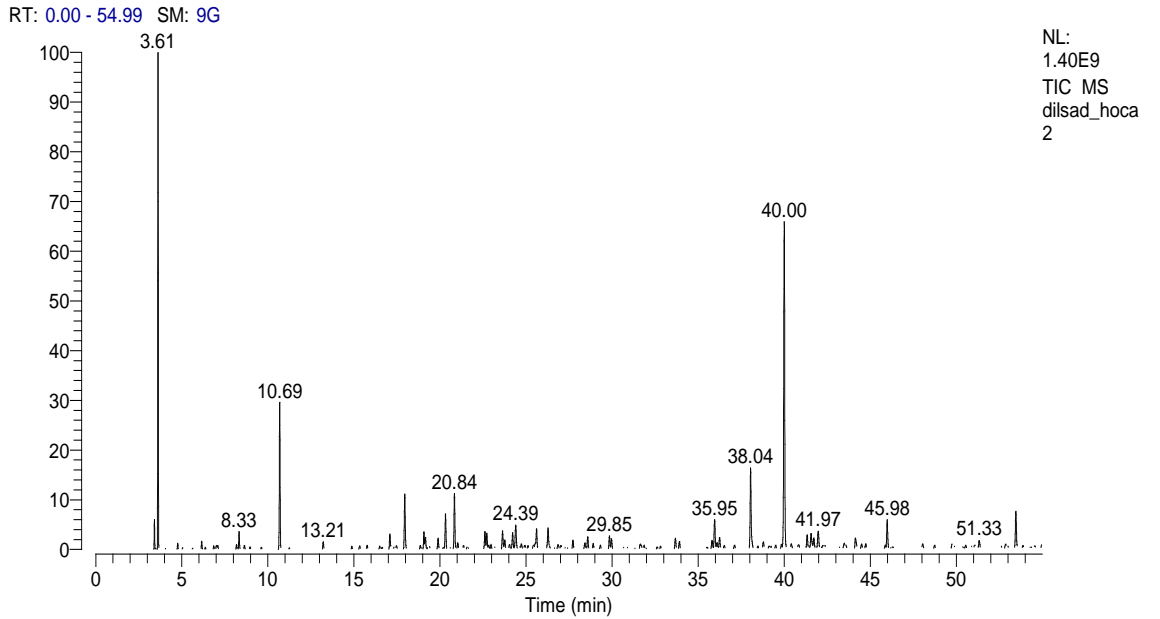
1989 yılında Hatay'ın Samandağ ilçesinde doğdum. İlk orta ve lise eğitimimi Hatay'ın Samandağ ilçesinde tamamladıktan sonra 2013 yılında Mustafa Kemal Üniversitesi Ziraat Fakültesi Gıda Mühendisliği bölümünü kazandım ve 2013 yılında mezun oldum. 2014 yılında Mustafa Kemal Üniversitesi Fen bilimleri Enstitüsü Gıda Mühendisliği Anabilim Dalında Yüksek Lisans öğrenimine hak kazandım. 2015 yılında Konya Necmettin Erbakan Üniversitesi Pedagojik formasyon eğitiminini kazanıp aynı yıl içerisinde öğrenimimi tamamladım. 2015 yılında Anadolu Üniversitesi Açık Öğretim Fakültesi Dış Ticaret öğrenimini kazandım. Halen Yüksek Lisans ve Dış Ticaret öğrenimim devam etmektedir.

