

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **3 048 991**

21 Número de solicitud: 202530213

51 Int. Cl.:

**C08J 11/24** (2006.01)  
**C08H 7/00** (2011.01)  
**C08L 97/00** (2006.01)  
**B01D 11/02** (2006.01)  
**B09B 3/80** (2012.01)  
**B09B 101/70** (2012.01)

12

## SOLICITUD DE PATENTE

A1

22 Fecha de presentación:

**12.03.2025**

43 Fecha de publicación de la solicitud:

**12.12.2025**

71 Solicitantes:

**UNIVERSIDAD DE ALICANTE (100,00%)**  
**Carretera San Vicente del Raspeig s/n**  
**03690 San Vicente del Raspeig (Alicante) ES**

72 Inventor/es:

**BELTRÁN SANAHUJA, Ana;**  
**TODOLÍ TORRÓ, José Luis;**  
**SÁNCHEZ ROMERO, Raquel y**  
**TODOLÍ CARBONELL, Mar**

54 Título: **MÉTODO DE EXTRACCIÓN DE LIGNINA A PARTIR DE RESIDUOS AGROALIMENTARIOS CON UN CONTENIDO EN LIGNINA MAYOR DEL 10%, UN CONTENIDO DE HEMICELULOSA MENOR DEL 50% Y UN CONTENIDO DE CELULOSA MENOR DEL 55%**

57 Resumen:

La presente invención describe un método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10 %, un contenido de hemicelulosa menor del 50 % y un contenido de celulosa menor del 55 %, empleando una combinación sinérgica de ultrasonidos y disolventes eutécticos profundos (DES) compuestos por cloruro de colina, urea y glicerol. El método realizado a pH entre 12,5 y 13,5, genera un efecto sinérgico y reduce el tiempo total de la extracción proporcionando una extracción de lignina de, al menos, el 80 % del residuo agroalimentario.

La interacción química entre los componentes del DES y los grupos funcionales de la lignina, el pH básico extremo junto con la cavitación ultrasónica, facilita la disolución y extracción eficiente de la lignina. Así, la invención proporciona un método sostenible, eficiente y escalable, siendo una alternativa innovadora de valorización de residuos agrícolas en la economía circular.

ES 3 048 991 A1

## DESCRIPCIÓN

MÉTODO DE EXTRACCIÓN DE LIGNINA A PARTIR DE RESIDUOS  
AGROALIMENTARIOS CON UN CONTENIDO EN LIGNINA MAYOR DEL 10%, UN  
5 CONTENIDO DE HEMICELULOSA MENOR DEL 50% Y UN CONTENIDO DE CELULOSA  
MENOR DEL 55%

## CAMPO DE LA INVENCION

10 La presente invención se enmarca dentro de la industria alimentaria, sector químico, industria  
de materiales sostenibles y biopolímeros, sector cosmético y/o sector farmacéutico.

## ESTADO DE LA TÉCNICA ANTERIOR

15 Globalmente, se pierden aproximadamente 1,3 millones de toneladas de alimentos cada año  
(Ishangulyyev et al., 2019). En España, la categoría de alimentos más desperdiciada en 2016  
fue la fruta, con 343,6 millones de kilogramos, seguida por las verduras y hortalizas, con 167,1  
millones de kilogramos (Informe Del Consumo de Alimentación En España, 2016). Además,  
según Ecoembes, cada español genera un promedio de 460 kilogramos de residuos urbanos  
20 al año, seis veces su peso corporal promedio. Por lo tanto, es necesario implementar un  
sistema más sostenible que maximice el uso de los recursos y reutilice los desechos que  
producimos.

Entre los diferentes productos de valor añadido que pueden encontrarse en los residuos  
25 citados, se encuentra la lignina. Esto se debe a que dichos residuos agroalimentarios suelen  
provenir de partes estructurales de las plantas, como cáscaras, bagazos, hojas y tallos. Se  
trata de residuos, agroindustriales abundantes que no requieren la aplicación de procesos  
complejos o costosos previos a su valorización a través de la extracción de lignina.

30 Como ejemplos de residuos con elevadas proporciones en lignina, se pueden citar: pieles  
duras de las frutas; tallos y troncos, especialmente de plantas lechosas como el maíz, la caña  
de azúcar, sorgo o árboles de maderas duras; huesos de frutas; cáscaras de frutos secos;  
paja y residuos de cultivos de cereales.

35 Entre los residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10% y un contenido  
de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, destaca la piel o

cáscara de coco, entre otros.

El coco, específicamente el fruto de la palma *Cocos nucifera*, se compone de tres capas distintas: el exocarpio, el mesocarpio y el endocarpio. Un coco maduro puede pesar entre 1 y 1,5 kilogramos, con una distribución porcentual aproximada de sus componentes de la siguiente manera: el mesocarpio representa el 35%, el exocarpio el 12%, el endospermo el 28% y el líquido interno, conocido como agua de coco, el 25% (Soriano Soto et al., 2022).

