

◆ 中药学 ◆

超声辅助低共熔溶剂提取当归药渣粗多糖的工艺优化^{*}袁 媛¹,凌丽燕¹,宾月景¹,孙 翔²,李司单¹,刘振华^{3**}

(1.梧州学院机械与资源工程学院,梧州资源循环利用工程技术研究中心,广西梧州 543000;2.广西大学资源环境与材料学院,广西南宁 530004;3.柳州职业技术学院环境与食品工程学院,广西柳州 545006)

摘要:为研究当归(*Angelica sinensis*)药渣提取粗多糖的工艺,本研究以当归药渣粗多糖(*Angelica sinensis* Residue Crude Polysaccharide,ARP)的提取率为指标,考察低共熔溶剂(Deep Eutectic Solvent,DES)的种类、组成成分的摩尔比、DES含水量、提取温度、提取时间和液料比对ARP提取率的影响,并结合响应面分析法优化提取工艺参数。研究结果表明,氯化胆碱和乙二醇组成的低共熔溶剂更适合提取ARP,最优提取工艺为提取温度82℃、提取时间40 min、摩尔比6:1。该工艺条件下的ARP提取率为(14.43±0.10)%,ARP总糖含量为(47.54±1.23)%;而传统水提醇沉法的ARP提取率为(9.85±0.12)%,ARP总糖含量为(25.45±1.37)%。因此,氯化胆碱和乙二醇组成的低共熔溶剂是一种较好的提取溶剂,可替代传统溶剂进行多糖的提取,具有实际应用价值。

关键词:当归药渣;粗多糖;低共熔溶剂;超声辅助提取;响应面法

中图分类号:R284.2 文献标识码:A 文章编号:1002-7378(2024)02-0145-09

DOI:10.13657/j.cnki.gxkxyxb.20240709.006

当归(*Angelica sinensis*)为中国传统药材,其化学成分非常复杂,包含多糖、黄酮、挥发油等多种有机化合物。随着市场对当归需求的不断增加,中药资源的开发力度不断加大,生产过程中产生的当归药渣也日益增加^[1,2]。目前当归药渣综合利用率还很低,大部分采用掩埋或焚烧等方式处理,这不仅占用大量土

地、污染环境,而且还造成严重的资源浪费^[3]。

当归多糖的提取方法包括水提醇沉法、微波辅助提取法和超声波提取法等。其中基于多糖溶解度特性的水提醇沉法是常用的提取方法,在植物多糖的提取和分离中应用广泛^[4,5]。但是,传统的水提醇沉法会导致多糖产物中含有大量的蛋白质、核酸、色素等

收稿日期:2024-01-05 修回日期:2024-02-29

* 广西科技计划项目-广西科技基地和人才专项(桂科 AD2208001,AD22080019),广西青年科学基金项目(2023GXNSFBA026289),国家自然科学基金项目(31801313),中央引导地方科技发展资金项目(桂科 ZY21195056),自治区级大学生创新训练项目(S202311354025),广西大学对口支援学科建设项目(2023W02)和梧州学院科研项目(2022A001)资助。

【第一作者简介】

袁 媛(1986—),女,博士,副教授,主要从事废弃生物质再利用研究,E-mail:yuan_yuan2014@sina.com。

【通信作者简介】**

刘振华(1985—),男,博士,副教授,主要从事林农剩余物资源化利用研究,E-mail:1025121725@qq.com。

【引用本文】

袁媛,凌丽燕,宾月景,等.超声辅助低共熔溶剂提取当归药渣粗多糖的工艺优化[J].广西科学院学报,2024,40(2):145-153.

YUAN Y, LING L Y, BIN Y J, et al. Process Optimization of Deep Eutectic Solvent-based Ultrasound-assisted Extraction of Crude Polysaccharides from *Angelica sinensis* Residue [J]. Journal of Guangxi Academy of Sciences, 2024, 40(2): 145-153.

杂质,使得下游纯化过程复杂且耗时^[6,7]。

作为新一代绿色溶剂,离子液体(Ionic Liquids, ILs)和低共熔溶剂(Deep Eutectic Solvent, DES)被广泛应用于天然成分提取领域。ILs 的蒸气压可忽略不计,具有良好的溶解性、热稳定性和可萃取性^[8],但其成本高于普通有机溶剂,而且具有潜在的生物毒性和较差的生物降解性^[9]。DES 是由氢键受体(通常是氯化胆碱)和氢键供体(通常是天然化合物,如氨基酸、有机酸、糖等)组成的共晶混合物^[10],它具有生物可降解性、成本低、易合成、增溶作用较高、毒性低甚至没有毒性等优势^[11]。DES 可以溶解蛋白质、氨基酸和多糖等多种物质^[12],可从植物中高效地提取极性或非极性成分。目前已有学者开展 DES 对酚类^[13]、类黄酮^[14]和卡拉胶^[15]的提取研究,鲜有其对中药渣粗多糖提取的相关报道^[16]。因此,本研究主要对 DES 的种类、组成成分的摩尔比、DES 含水量、提取温度、提取时间和液料比对当归药渣粗多糖(*Angelica sinensis* Residue Crude Polysaccharide, ARP)提取率的影响进行考察,并应用响应面模型设计试验,以确定最优 ARP 提取工艺,为中药渣活性成分高效、绿色提取提供参考。

