

低共熔溶剂法提取当归药渣中总黄酮的工艺研究

袁 媛 韦柳润 陈思吉 凌丽燕 何剑宇 李司单*

(机械与资源工程学院 梧州学院 广西梧州 543000)

摘 要: 以当归药渣中的总黄酮提取率为评价指标,在筛选出提取率最高的低共熔溶剂氢键供体后,再以超声时间、不同摩尔比、不同含水率三个单因素研究最佳的提取工艺,在此基础上设计正交实验。结果表明:超声时间对总黄酮提取率的作用最大,其次是摩尔比,最小的是含水率。在使用氯化胆碱-葡萄糖作为低共熔提取溶剂,摩尔比为 1:3,超声功率为 400 W、超声波温度为 60℃、含水率 35%、超声波持续时间为 40 min 时,总黄酮的提取率最高,为 4.63%。较超声波辅助乙醇提取总黄酮提取率(3.92%)提高了 25.5%。

关键词: 低共熔溶剂;总黄酮;当归药渣

引言

当归药渣中仍含有许多有效成分,如总黄酮类和多糖类物质。这些物质广泛分布与植物的茎叶中,具备多种生命活力,例如总黄酮,总黄酮具有抗老化、抗血氧、抗菌、护肝、降低血压、抗炎、镇痛、调控免疫力等。提取总黄酮类化合物活性成分的一直以来都是保健食品及药品深加工的研究热点。

低共熔溶剂(DESs)由特定摩尔比的氢键受体、氢键供体和多元醇等物质构成,其熔点明显低于任何单一组分的熔点,与传统有机溶剂如甲醇、乙醇等相比,DESs 具有许多优势,如价格低廉、原料易获得、可设计用量制备、操作简单、不易挥发、方便贮存、无副产物产生、可回收再利用等。这些优势使其成为绿色化学发展的首选,同时也具有良好的物理化学特性,可以满足多种应用场景的需求。近年来,低共熔溶剂已成为提取天然产物的理想溶液,并被应用于实验中,但应用于药渣二次提取鲜有报道。

本研究以当归药渣为原料,拟通过单因素试验探讨提取时间、低共熔溶剂摩尔比,低共熔溶剂含水率三个单因素对超声辅助提取总黄酮的影响,再结合正交实验设计确定最优提取工艺条件。

1 实验方法

将氯化胆碱-葡萄糖依照 1:2 摩尔比混匀,含水率为 20%,随后将混合物放入 90℃ 恒温水浴锅中,直至水溶液变得澄清,冷却至室温即可。其中,总黄酮类化合物含量的测定是根据芦丁的标准曲线回归方程: $y=0.2588x-0.0562$, $R^2=0.9997$,拟合度较高。

当归药渣提取总黄酮工艺流程:当归药渣→晒干→烘干箱干燥

至恒重→粉碎过筛(过 40 目筛子)→称重→加入低共熔溶剂于离心管→超声波处理→离心→定容→取样→加入显色剂测吸光值→计算总黄酮提取率。

2 结果与分析

2.1 摩尔比对总黄酮提取率的影响

将其摩尔比设计为 1:3、1:2、1:1、2:1、3:1,五组变量,含水率 20%。在低共熔溶剂摩尔比为 1:3 到 1:2 之间时,当归药渣中总黄酮提取率是呈增长趋势,由 4.36% 增加到 4.87%,但在摩尔比 1:2 时达到了最大值 4.87%,在摩尔比为 1:1 时,提取率为最低值 2.30%,或许是由于低共熔溶剂中的极性需要一个持平的平衡点,超过或者少于都会对总黄酮提取率有影响。摩尔比率 2:1 与 3:1 亦是如此,因此越靠近低共熔溶剂极性平衡点提取率相应更高。

极性平衡可以显著提高总黄酮的溶解速度,使反应更加充分,但当超过或低于平衡点时,可溶于低共熔溶剂的非总黄酮类杂质的溶出量会急剧增加,从而导致总黄酮活性有机大分子的析出量减少,从而降低了总黄酮提取率,因此,为了更准确地评估总黄酮提取率,选取摩尔比为 1:3、1:2、1:1 做正交实验。本组单因素中摩尔比为 1:2 的提取率最高,为 4.87%。

2.2 超声处理时间对总黄酮提取率的影响

选取氯化胆碱与葡萄糖摩尔比为 1:2 做实验低共熔溶剂,含水率 20%,设计超声时间超声 35 min、40 min、45 min、50 min、55 min,超声功率 400 W,温度 60℃ 条件下,当超声时间增加时,DESs 对当