El exocarpio, como la capa más externa, es la parte más dura y se utiliza comúnmente en la creación de objetos artesanales y como fuente de energía, aunque con frecuencia se desecha. Esta capa se caracteriza por su color marrón y su textura robusta, y ocasionalmente se utiliza como combustible debido a su alto contenido en lignina.

La composición química de las fracciones del coco varía dependiendo de varios factores, incluyendo la edad del árbol, las condiciones climáticas del sitio de cultivo y el grado de descomposición antes de la cosecha o el análisis. Las fracciones del coco, es decir el endocarpio, exocarpio y mesocarpio presentan aproximadamente un contenido en lignina del 27, 22 y 31 % respectivamente. En cuanto a la celulosa, las fracciones poseen un porcentaje de 34, 39 y 42 % respectivamente (A.F. Trujillo, 2013). Esto pone de manifiesto el alto contenido en compuestos lignocelulósicos tratándose de un subproducto de alto valor del que poder extraer componentes de interés.

En 2018, solo Indonesia produjo 18,3 millones de toneladas de coco. Sin embargo, el 65% de esta producción se clasificó como desecho. Este porcentaje incluye la cáscara y otros subproductos que, aunque no son comestibles, poseen un potencial significativo para su uso en diversos sectores industriales, tales como la fabricación de fibras naturales, la producción de biocombustibles y de materiales de construcción sostenibles (Ramos Clamont Montfort et al., 2021). Por tanto, los subproductos procedentes del coco se presentan como materia prima muy valiosa a considerar, ya que el coco se produce en grandes cantidades y más del 50% se desecha a pesar de contener fracciones muy ricas en compuestos lignocelulósicos. En consecuencia, actualmente existen varios métodos para la extracción de lignina de la cáscara de coco.

En este sentido, el método convencional y ampliamente utilizado se basa en el empleo de una solución de NaOH. Inicialmente, se realiza un pretratamiento que implica el secado, corte y

molienda del material vegetal, seguido por un tamizado a través de una malla de 1 mm. El polvo seco se somete a un tratamiento con agua caliente a 70-80°C durante 2 horas, con una proporción sólido-líquido de 1:10 (p/p). Posteriormente, se enfría a 25°C, se lava con agua en la misma proporción y se centrifuga durante 10 minutos a 2000 rpm. Luego, el sólido separado se trata con una solución de hidróxido de sodio (15% NaOH) en una proporción sólido-líquido de 1:10. Posteriormente, la mezcla se filtra para obtener el licor negro, libre de material fibroso. El rendimiento de lignina obtenido a partir de este proceso es aproximadamente del 13% con respecto a la cantidad de lignina que contiene inicialmente la muestra. Variando la concentración de NaOH, el rendimiento de extracción de lignina se puede aumentar hasta en un 50% (Arni, 2018; Saini et al., 2024).

Otro método descrito en bibliografía implica el uso de un digestor rotatorio para extraer lignina de la cáscara de coco. El proceso de extracción se realiza tratando 500 g de fibra de cáscara de coco y 5 litros de agua y 30% de NaOH en una unidad de digestor rotatorio de acero inoxidable de 10 litros durante 3 horas a una temperatura de 170°C y una presión de 10-15 bar (Arifah Binti Ahmad Che Hamat et al., 2024).

Por otro lado, también se ha descrito en bibliografía una metodología que implica extracciones en muestras de caña de azúcar utilizando NaOH y ultrasonidos en lugar de emplear el calentamiento tradicional. La extracción se lleva a cabo durante 2 horas, variando la temperatura del baño de ultrasonidos desde la temperatura ambiente hasta 80 °C. Empleando estas condiciones, el rendimiento de obtención de lignina fue del 26% (Ngadi & Rusli, 2014). Estas mejoras se atribuyen al proceso de cavitación que proporcionan los ultrasonidos que facilitan la liberación de la lignina en condiciones optimizadas.

En los últimos años, los Disolventes Eutécticos Profundos (DES) han captado un interés creciente gracias a sus propiedades únicas, su baja toxicidad y su capacidad para sustituir a los solventes tradicionales en múltiples aplicaciones. Una de sus principales ventajas es su bajo punto de fusión en comparación con los componentes individuales, lo que los hace ideales para procesos que requieren bajas temperaturas. Además, los DES destacan por su baja volatilidad, toxicidad reducida y biocompatibilidad, características que los posicionan como una opción atractiva en aplicaciones donde la seguridad y la sostenibilidad son aspectos fundamentales. (Su et al., 2024; Wang et al., 2019).

Los DES se obtienen al combinar y calentar dos o más sólidos en proporciones específicas.