1 材料与方法

1.1 材料

当归药渣为醇提后的剩余物,由广西强寿药业集团有限公司提供,将其置于 50 ℃ 烘箱烘至恒重,过 80 目筛,待用。氯化胆碱、尿素、1,4-丁二醇、乳酸、草酸、葡萄糖、苯酚、浓硫酸和无水乙醇均购自成都市科隆化学品有限公司且均为分析纯。

仪器:HH-4 型数显恒温水浴锅(上海力辰邦西仪器科技有限公司),UV-5100 型紫外可见分光光度计[尼柯(上海)仪器有限公司],JJ124BC 型电子分析天平(常熟市双杰测试仪器厂),DD-5M 型低速大容量离心机(湖南湘立科学仪器有限公司),JY98-II IDN 多超声波细胞破碎机(上海五相仪器仪表有限公司),Nicolet iS50 型红外光谱分析仪(Thermo Scientific 公司)。

1.2 低共熔溶剂的制备与筛选

通过加热法制备 DES^[17],配制以氯化胆碱为受氢体(Hydrogen Bond Acceptors, HBA),以酰胺类、多元醇类、羧酸类为供氢体(Hydrogen Bond Donor, HBD)的 5 种低共熔溶剂,即氯化胆碱-尿素(Choline Chloride-Urea, CCU),氯化胆碱-1,4-丁二醇(Cho-

line Chloride-1,4-Butanediol, CCB),氯化胆碱-乙二醇(Choline Chloride-Ethylene Glycol, CCEG),氯化胆碱-乳酸(Choline Chloride-Lactic Acid, CCLA),氯化胆碱-草酸(Choline Chloride-Oxalic Acid, CCOA)。按一定的摩尔比将 HBA 和 HBD 混合放入 500 mL 的锥形瓶中,加入一定量的水,80 ℃ 水浴加热,搅拌至溶液澄清透明,冷却,备用。

1.3 ARP 的提取

1.3.1 DES 提取 ARP

准确称取 1 g 当归药渣粉末放入锥形瓶中,按照相应的液料比加入适量的 DES,在超声波细胞破碎机(超声功率为 1 000 W)中进行 DES-超声双辅助提取,然后通过真空蒸馏将提取物浓缩至初始体积的 20%,再向浓缩物中加入无水乙醇至终浓度为 80% 完成沉淀,最后干燥得到 ARP。采用苯酚-硫酸法测定 ARP 总糖含量^[18],以葡萄糖为对照品,于波长 490 nm 处测定吸光度。以葡萄糖含量(mg)为横坐标,吸光度为纵坐标,绘制葡萄糖标准曲线,并由此得到回归方程为 $Y=0.0098X+0.0404, R^2=0.9991$, 测定 ARP 总糖含量。

ARP 提取率(%)和 ARP 总糖含量(%)的计算公式如下:

$$\text{ARP 提取率}(\%) = M_{\text{ARP}} / M \times 100\%, \quad (1)$$

$$\text{ARP 总糖含量}(\%) = (C \times V \times n) / M_{\text{ARP}} \times 100\%, \quad (2)$$

其中, M_{ARP} 为 ARP 的质量, M 为当归药渣质量, C 为 ARP 溶液中葡萄糖的浓度, V 为 ARP 溶液的体积, n 为稀释倍数。

1.3.2 水提醇沉法提取 ARP

准确称取 5 g 当归药渣粉末,按照 40 mL/g 液料比加入蒸馏水,在 1 000 W 超声功率下沸水浴浸提 2 h。重复提取 3 次后,往粗多糖提取液中加入 3 倍体积的无水乙醇并离心(5 000 r/min, 20 min),所得粗多糖用乙醚和无水乙醇交替清洗 2 次,在干燥通风处自然风干,即得当归药渣粗多糖,并按照 1.3.1 节方法测定 ARP 总糖含量。

1.4 ARP 的红外光谱分析

采用傅里叶变换红外光谱(FTIR)分析 ARP 的化学官能团变化。取约 50 mg 粗多糖与一定量的溴化钾混合均匀后放入研钵中,研成粉末并压片,扫描范围为 400—4 000 cm⁻¹, 分辨率为 4 cm⁻¹, 扫描次数为 32 次。

1.5 单因素试验设计

设置基础试验条件如下:各类 DES 的含水量为 30%,供氢体与氯化胆碱的摩尔比为 3:1,提取时间为 40 min,提取温度为 90 °C,液料比为 30 mL/g。采用单因素试验设计考察 DES 的种类(CCU、CCB、CCLA、CCEG、CCOA)、供氢体与氯化胆碱的摩尔比(2:1、3:1、4:1、5:1、6:1)、DES 含水量(10%、20%、30%、40%、50%)、提取温度(60、70、80、90、100 °C)、提取时间(20、30、40、50、60 min)和液料比(20、30、40、50、60 mL/g)对 ARP 提取率的影响。考察某一因素对 ARP 提取率的影响时,只调整该因素,其他因素条件不变,但所得优化结果作为下一步试验的条件。每个试验重复 5 次,计算相对标准偏差(RSD)值。