归药渣总黄酮的提取率会先大幅提高, 然后逐渐降低。最高提取率可达 4.66%。这可能是因为超声时间过长, 超声的空化效果、力学效果和热效果会损坏机体壁, 促使成份的迅速扩展和溶出。由于 DESs 具有高亲和力, 可以快速提取当归药渣总黄酮成分。当超声波持续时间超过 40 min 时, 能量消耗会增加, 这可能会导致当归药渣总黄酮成分的分解, 从而降低当归药渣总黄酮的得率。

2.3 含水率对总黄酮提取率的影响

根据氯化胆碱和葡萄糖摩尔比 1:2, 将含水率调整为 15%、20%、25%、30%、35%五组, 并在超声波持续时间为 45 min、超声功率为 400 W、温度控制为 60℃的条件下, 由于低共熔溶液的水分含量较低, 黏度较大, 这会影响分子的自由扩散运动, 从而影响 DESs 提取的效果。所以, 通过调整其黏度, 可以获得更好的提取效果。实验结果表明, 当 DESs 的水分升高时, 当归药渣总黄酮的得率先上升, 然后又下降, 最高值为 3.87%。当 DESs 水分接近 20%时, 由于水分的升高, DESs 的黏度会下降, 使得它更易于渗透到植株细胞体内。这样, 当归药渣总黄酮成分可以更快更有效地从细胞内部扩散到细胞外, 从而提高总黄酮的吸收率。当 DESs 的水分达到 35%时, 其总黄酮提取率可达到 3.87%。

3 正交试验与工艺优化

依据 L934 正交实验的结果所示, 对总黄酮提取率影响程度由大到小依次是: 超声时间>摩尔比>含水率。最优提取工艺条件为超声时间 40 min, 超声功率 400 W, 超声波温度 60℃, 含水率 35%, 摩尔比 1:3 为最佳提取工艺, 提取率为 4.63%。

与超声波辅助乙醇提取当归药渣总黄酮对比, 提取率为 3.92%。其工艺是采取超声波辅助乙醇提取总黄酮, 对比之下本文所使用的 DESs 溶剂提取率提高了 25.5%, 且使用时长更短, 为后续优化提取黄酮类化合物提供指导。

4 结论

在本试验范围内确定了最优提取工艺为超声时间 40min, 超声功率 400 W, 超声波温度 60℃, 含水率 35%, 摩尔比 1:3, 提取率为 4.63%。明确了低共熔溶剂能够有效提高中药渣中黄酮类化合物提取, 为今后中药渣活性成分二次有效提取提供了技术指导和理论

支持。

参考文献

- [1]刘成,张连红.低共熔溶剂及其应用的研究进展[J].现代化工,2022,42(04):43-47.
- [2]张坤等.黄酮类化合物的提取分离方法研究进展[J].化工管理,2021(26):81-82.
- [3]邓红艳等.中药渣在环境中的资源化利用初探[J].环境与发
展,2018,30(1):6-7.
- [4]马腾飞等.超声波提取猴头菇总黄酮的工艺研究[J].山东化工,2022,51(16):32-34.
- [5]王争争等.油枣中黄酮类化合物体外抗凝血活性分析[J].山西农业科学,2022,50(11):1536-1541.
- [6]LiG,et al. Extraction of flavonoids from Citri Reticulatae PericarpiumViride using a deep eutectic solvent[J]. RSC advances,2022,12(41): 26975-26988.
- [7]Rashid R, et al. Green extraction of bioactive compounds from apple pomace by ultrasound assisted natural deep eutectic solvent extraction: Optimisation, comparison and bioactivity[J]. Food Chemistry, 2023, 398: 133871.

作者简介: 第一作者: 袁媛, 1986.09, 女, 汉族, 辽宁抚顺市, 梧州学院, 广西梧州市 543000, 副教授, 博士, 工学博士。研究方向: 生物质废弃物高值化利用, 活性成分提取与纯化。

通讯作者: 李司单, 1982 年 10 月生, 男, 汉族, 黑龙江哈尔滨市, 梧州学院, 副教授, 工学博士。研究方向: 为生物质废弃物综合利用、生物质基水/气凝胶研究等。

项目课题: 广西科技计划项目-广西科技基地和人才专项(桂科 AD22080018 和 AD22080019), 广西青年科学基金项目(2023GXNSFBA026289), 梧州学院校级科研项目博士基金项目(利用中药渣绿色构建碳膜及其电化学性能研究, 项目号: 2022A001), 自治区级大学生创新训练项目(低共熔溶剂协同超声波提取当归药渣总黄酮的工艺研究, 项目号: S202311354025; 低共熔溶剂制备茯苓药渣纳米纤维及其特性分析, 项目号: S202311354026)资助。