Este proceso provoca un cambio de fase de sólido a líquido a una temperatura determinada, comportándose como un líquido puro en estas condiciones. Por ejemplo, un procedimiento común implica mezclar cloruro de colina y ácido láctico, calentando la mezcla a 80 °C durante 1 hora. Por otro lado, el uso de DES representa una alternativa sostenible para procesar biomasa y fraccionar lignina de la lignocelulosa, permitiendo su valorización. Al emplear el DES de cloruro de colina y ácido láctico como disolvente para promover la extracción de lignina de una muestra de 2,5% (p/p) de polvo de bagazo, se obtiene un rendimiento de extracción de lignina del 17% (Raisi et al., 2024). El proceso se llevó a cabo, mediante agitación de la mezcla a 110 °C durante 4 horas y posterior enfriamiento en agua a baja temperatura. En otro estudio llevado a cabo por Ayala et al (2022) se aplicó un diseño experimental para estudiar el procedimiento de extracción de lignina a partir de cáscara de cacao utilizando tres DES sintetizados con ácido láctico como donador de enlaces de hidrógeno y alanina, histidina y prolina como aceptores. El rendimiento de extracción varió entre 8,2 % y 47,8 %, el cual varió en función de la temperatura, el tiempo y la relación sólido-líquido.

Siguiendo esta línea, en bibliografía también se han descrito procedimientos para extracción de lignina de biomasa que implican el uso de DES y radiación microondas. En el estudio llevado a cabo por Kammoun et al (2021) se desarrolló un tratamiento, realizado a lo largo de 60 segundos a una potencia de 800 W y empleando DES basados en cloruro de colina y diferentes donadores de enlaces de hidrógeno. Se aplicó a varias muestras de biomasa y se evaluó la pureza y características de la lignina extraída. El DES con ácido oxálico ofreció los mejores resultados, aunque las temperaturas de extracción fueron elevadas, superando siempre los 100°C. Además de las altas temperaturas alcanzadas, las limitaciones del uso de DES y microondas también incluyen el rendimiento variable de extracción, especialmente con ciertos DES como el de cloruro de colina y ácido oxálico, y la compatibilidad limitada con algunas muestras de biomasa. Además, existen desafíos en la escalabilidad industrial debido a los costes asociados y la posible reducción de la eficiencia energética en volúmenes grandes o materiales densos. Es crucial destacar que el uso de la radiación microondas puede provocar la degradación de los DES debido a las altas temperaturas alcanzadas, lo que restringe su reutilización. Además, existe el riesgo de que se produzcan reacciones químicas indeseadas que pueden comprometer la calidad de la lignina extraída.

Las limitaciones de los métodos actuales incluyen rendimientos relativamente bajos en algunos casos (como 40,5%) y tiempos de extracción prolongados (hasta 4 horas), lo que

compromete tanto la viabilidad económica como la eficiencia del proceso. Además, en el caso del empleo de DES, no existe una metodología adecuada que aísle la lignina obtenida del extractante empleado.

- 5 Estas deficiencias se deben principalmente a la interacción de múltiples factores durante el proceso. El calentamiento desigual y la limitada profundidad de penetración característicos de los baños de ultrasonidos constituyen dos de las principales limitaciones técnicas. A estos se suman otros factores críticos como el pH del medio y la temperatura de extracción, cuya combinación y variabilidad pueden afectar significativamente el rendimiento y la eficacia de la
- 10 extracción. Esta interrelación de factores requiere una consideración detallada para optimizar el proceso y mitigar sus limitaciones.

- Ante las limitaciones descritas, surge la necesidad de desarrollar un método que sea sostenible, rápido y eficiente para la extracción de lignina de residuos agroalimentarios. Con
- 15 objeto de que el proceso sea atractivo, desde el punto de vista de cantidad neta de producto activo extraído, dichos residuos deben tener un contenido de lignina superior al 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa inferior al 55%.

- Por tanto, en la presente invención se propone una metodología que combina el uso de DES
- 20 con ultrasonidos para lograr rendimientos de extracción de lignina de al menos el 80%, mientras que simultáneamente reduce de manera significativa los tiempos de extracción en comparación con los métodos tradicionalmente empleados hasta la fecha.

## EXPLICACIÓN DE LA INVENCION

- 25 La presente invención se centra en un método de extracción eficiente y sostenible de lignina a partir de residuos agroalimentarios, lo que permite revalorizar estos subproductos orgánicos que, en muchos casos, son tratados como desechos sin valor económico significativo.

- 30 La lignina, un polímero natural con múltiples aplicaciones en la industria energética, química, farmacéutica y de materiales avanzados, representa un recurso de alto valor añadido que puede ser aprovechado mediante esta tecnología, contribuyendo además a la reducción de residuos agrícolas.

- 35 Para que un material agroalimentario vegetal sea considerado como ideal para la extracción

de lignina, este debe de cumplir ciertos requisitos fisicoquímicos y estructurales que favorezcan la extracción y la pureza de la lignina finalmente obtenida. De acuerdo con la presente invención, en primer lugar, la muestra ha de tener un contenido adecuado de dicha sustancia, al menos un 10% (idealmente mayor del 20%), para maximizar el rendimiento de extracción y obtener grandes cantidades de esta lignina. Además, para que la lignina sea fácilmente extraíble, es importante que la muestra no esté excesivamente impregnada de celulosa o hemicelulosa, ya que estos polisacáridos están estrechamente asociados con la lignina en la estructura vegetal. Se puede afirmar que estos componentes deben encontrarse, preferentemente, en concentraciones por debajo del 55% y 50%, respectivamente.