1.6 工艺优化

在单因素试验的基础上,利用 Design Expert 8.0.6 软件设计响应面试验。以提取温度(A)、提取时间(B)、供氢体与氯化胆碱的摩尔比(C)为自变量,以 ARP 提取率(Y)为考察指标,设计 17 个试验点进行组合试验,试验因素与水平见表 1。

表 1 响应面设计试验因素及 3 个水平

Table 1 Factors used in response surface design and the corresponding three levels

水平 Levels	因素 Factor		
	A: 提取温度/°C A: extraction temperature/°C	B: 提取时间/min B: extraction time/min	C: 供氢体与氯化胆碱的摩尔比 C: molar ratio of hydrogen donor to choline chloride
-1	70	30	4
0	80	40	5
1	90	50	6

2 结果与分析

2.1 当归药渣粗多糖的 FTIR

由图 1 可知,所提取的 ARP 在 3391 cm^{-1} 处存在-OH 伸缩振动吸收峰,在 2920 cm^{-1} 处产生了 C-H 伸缩振动吸收峰,这两个特征峰是多糖的特征峰^[19]。另外,红外谱图显示在 1633 cm^{-1} 处有 C=O 伸缩振动吸收峰,在 1418 cm^{-1} 和 1380 cm^{-1} 处有 C-O 弯曲振动吸收峰,在 1059 cm^{-1} 处为 C-O-C 不对称吸收峰,表明 ARP 中存在吡喃糖^[20],因此所提取的当归药渣粗多糖符合多糖官能团结构特征。

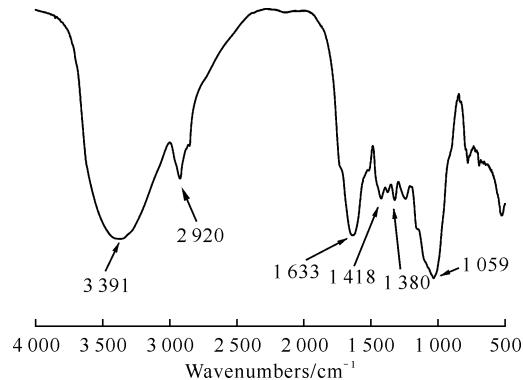


图 1 当归药渣粗多糖的红外光谱图

Fig. 1 FTIR spectra of ARP

2.2 单因素试验结果

2.2.1 不同类型 DES 对 ARP 提取率的影响

使用 DES 从当归药渣中提取多糖,需要重点研究 DES 的理化性质,如扩散、溶解度、黏度、表面张力、极性和理化相互作用等,这些性质直接决定了低共熔溶剂对样品基质的渗透能力和目标化合物从样品中的溶出效率。图 2 为 DES 的类型对 ARP 提取率的影响,其中 CCEG 提取 ARP 的效率最高,提取率为 13.65%,明显高于其余几种 DES,这可能是由于 CCEG 与 ARP 形成氢键的能力更高,与 ARP 的静电相互作用也比其他 DES 大^[21]。因此,CCEG 适合提取 ARP。

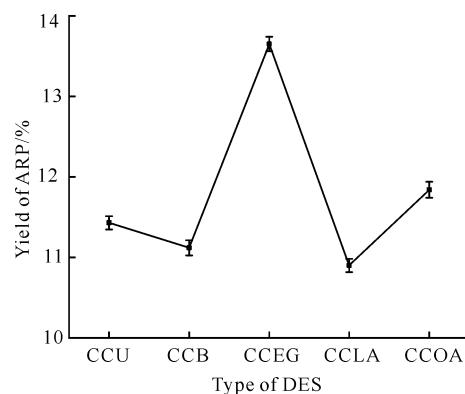


图 2 不同类型 DES 对 ARP 提取率的影响

Fig. 2 Effect of the type of DES on the extraction yield of ARP

2.2.2 乙二醇与氯化胆碱的摩尔比对 ARP 提取率的影响

DES 的组成会影响其供氢体和受氢体之间的氢键,从而决定其黏度和极性^[16]。由 2.2.1 节可知,CCEG 适合提取 ARP,因此试验进一步比较不同摩尔比的 CCEG 对 ARP 提取率的影响(图 3)。随着乙二醇与氯化胆碱摩尔比从 2:1 增加到 6:1,提取率先快速升高,然后趋于平缓,当乙二醇与氯化胆碱

的摩尔比为 5 : 1 时, ARP 提取率最高, 为 13.96%。增加乙二醇在 DES 中的比例, 不仅可以降低 DES 的黏度和表面张力, 而且还可以提高 DES 的传质速率, 从而提高提取率。然而, 增加到一定程度后, 会减弱乙二醇与氯化胆碱的相互作用, 使得提取率变化不明显^[14,17]。因此, CCEG 中乙二醇与氯化胆碱的摩尔比设置为 4 : 1—6 : 1 比较合适。