7. EKLER

EK 1. Propolis Uçucu Yağ Ekstraktlarının GC/MS Kromotogramları

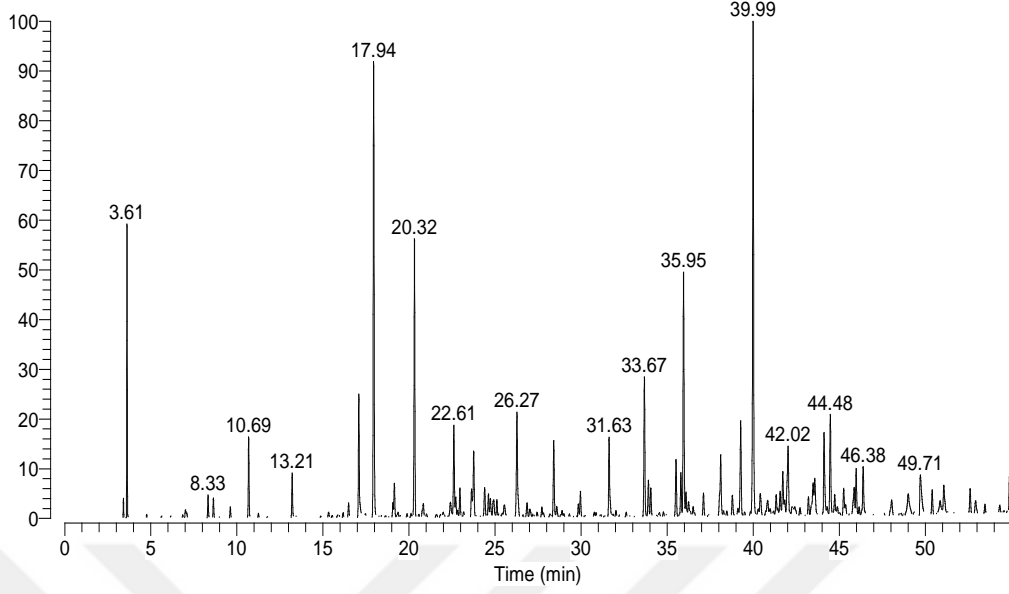


Şekil 7.1. Belen ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı



Şekil 7.2. Yayladağı ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı

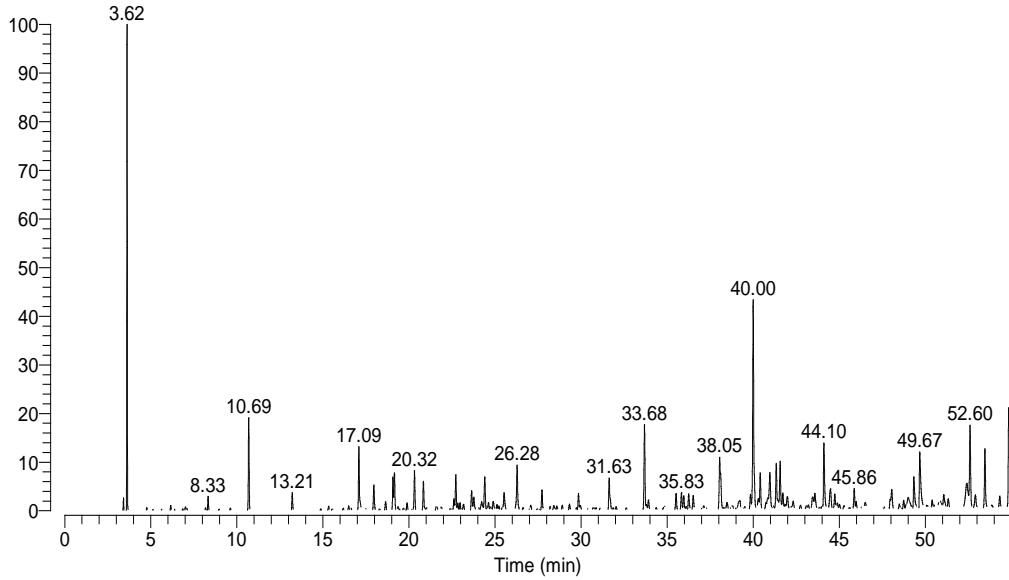
RT: 0.00 - 55.00 SM: 9G



NL:
3.62E8
TIC MS
dilsad_hoca
3

Şekil 7.3. Samandıĝ ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı

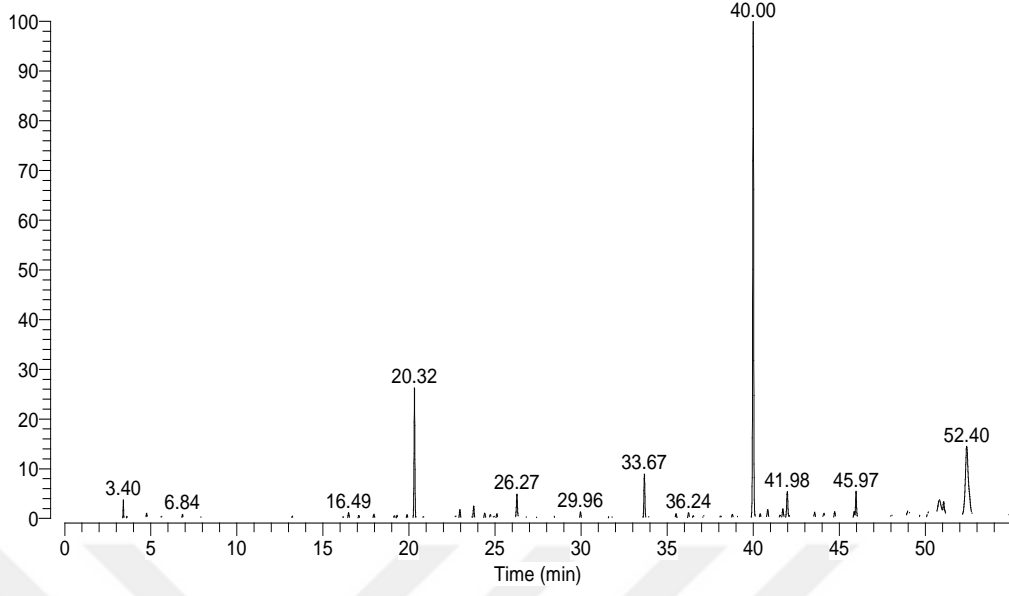
RT: 0.00 - 54.99 SM: 9G



NL:
7.36E8
TIC MS
dilsad_hoca
4

Şekil 7.4. Payas ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı

RT: 0.00 - 54.99 SM: 9G



NL:
6.76E8
TIC MS
dilsad_hoca
5

Şekil 7.5. Hasse ilçesi propolis uçucu yağ ekstraktının GC/MS kromatogramı