En segundo lugar, se debe de evitar la presencia de compuestos solubles en la materia que se va a someter al proceso de extracción (p.ej., azúcares solubles, proteínas o compuestos fenólicos), ya que estos pueden interferir sobre el proceso de extracción de lignina. En algunos casos, estos contaminantes pueden eliminarse por pretratamiento o utilizando métodos de purificación como lavado con agua o soluciones de etanol previo a la extracción de lignina.

Otras características que debe reunir el residuo es que la materia sólida, debe tener un tamaño de partícula y morfología adecuados, es decir, estar constituida por partículas finas y homogéneas (entre 0,5-1 mm) de forma que faciliten la extracción al aumentar la superficie de contacto con los reactivos. Por otra parte, su estructura debe de ser preferiblemente porosa de forma que se facilite la penetración de los disolventes o agentes químicos usados durante las etapas del proceso.

Como se ha detallado anteriormente, entre los residuos con elevadas proporciones en lignina se encuentran las pieles duras de las frutas; tallos y troncos, especialmente de plantas lechosas como el maíz, la caña de azúcar, sorgo o árboles de maderas duras; huesos de frutas; cáscaras de frutos secos; paja y residuos de cultivos de cereales.

La Tabla 1 recoge posibles residuos que pueden ser de interés, junto con sus contenidos en celulosa y hemicelulosa.

Tabla 1. Residuos agroalimentarios vegetales junto con su composición (% en peso) en lignina, celulosa y hemicelulosa.

Residuo	Lignina (%)	Celulosa (%)	Hemicelulosa (%)
Bagazo de caña de azúcar	40-50	25-35	30-40
Bagazo de maíz/sorgo	35-45	20-30	10-25
Cáscara de coco	30-35	20-25	30-45
Cáscara de plátano/banano	30-40	15-25	15-20
Serrín y virutas de madera	40-50	10-20	20-40
Corteza de árboles	25-40	10-20	30-50
Paja de trigo y arroz	35-45	25-35	10-20
Hojas y tallos de maíz	35-40	25-30	15-25
Residuos de piña (cáscara y corona)	30-40	25-30	20-30
Cáscara de nuez, almendra, avellana	25-35	15-25	30-50

5 El método de la presente invención combina el uso de ultrasonidos, aplicados a través de equipos de baño de ultrasonidos y, opcionalmente, con una sonda ultrasónica, junto con reactivos sostenibles como los disolventes eutécticos profundos (DES).

10 La citada combinación permite una extracción optimizada, sostenible y eficiente, superando las limitaciones de los métodos conocidos que presentan tiempos prolongados de extracción y rendimientos insuficientes. Además, considera la recuperación y aislamiento eficaz de la lignina, una vez esta se ha extraído de la materia prima que la contiene.

15 Cabe señalar que el método de la presente invención propone un ajuste de parámetros clave, en particular el pH de la mezcla formada por el DES con el residuo agroalimentario, (vegetal), así como otros parámetros como son la amplitud del ultrasonido, el tiempo de extracción, la relación sólido/líquido (cantidad de muestra de residuo tamizado respecto a la cantidad o volumen de DES) y la temperatura.

20 El efecto técnico generado por el método de extracción de lignina de la invención se sustenta en la capacidad de los ultrasonidos para romper las estructuras celulares de la biomasa lignocelulósica y facilitar la liberación de la lignina, acelerando el proceso de extracción y reduciendo la necesidad de empleo de sustancias químicas más agresivas o tiempos largos.



En este sentido, el procedimiento que se preconiza está formado por las siguientes etapas:

- triturado del residuo agroalimentario;
- homogeneización del residuo agroalimentario triturado mediante tamizado obteniendo el residuo agroalimentario tamizado;
- dilución en agua de un DES ternario a base de urea, cloruro de colina y glicerol (1:1:1), preferentemente, la citada dilución se realiza en una proporción 1:10 (DES/Agua);
- mezclado del DES ternario diluido con el residuo agroalimentario tamizado. Preferentemente, el mezclado se realiza poniendo en contacto 0,1 gramos de residuo agroalimentario tamizado y 25 gramos de DES ternario diluido;
- ajuste de la mezcla a un pH entre 12,5 y 13,5 para maximizar la solubilidad de la lignina a extraer del residuo agroalimentario tamizado;
- inmersión de la mezcla obtenida en la etapa anterior en un baño de ultrasonidos a temperatura constante durante la extracción de la lignina, donde el baño de ultrasonidos ha sido previamente calentado a una temperatura de, al menos, 65°C, - preferentemente, entre 65°C y 80°C - obteniendo un extracto de lignina. Cabe señalar que, preferentemente, en el baño de ultrasonidos se aplica una potencia de, al menos, 195W y una frecuencia entre 50Hz y 60Hz; y
- acidificación del extracto de lignina obtenido, precipitación de lignina y filtrado para la recuperación de la lignina sólida.