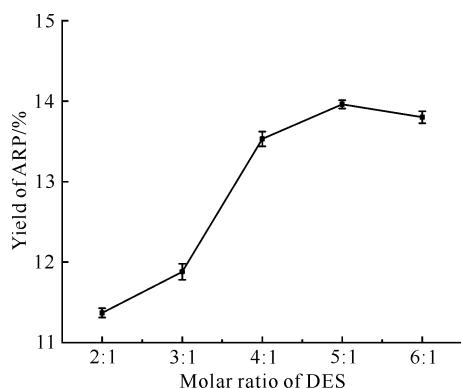


图 3 DES 摆比对 ARP 提取率的影响

Fig. 3 Effect of the molar ratio of DES on the extraction yield of ARP

2.2.3 DES 含水量对 ARP 提取率的影响

DES 组分之间存在广泛的氢键网络, 这导致其黏度高、迁移率弱。改变 DES 的黏度是样品基质中活性成分向溶液迁移的关键^[22], DES 的含水量会影响其黏度, 增加其极性, 因此试验研究不同含水量条件下 ARP 提取率的变化(图 4)。在 CCEG 摆比为 4 : 1、提取时间为 40 min、提取温度为 90 °C、液料比为 30 mL/g 的条件下, 当 CCEG 含水量小于 40% (V : V) 时, 提取率随含水量的增加而增加, 最高为 13.43%;而在含水量为 40%—50% (V : V) 时, 提取率随含水量的增加而下降。上述结果说明 ARP 提取率与 DES 溶液的含水量有关, 低含水量的 CCEG

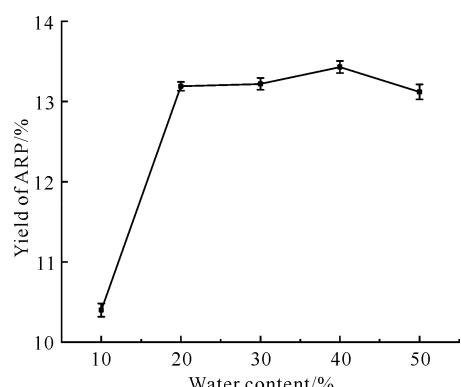


图 4 DES 含水量对 ARP 提取率的影响

Fig. 4 Effect of water content of DES on the extraction yield of ARP

不利于植物细胞的渗透, 难以提高提取率。然而, 过高含水量会增加 CCEG 的极性, 降低 CCEG 与 ARP 的相互作用, 进而促进乙二醇和氯化胆碱的简单水溶液的形成, 降低 ARP 提取率^[23]。因此, 在之后的提取过程中, 将 CCEG 的含水量固定为 40% (V : V)。

2.2.4 提取温度对 ARP 提取率的影响

目标化合物通过物理吸附和化学相互作用吸附在样品基质上。高温往往降低这些物理吸附和化学相互作用, 从而增加提取溶剂中目标化合物的浸出^[14]。此外, 较高的提取温度可以大大降低萃取溶剂的黏度, 增加提取溶剂的扩散, 加速目标化合物的质量传递。

不同提取温度条件下 ARP 提取率变化如图 5 所示。在 CCEG 含水量为 40%、乙二醇与氯化胆碱的摩尔比为 4 : 1、提取时间为 40 min、液料比为 30 mL/g 的条件下, 80 °C 时的提取率最高。当提取温度超过 80 °C 时, 提取率明显下降, 这是因为虽然较高的提取温度可以提高提取率, 但是可能会使多糖发生热降解^[24], 从而降低提取率。因此, 之后的实验均在 80 °C 下进行。

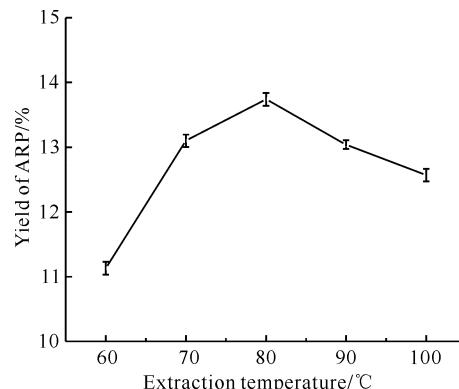


图 5 提取温度对 ARP 提取率的影响

Fig. 5 Effect of extraction temperature on the extraction yield of ARP

2.2.5 提取时间对 ARP 提取率的影响

如图 6 所示, 在 CCEG 含水量为 40%、乙二醇与氯化胆碱的摩尔比为 4 : 1、提取温度为 80 °C、液料比为 30 mL/g 的条件下, 当提取时间为 20—40 min 时, 提取率随提取时间的增加而增加; 但当提取时间超过 40 min 时, 提取率随提取时间的增加而降低, 这可能是由于粗多糖在高温和长时间的提取下发生了水解^[25]。因此, 提取时间控制在 40 min 为宜。

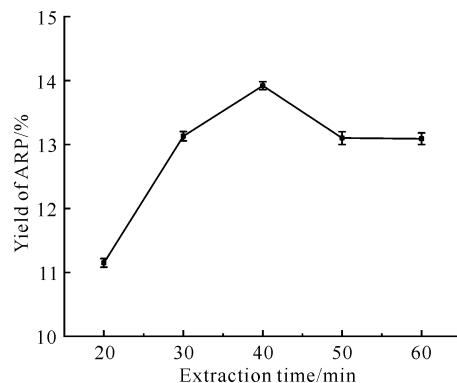


图 6 提取时间对 ARP 提取率的影响

Fig. 6 Effect of extraction time on the extraction yield of ARP

2.2.6 液料比对 ARP 提取率的影响

在 CCEG 含水量为 40%、乙二醇与氯化胆碱的摩尔比为 4 : 1、提取时间为 40 min, 提取温度为 80 °C 的条件下, 分别在 20、30、40、50、60 mL/g 的液料比下提取 ARP, 结果如图 7 所示。随着液料比的不断增大, 提取率先增大后略有下降。虽然增加提取溶剂可以提高目标化合物的浸出率, 但是也会导致提取溶剂的浪费并增加液固提取过程的复杂性^[22]。因此, 40 mL/g 的液料比足以保证 ARP 的提取率。