Es necesario señalar que el residuo agroalimentario que se emplea como materia de partida debe presentar un contenido en lignina mayor del 10% y un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%.

Igualmente, cabe añadir que el DES ternario actúa con los grupos fenólicos de la lignina contenida en el residuo agroalimentario mediante interacciones directas entre donadores de enlaces de hidrógeno del DES ternario y grupos fenólicos desprotonados de la lignina, obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 80% del residuo agroalimentario.

Es decir, la interacción química entre los componentes del DES y los grupos funcionales de la lignina, junto con la cavitación ultrasónica, permite una liberación eficiente de la lignina contenida en los residuos agroalimentarios, incluso en matrices lignocelulósicas complejas.

Por otro lado, el presente método combina el efecto sinérgico de un DES ternario formado por

urea, cloruro de colina y glicerol, con pH alcalino extremo (pH entre 12,5 y 13,5, preferentemente 13) y la aplicación de un baño de ultrasonidos, maximizando la eficiencia del proceso de extracción de lignina.

- 5 Así, el método de la invención supera los rendimientos y sostenibilidad de los procesos convencionales, como el uso de NaOH, posicionándose como una alternativa industrial escalable, respetuosa con el medio ambiente y alineada con los principios de economía circular.
- 10 En una realización opcional del método de la invención, la etapa de la homogeneización del residuo agroalimentario se realiza mediante el tamizado de partículas de entre 0,75 y 0,25 mm. Preferentemente, el tamizado se realiza a 0,5 mm obteniéndose un tamaño de partícula promedio de entre 47 y 429 micrómetros.
- 15 Por otro lado, cabe añadir que, de forma opcional, en la acidificación del extracto de lignina obtenido se emplea HCl y, preferentemente, el pH se ajusta a un valor de pH entre 3 y 4.

Así, el objeto de la presente invención corresponde tanto al método de extracción de lignina detallado, así como el uso de la lignina obtenida como materia prima en aplicaciones  
20 industriales, incluyendo sectores químicos, farmacéuticos, cosméticos y de materiales avanzados.

Seguidamente se explica una realización preferente que permite que se acondicione y prepare el residuo para la posterior extracción de la lignina de una forma eficaz.

25 Así, con el fin de complementar el método de extracción preconizado, se combina con todo lo detallado anteriormente, una realización preferente en la que, antes del ajuste de la mezcla a un pH entre 12,5 y 13,5, la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se ajusta a un pH de entre 9,5 y 10, y se aplican ultrasonidos mediante una sonda de  
30 ultrasonidos, con una amplitud entre 60 y 80% y un tiempo de extracción de, al menos, 5 minutos, generando una cavitación ultrasónica que potencia la penetración del DES ternario en la lignina del residuo agroalimentario y la despolimerización de la lignina.

Así, en esta realización, la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se  
35 mantiene sumergida en el baño de ultrasonidos durante un tiempo menor o igual a 35 minutos

obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 85% del residuo agroalimentario.

Es decir, en esta realización preferente de la invención, tras el tamizado del residuo, su homogeneización, dilución del DES ternario y mezclado con el residuo agroalimentario tamizado, se ajusta dicha mezcla a un pH entre 9,5 y 10, y se aplica una sonda de ultrasonidos para posteriormente ajustar dicha mezcla a un pH entre 12,5 y 13,5 para sumergirla en un baño de ultrasonidos, alcanzando un rendimiento optimizado de extracción que en algunos casos puede llegar al 100%.

Finalmente, resaltar que el presente método de extracción permite alcanzar altos rendimientos, garantizando su aplicabilidad industrial. Por tanto, sienta las bases para la transferencia tecnológica y la comercialización del proceso, promoviendo su impacto positivo tanto a nivel ambiental, al reducir la acumulación de residuos, como económico, al generar un producto de alto valor para diversas industrias.

#### **BREVE DESCRIPCIÓN DE LAS FIGURAS**

Para complementar la descripción que seguidamente se va a realizar y con objeto de ayudar a una mejor comprensión de las características del invento, de acuerdo con un ejemplo preferente de realización práctica del mismo, se acompaña como parte integrante de dicha descripción, un juego de planos en donde con carácter ilustrativo y no limitativo, se ha representado lo siguiente:

Figura 1 representa el diagrama de Pareto estandarizado para la extracción de lignina (%) mediante el empleo de sonda de ultrasonidos, recogiendo los efectos estandarizados de los factores analizados (amplitud de la sonda, tiempo aplicada y cantidad de muestra de piel de coco) y sus interacciones en la eficiencia de extracción de lignina.

Figura 2 representa el diagrama de Pareto estandarizado generado a partir del análisis de los experimentos de extracción de lignina (%) mediante el empleo de baño de ultrasonidos, recogiendo los efectos estandarizados de los factores analizados (pH, temperatura y tiempo) y sus interacciones sobre la eficiencia de extracción de lignina.

## REALIZACIÓN PREFERENTE DE LA INVENCION

En el presente apartado se detallan experimentos realizados para demostrar el alto porcentaje de lignina extraída de las diferentes muestras de residuo agroalimentario, conforme al objeto de la invención.

Para ello, seguidamente se detalla la extracción de compuestos solubles en la piel de coco (apartado 1), la determinación de la lignina insoluble, holocelulosa,  $\alpha$ -celulosa y hemicelulosa en la piel de coco (apartado 2), la optimización del método de extracción de lignina en la piel de coco mediante DES y ultrasonidos (apartado 3) y los resultados obtenidos del método de extracción propuesto para residuos distintos a la piel de coco (apartado 4).

### 1. Extracción de compuestos solubles presentes en la piel de coco

Se introducen  $4 \pm 0,1$  g de muestra de piel de coco deshidratada en un cartucho de extracción de celulosa. Este cartucho, conteniendo la muestra, se inserta en el equipo de extracción Soxhlet. A continuación, se añaden 150 mL de una solución de etanol y tolueno en una proporción de 1:2 (v/v) al matraz de extracción. Se conecta el matraz al sistema de extracción y se inicia el flujo de agua hacia el condensador. La temperatura de los calentadores se regula para mantener una ebullición que permita al menos 24 ciclos de extracción durante un periodo de 6 horas. Posteriormente, el cartucho, ahora libre de fibras solubles, se seca en un horno a  $105 \pm 3$  °C durante 24 horas, se enfría en un desecador y se pesa de nuevo. Además, se efectúa un análisis de un blanco utilizando los mismos disolventes empleados en el experimento. Se evaporan a sequedad 150 mL de mezcla y se pesa el residuo. El contenido de extractivos se expresa aplicando la siguiente ecuación (Ecuación 1):

$$\text{Contenido de extractivos} = \frac{(W_e - W_b)}{W_p} \cdot 100 \quad \text{Ecuación 1}$$

Donde  $W_e$  es el peso seco del extracto (g),  $W_b$  es el peso seco del residuo en el blanco y  $W_p$  es el peso de la muestra inicial deshidratada (g). En este caso se obtuvo un valor de **contenido en extractivos de  $3,9 \pm 0,4\%$** . Este es un porcentaje relativamente bajo, indicando que hay pocas sustancias extraíbles en solventes o agua en la muestra, lo que podría ser beneficioso en aplicaciones donde la pureza del material es importante.

## 2. Determinación de la lignina insoluble, holocelulosa, $\alpha$ -celulosa y hemicelulosa en la piel de coco

### 2.1 Determinación de la lignina insoluble en ácido contenida en la piel de coco

Se toma una muestra de  $1 \pm 0,1$  g que ha sido previamente desecada y desprovista de extractivos y se coloca en un vaso de precipitados de 1000 mL. Mientras se agita manualmente con una varilla de vidrio, se añaden cuidadosamente 15,0 mL de ácido sulfúrico al 72%, en fracciones pequeñas. Después de que la muestra se haya dispersado completamente, el vaso se coloca en un baño termostático a  $20 \pm 1^\circ\text{C}$  y se deja reposar durante 2 horas. A continuación, se añaden 575 mL de agua destilada y la mezcla se lleva a ebullición a  $150^\circ\text{C}$  durante 4 horas. Tras el enfriamiento, la mezcla se filtra utilizando un filtro que ha sido pesado previamente. La lignina insoluble en ácido se lava con agua caliente hasta que el pH del filtrado sea neutro. Esta lignina se seca luego en un horno a  $105 \pm 3^\circ\text{C}$  hasta alcanzar un peso constante y se enfría en un desecador antes de pesarla.

El contenido de lignina insoluble en ácido se calcula con la siguiente ecuación (Ecuación 2):

$$\text{Lignina insoluble en ácido} = \frac{A}{W} \cdot 100 \quad \text{Ecuación 2}$$

Donde A es el peso de la lignina insoluble en ácido (g), y W es el peso de la muestra inicial libre de humedad y extractivos (g). Después de realizar la medición, se determinó que la piel de coco contiene un  $38 \pm 5\%$  de lignina insoluble en ácido con respecto a la masa inicial de piel de coco. Este resultado muestra una alta concentración de lignina en la composición de la muestra, aspecto crucial para su valorización y aplicación en el sector industrial.

### 2.2 Determinación de holocelulosa contenida en la piel de coco.

El método Wise se basa en la deslignificación con clorito de sodio en medio ácido, donde la adición sucesiva de clorito de sodio y ácido acético disuelve la lignina mientras que los carbohidratos permanecen sin cambios. Para determinar el contenido de holocelulosa, se pesa una muestra de  $2,5 \pm 0,1$  g libre de humedad y extractivos y se coloca en un matraz erlenmeyer.

Se añaden 80 mL de agua destilada caliente y la mezcla se sumerge en un baño termostático a  $70^\circ\text{C}$ . Cada 60 minutos se añaden 0,5 mL de ácido acético glacial y 2,6 mL de clorito de sodio al 25% a la mezcla agitándola para cubrir un período total de 6-8 h. Después de la última adición, la mezcla se mantiene en el baño durante 12 h.