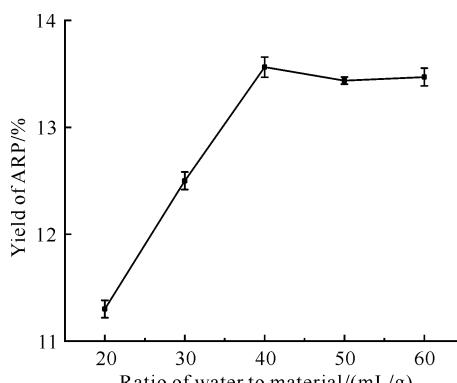


图 7 液料比对 ARP 提取率的影响

Fig. 7 Effect of ratio of water to material on the extraction yield of ARP

2.3 响应面试验结果与分析

2.3.1 响应面试验结果

通过三因素三水平 Box-Behnken Design(BBD) 试验, 考察 3 个自变量的相互作用, 确定最佳 ARP 提取条件, 结果见表 2。

根据响应面试验结果得到回归方程: $Y = 14.24 + 0.36A + 0.44B + 0.54C + 0.42AB + 0.26AC - 0.075BC - 1.35A^2 - 0.94B^2 - 0.25C^2$ 。对表 2 中的数据进行二阶多项式回归分析和方差统计分析(表 3)。模型的 F 值为 464.51, $P < 0.0001$, 且

表 2 响应面试验设计及结果

Table 2 Response surface test design and result

试验号 Test number	A: 提取 温度/°C A: extraction temperature/°C	B: 提取 时间/min B: extraction time/min	C: 乙二醇 与氯化胆碱 的摩尔比 C: molar ratio of ethylene glycol to choline chloride	Y: ARP 提取率/% Y: yield of ARP/%
1	80	40	5	14.21
2	80	40	5	14.17
3	80	50	4	13.03
4	80	40	5	14.23
5	70	30	5	11.62
6	70	40	4	12.01
7	80	40	5	14.32
8	90	50	5	13.13
9	80	30	6	13.23
10	90	40	6	13.79
11	70	40	6	12.52
12	80	30	4	11.93
13	90	40	4	12.25
14	80	50	6	14.03
15	90	30	5	11.46
16	70	50	5	11.59
17	80	40	5	14.26

失拟误差的 P 值为 $0.2661 > 0.05$, 表明模型具有极显著的统计学意义并且失拟性不显著, 试验结果受未知因素的影响较小^[26]。模型的相关系数 $R^2 = 0.9983$, 表明模型具有良好的可信度; 纠正系数 $R_{Adj}^2 = 0.9962$, 表示该模型可以解释 99.62% 的试验数据。较低的系数变异值($C.V.\% = 0.51$)证实了回归模型实验值的准确性和可靠性。由表 3 可知, 除 BC 交互作用影响效果不明显外, 其他因素对 ARP 提取率的影响极显著。

2.3.2 响应面交互作用分析

利用 Design Expert 8.0.6 软件对 3 个因素交互作用进行分析比较, 并分别给出 AB、AC、BC 的响应面三维曲线图和二维响应等高线图(图 8)。响应面三维曲线图可以显示自变量对响应变量的影响; 二维响应等高线图不仅可以解释自变量之间的相互作用, 而且可以反映变量相互作用的重要性, 其中圆形响应等高线表明变量之间的相互作用可以忽略不计, 而椭圆响应等高线表明变量之间存在显著的相互作用^[27]。由图 8 可知, A 和 B 交互作用的响应面最陡