Luego, el residuo sólido (holocelulosa) se filtra a vacío en un filtro previamente tarado, lavándolo, a continuación, con agua caliente hasta pH neutro y secándolo durante 24 h en una estufa a  $105 \pm 3$  °C. Luego se enfría en desecadores y se pesa. El contenido de holocelulosa se expresa de la siguiente manera (Ecuación 3):

$$5 \quad \text{Holocelulosa} = \frac{A}{W} \cdot 100 \quad \text{Ecuación 3}$$

donde A es el peso de la fracción de holocelulosa (g), y W es el peso de la muestra inicial libre de humedad y extractivos (g). Tras realizar la medición, se determinó que la piel de coco posee un porcentaje de holocelulosa del  $48 \pm 6\%$ .

### 2.3 Determinación de $\alpha$ -celulosa y hemicelulosa contenida en la piel de coco

10 Para determinar el contenido de  $\alpha$ -celulosa, se pesan  $2 \pm 0,1$  g de holocelulosa seca y se colocan en un vaso de precipitados de 100 mL. Luego, se añaden 10 mL de NaOH al 17,5% (p/p) a la holocelulosa seca, agitando hasta obtener una correcta dispersión. Posteriormente, cada 5 minutos, se añaden 5 mL de NaOH al 17,5% (p/p) a la suspensión, hasta un volumen total de 25 mL. Después de la última adición, la mezcla permanece 30 minutos a 20 °C.

15 Luego, se añaden 33 mL de agua destilada a 20 °C a la suspensión agitándola y se deja reposar durante 1 hora. El contenido del vaso se filtra a vacío en un filtro previamente tarado y el residuo sólido se lava una vez con 100 mL de solución de NaOH al 8,3% (p/p) y dos veces con agua destilada.

20 Antes de conectar el vacío, se añaden 15 mL de ácido acético al 10% permitiendo que reaccione durante 3 minutos. Finalmente, se lava con agua destilada hasta que el filtrado se vuelva neutro. El residuo sólido ( $\alpha$ -celulosa) se seca en una estufa a  $105 \pm 3$ °C, se enfría en un desecador y se pesa. El contenido de  $\alpha$ -celulosa se expresa de la siguiente manera (Ecuación 4):

$$\alpha - \text{celulosa} = \frac{A}{W} \cdot 100 \quad \text{Ecuación 4}$$

25 donde A es el peso de la fracción de  $\alpha$ -celulosa filtrada (g), y W es el peso de la holocelulosa inicial libre de humedad y extractivos (g). Finalmente, la hemicelulosa se determinó por diferencia de la cantidad en porcentaje de la holocelulosa y celulosa.

Siguiendo esta metodología, los resultados obtenidos para piel de coco son los siguientes:

Hemicelulosa:  $14 \pm 1\%$

Celulosa:  $48 \pm 6\%$

Así, queda confirmado que la piel de coco corresponde a una materia prima de partida conforme a lo señalado en el objeto de presente invención, a saber: residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10% (en el caso de la piel de coco del 38%) y un contenido de hemicelulosa menor del 50% (en el caso de la piel de coco del 14%) y un contenido de celulosa menor del 55% (en el caso de la piel de coco del 48%).

### **3. Optimización del método de extracción de lignina de la piel de coco mediante el empleo de DES y US**

En la presente invención, se ha desarrollado y optimizado un método utilizando tecnología de ultrasonidos para la extracción de lignina de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10% y un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55% como es el caso de la piel de coco.

Este método se basa en el uso de un diseño experimental tipo Box-Behnken, que ha permitido identificar y optimizar las variables críticas del proceso para maximizar su eficiencia. Previamente a la implementación del diseño experimental, se ha llevado a cabo una evaluación exhaustiva del impacto de diversas variables clave. Entre estas, se ha considerado el tipo de DES empleado, la dilución del DES y el tamaño de partícula de la muestra de piel de coco una vez molida. Estas variables fueron estudiadas previamente para identificar las condiciones más adecuadas y garantizar una extracción eficiente y reproducible de lignina.

#### **3.1. Estudio de la Elección del Disolvente Eutéctico Profundo (DES) para la Extracción de Lignina**

La elección del DES adecuado es un paso crítico para maximizar la eficiencia en la extracción de lignina. En este estudio, se evaluaron diferentes DES mediante la medición de parámetros clave, como el contenido total de compuestos fenólicos (TPC), la capacidad antioxidante por el método FRAP (Ferric Reducing Antioxidant Power, por sus siglas en inglés), el pH en distintas diluciones, la temperatura alcanzada durante el proceso de extracción y el porcentaje de lignina extraída bajo condiciones controladas. El DES se prepara mezclando sus componentes bajo agitación constante y posteriormente calentándolos a 80°C durante 1 hora,

obteniendo como resultado final una disolución homogénea y viscosa. Con el fin de reducir esta viscosidad que puede presentar ciertos problemas a la hora de su manipulación en el proceso de extracción, se diluye con agua destilada con un factor de dilución determinado y se ajusta el pH con NaOH 0,1M, con el fin de poder fomentar la solubilidad de la lignina en nuestro disolvente.