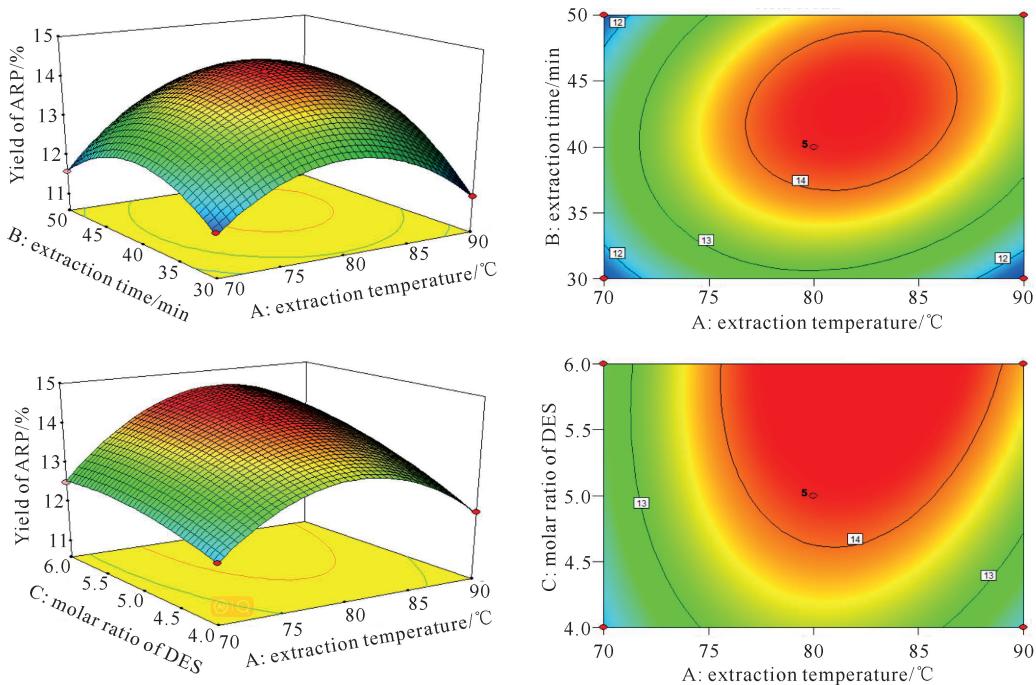
峭,而B和C的交互作用响应面最平缓,表明B和C的交互作用对ARP提取率的影响相对较小。上述表3二阶多项式模型方差分析

结果与方差分析结果一致,说明回归模型可以较好地描述A、B和C这3个因素对ARP提取率的影响。

Table 3 Variance analysis for the second-order polynomial model

来源 Source	平方和 Sum of square	自由度 <i>df</i>	均方 Mean square	F 值 F value	P 值 P value
Model	18.55	9	2.06	464.51	<0.0001**
A	1.04	1	1.04	235.33	<0.0001**
B	1.57	1	1.57	353.09	<0.0001**
C	2.37	1	2.37	533.16	<0.0001**
AB	0.72	1	0.72	162.86	<0.0001**
AC	0.27	1	0.27	59.78	0.0001**
BC	0.023	1	0.023	5.07	0.0590
A^2	7.68	1	7.68	1730.34	<0.0001**
B^2	3.70	1	3.70	834.60	<0.0001**
C^2	0.25	1	0.25	57.08	0.0001**
Residual	0.031	7	4.436E-003		
Lack of fit	0.018	3	6.125E-003	1.93	0.2661
Pure error	0.013	4	3.170E-003		
Cor total	18.58	16			

Note: * $P < 0.05$ means significant; ** $P < 0.01$ means extremely significant.



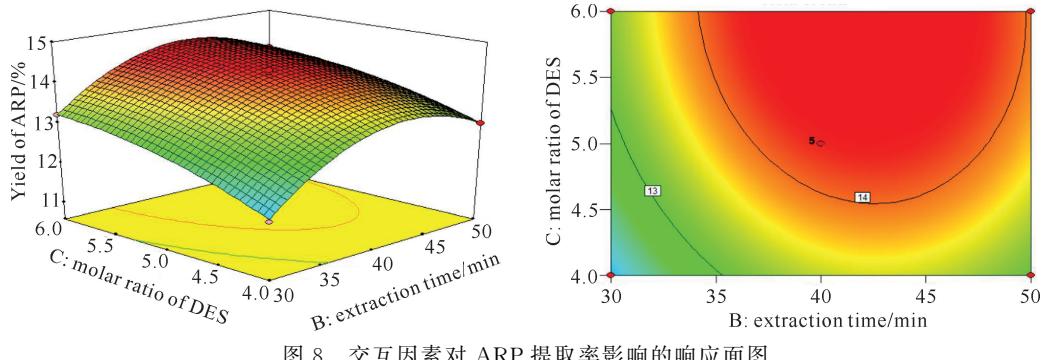


图8 交互因素对ARP提取率影响的响应面图

Fig. 8 Response surface diagrams of the effect of interactive factors on the yield of ARP

2.4 ARP的最佳提取工艺

根据前述响应面模型和结果分析,得出 ARP 的最佳提取条件:提取温度 81.76 °C,提取时间 39.88 min,乙二醇与氯化胆碱的摩尔比为 5.86 : 1。在此条件下,模型预测 ARP 提取率为 14.58%。为方便试验,将试验条件调整为提取温度 82 °C,提取时间 40 min,乙二醇与氯化胆碱的摩尔比 6 : 1。在此条件下进行 3 次平行验证试验,得到 ARP 的提取率为 (14.43±0.10)% ,表示该模型具有较高的可靠性,且提取工艺的重现性较好,说明该模型适用于 DES 提取工艺的优化。根据公式(2)可知,DES 提取 ARP 的总糖含量为 (47.54±1.23)%。传统的水提醇沉法所得的 ARP 提取率为 (9.85±0.12)% , ARP 总糖含量为 (25.45±1.37)%。因此,低共熔溶剂是一种较好的提取溶剂,可替代传统溶剂进行多糖的提取。

3 结论

本研究建立了低共熔溶剂 CCEG 提取 ARP 的方法。在单因素试验筛选的基础上,采用响应面试验进一步优化提取条件,得到最优提取工艺为提取温度 82 °C、提取时间 40 min、乙二醇与氯化胆碱的摩尔比 6 : 1。该工艺的 ARP 提取率为 (14.43±0.10)% , ARP 总糖含量为 (47.54±1.23)%。从提取率和总糖含量上看,低共熔溶剂提取优于传统水提醇沉法提取。

本研究仅讨论 CCEG 提取条件对 ARP 提取效果的影响,针对 ARP 中 CCEG 的残留未作进一步探讨。前人研究表明,常用的 DES 对细胞^[28]、真菌^[29]和动物^[30]都表现为无毒或低毒,但也有研究发现,氯化胆碱-尿素型 DES 对水螅的毒性强于单组分^[29]。因此,后续还应增加 DES 安全性的毒理学研究和动物实验,从而避免多糖提取过程中 DES 的残留可能对多糖品质和人体健康产生的不利影响^[31]。同时,

未来可拓展多组分 DES 对不同活性成分的提取、DES 回收再利用方面的研究,从而推动绿色、高效提取技术的发展。

参考文献

- [1] ZHOU Y, SELVAM A, WONG J W C. Chinese medicinal herbal residues as a bulking agent for food waste composting [J]. Bioresource Technology, 2018, 249: 182-188.
- [2] 杨冰, 丁斐, 李伟东, 等. 中药渣综合利用研究进展及生态化综合利用模式[J]. 中草药, 2017, 48(2): 377-383.
- [3] 方悦悦, 陈诺, 肖平, 等.“双碳”背景下中药药渣高值化利用技术与途径[J]. 中国中药杂志, 2023, 48(19): 5142-5151.
- [4] SUN S J, DENG P, PENG C E, et al. Extraction, structure and immunoregulatory activity of low molecular weight polysaccharide from *Dendrobium officinale* [J]. Polymers, 2022, 14(14): 2899.
- [5] 曹玉标, 孙亮亮, 杨野, 等. 三七药渣中主要多糖成分的分离纯化及其抗氧化活性研究 [J]. 中草药, 2023, 54(1): 100-111.
- [6] CHEN C, YOU L J, ABBASI A M, et al. Optimization for ultrasound extraction of polysaccharides from mulberry fruits with antioxidant and hyperglycemic activity *in vitro* [J]. Carbohydrate Polymers, 2015, 130: 122-132.
- [7] CHEN M, LI D, MENG X, et al. Review of isolation, purification, structural characteristics and bioactivities of polysaccharides from *Portulaca oleracea* L [J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2024, 257: 128565.
- [8] ANTUNES E C, OLIVEIRA F, TEMMINK H, et al. Separation of polysaccharide and protein by ionic liquid-based extraction techniques [J]. Journal of Ionic Liquids, 2023, 3(2): 100058.
- [9] SZABÓ L, MILOTSKYI R, SHARMA G, et al. Cellu-

- lose processing in ionic liquids from a materials science perspective; turning a versatile biopolymer into the cornerstone of our sustainable future [J]. *Green Chemistry*, 2023, 25(14):5338-5389.
- [10] CAJNKO M M, VICENTE F A, NOVAK U, et al. Natural deep eutectic solvents (NaDES): translating cell biology to processing [J]. *Green Chemistry*, 2023, 25(22):9045-9062.
- [11] TÜRKER D A, DOĞAN M. Ultrasound-assisted natural deep eutectic solvent extraction of anthocyanin from black carrots: optimization, cytotoxicity, *in-vitro* bioavailability and stability [J]. *Food and Bioproducts Processing*, 2022, 132:99-113.
- [12] QU H, WU Y, LUO Z, et al. An efficient approach for extraction of polysaccharide from abalone (*Haliotis discus hawaii* Ino) viscera by natural deep eutectic solvent [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2023, 244:125336.
- [13] GARCÍA A, RODRÍGUEZ-JUAN E, RODRÍGUEZ-GUTIÉRREZ G, et al. Extraction of phenolic compounds from virgin olive oil by deep eutectic solvents (DESs) [J]. *Food Chemistry*, 2016, 197(Pt A):554-561.
- [14] MORE P R, JAMBRAK A R, ARYA S S. Green, environment-friendly and sustainable techniques for extraction of food bioactive compounds and waste valorization [J]. *Trends in Food Science & Technology*, 2022, 128: 296-315.
- [15] DAS A K, SHARMA M, MONDAL D, et al. Deep eutectic solvents as efficient solvent system for the extraction of κ -carrageenan from *Kappaphycus alvarezii* [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2016, 136:930-935.
- [16] ZHANG L J, WANG M S. Optimization of deep eutectic solvent-based ultrasound-assisted extraction of polysaccharides from *Dioscorea opposita* Thunb. [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2017, 95:675-681.
- [17] HESSEL V, TRAN N N, ASRAMI M R, et al. Sustainability of green solvents - review and perspective [J]. *Green Chemistry*, 2022, 24(2):410-437.
- [18] WANG S Y, WANG L, LIU M, et al. An effective estimation of distribution algorithm for solving the distributed permutation flow-shop scheduling problem [J]. *International Journal of Production Economics*, 2013, 145(1):387-396.
- [19] WANG Q Q, HU H M, XIONG L, et al. Structural characterization and prebiotic activity of *Bletilla striata* polysaccharide prepared by one-step fermentation with *Bacillus licheniformis* BJ2022 [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2024, 258: 128822.
- [20] GHAMGUI H, JARBOUI R, JEDDOU K B, et al. Polysaccharide from *Thymelaea hirsuta* L. leaves: structural characterization, functional properties and antioxidant evaluation [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2024, 262(Pt 2):129244.
- [21] MEHRABI F, GHAEDI M, ALIPANAHPOUR DIL E. Magnetic nanofluid based on hydrophobic deep eutectic solvent for efficient and rapid enrichment and subsequent determination of cinnamic acid in juice samples: vortex-assisted liquid-phase microextraction [J]. *Talanta*, 2023, 260:124581.
- [22] WANG M, WANG J, ZHANG Y, et al. Fast environment-friendly ball mill-assisted deep eutectic solvent-based extraction of natural products [J]. *Journal of Chromatography A*, 2016, 1443:262-266.
- [23] GUTIÉRREZ M C, FERRER M L, MATEO C R, et al. Freeze-drying of aqueous solutions of deep eutectic solvents: a suitable approach to deep eutectic suspensions of self-assembled structures [J]. *Langmuir*, 2009, 25(10):5509-5515.
- [24] CHEN R, LI S, LIU C, et al. Ultrasound complex enzymes assisted extraction and biochemical activities of polysaccharides from *Epimedium* leaves [J]. *Process Biochemistry*, 2012, 47(12):2040-2050.
- [25] LIU J C, MIAO S, WEN X, et al. Optimization of polysaccharides (ABP) extraction from the fruiting bodies of *Agaricus blazei* Murill using response surface methodology (RSM) [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2009, 78(4):704-709.
- [26] 陈盛仕, 刘梓宜, 李梦琪, 等. 钝顶螺旋藻藻蓝蛋白的提取工艺优化及其纯化研究[J]. 广西科学院学报, 2022, 38(4):388-402.
- [27] ZHANG Y L, HE L, LI Q, et al. Optimization of ultrasonic-assisted deep eutectic solvent for the extraction of polysaccharides from *Indocalamus tessellatus* leaves and their biological studies [J]. *Sustainable Chemistry and Pharmacy*, 2022, 30:100855.
- [28] HUANG Z L, WU B P, WEN Q, et al. Deep eutectic solvents can be viable enzyme activators and stabilizers [J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2014, 89(12):1975-1981.
- [29] 刘伟, 王晓雨, 周玉溪, 等. 低共熔溶剂在植物多糖提取中的应用研究进展[J]. 食品工业科技, 2023, 44(24):1-

- 11.
- [30] ZHOU R R, HUANG J H, HE D, et al. Green and efficient extraction of polysaccharide and ginsenoside from American ginseng (*Panax quinquefolius* L.) by deep eutectic solvent extraction and aqueous two-phase system [J]. *Molecules*, 2022, 27(10): 3132.
- [31] FERREIRA I J, MENESES L, PAIVA A, et al. Assessment of deep eutectic solvents toxicity in zebrafish (*Danio rerio*) [J]. *Chemosphere*, 2022, 299: 134415.

Process Optimization of Deep Eutectic Solvent-based Ultrasound-assisted Extraction of Crude Polysaccharides from *Angelica sinensis* Residue

YUAN Yuan¹, LING Liyan¹, BIN Yuejing¹, SUN Xiang², LI Sidan¹, LIU Zhenhua^{3*}

(1. Wuzhou Engineering Research Center of Resource Recycling, College of Mechanical and Resource Engineering, Wuzhou University, Wuzhou, Guangxi, 543000, China; 2. School of Resources, Environment and Materials, Guangxi University, Nanning, Guangxi, 530004, China; 3. College of Environment and Food Engineering, Liuzhou Vocational and Technical College, Liuzhou, Guangxi, 545006, China)

Abstract: In order to study the extraction process of crude polysaccharide from *Angelica sinensis* residue, the extraction rate of *A. sinensis* Residue Crude Polysaccharide (ARP) was used as an index to investigate the effects of the type of Deep Eutectic Solvent (DES), molar ratio of components, water content of DES, extraction temperature, extraction time and liquid-to-material ratio on the extraction rate of ARP, and the extraction process parameters were optimized by response surface analysis. The results showed that the deep eutectic solvent composed of choline chloride and ethylene glycol was more suitable for the extraction of ARP. The optimal extraction process was extraction temperature of 82 °C, extraction time of 40 min, and molar ratio of 6 : 1. Under these conditions, the extraction rate of ARP was (14.43±0.10)%, and the total sugar content of ARP was (47.54±1.23)%. The extraction rate of ARP by traditional water extraction and alcohol precipitation method was (9.85±0.12)%, and the total sugar content of ARP was (25.45±1.37)%. Therefore, the deep eutectic solvent composed of choline chloride and ethylene glycol is a better extraction solvent, which can replace the traditional solvent for polysaccharide extraction and has practical application value.

Key words: *Angelica sinensis* residue; crude polysaccharides; deep eutectic solvent; ultrasound-assisted extraction; response surface methodology

责任编辑:米慧芝,陈少凡



微信公众号投稿更便捷

联系电话:0771-2503923

邮箱:gzkxyxb@gxas.cn

投稿系统网址:<http://gzkx.ijournal.cn/gzkxyxb/ch>