Se analizaron tres formulaciones de DES mediante la medición de TPC y FRAP en ausencia de muestra, buscando identificar aquellos con menores valores en ambos parámetros, lo que indicaría una menor interferencia de fondo. Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 2:

**Tabla 2.** Resultados de contenido total de compuestos fenólicos (TPC) y capacidad antioxidante (FRAP) de diferentes disolventes eutécticos profundos (DES). Los valores de TPC se expresan en miligramos de equivalentes de ácido gálico por gramo de DES (mg GA/g DES) y los valores de FRAP en miligramos de equivalentes de Trolox por gramo de DES (mg Trolox/g DES).

DES	TPC (mg GA/g DES)	FRAP (mgTrolox/g DES)
Urea + Cloruro de colina	100	2,61
Urea + Cloruro de colina + Glicerol	74	2,79
Urea + Cloruro de colina + Etilenglicol	81	1,98

El DES compuesto por urea, cloruro de colina y glicerol presentó el menor contenido de TPC, mientras que la combinación de urea, cloruro de colina y etilenglicol mostró la menor capacidad antioxidante (FRAP). Por otro lado, el pH de los DES se midió en distintas diluciones para identificar aquellos que no presentaban acidez marcada ya que la lignina es soluble en medio básico. Los resultados se muestran en la tabla 3:

**Tabla 3.** Valores de pH de diferentes DES a distintas diluciones (1:5 y 1:10). En el caso de los DES formulados con ácidos oxálico y láctico, los valores de pH se presentan sin dilución. Los datos incluyen el promedio y la desviación estándar cuando corresponde.



DES	Dilución	pH
Urea + Cloruro de colina	1:5	6,75 ± 0,34
	1:10	6,55 ± 0,33
Urea + Cloruro de colina + Glicerol	1:5	8,42 ± 0,42
	1:10	8,3 ± 0,41
Urea + Cloruro de colina + Etilenglicol	1:5	8,73 ± 0,44
	1:10	8,72 ± 0,44
Cloruro de colina + Ácido Oxálico + Ácido Láctico	-	1,02 ± 0,15
Cloruro de colina + Ácido Oxálico	-	1,0 ± 0,4
Cloruro de colina + Ácido Láctico	-	1,01 ± 0,06

En base a los resultados obtenidos, los DES con pH ácido ( $\text{pH} < 2$ ), como los formulados con ácido oxálico y ácido láctico, fueron descartados debido a su incompatibilidad con las condiciones óptimas de extracción de lignina.

5

Con el fin de valorar el impacto de la temperatura en la eficiencia de extracción de lignina, se realizaron extracciones empleando la sonda de ultrasonidos bajo condiciones controladas (0,5 g de muestra de piel de coco en 25g de disolución de DES diluido a 1:5, 10 minutos, 70% de amplitud) para evaluar la temperatura alcanzada y el porcentaje de extracción de lignina. Se seleccionó un factor de dilución 1:5 para optimizar el proceso de extracción, ya que esta proporción permite reducir la viscosidad del sistema a niveles similares a los del agua, facilitando su manejo y asegurando una interacción eficiente sin añadir un exceso de agua que pudiera disminuir la eficacia del DES. Los resultados fueron los que se muestran en la Tabla 4:

15

**Tabla 4.** Porcentaje de extracción de lignina y temperaturas alcanzadas durante el proceso de extracción utilizando diferentes DES. Los valores de extracción se expresan como promedio  $\pm$  desviación estándar, y las temperaturas corresponden a las condiciones experimentales evaluadas.

DES	Extracción de lignina (%)	Temperatura (°C)
Cloruro de colina + Urea	1,550 ± 0,019	80,0 ± 1,5
Cloruro de colina + Urea + Glicerol	1,700 ± 0,013	83,0 ± 1,0
Cloruro de colina + Urea + Etilenglicol	1,30 ± 0,05	72 ± 6

El DES compuesto por **urea, cloruro de colina y glicerol** mostró el mayor porcentaje de extracción de lignina, alcanzando un valor de  $1,700 \pm 0,013\%$  además de una mayor estabilidad térmica en las condiciones evaluadas y pH básico.

### 5 3.2. Impacto del Tamaño de Partícula en la Extracción de Lignina

En el desarrollo de la presente invención, se llevó a cabo un análisis exhaustivo del efecto del tamaño de partícula inicial de la piel de coco triturada sobre el porcentaje de extracción de lignina, empleando DES y tecnología de ultrasonidos. El análisis de distribución de tamaños de partícula se realizó mediante técnicas de granulometría, identificándose una distribución bimodal en la muestra sin tamizar, con dos picos principales: un pico significativo alrededor de 50  $\mu\text{m}$  y otro pico más pronunciado alrededor de 200  $\mu\text{m}$ .

**Tabla 5.** Distribución inicial de tamaños de partícula de la piel de coco triturada sin tamizar, expresada en términos de tamaño promedio de las partículas (d, en micrómetros) y el porcentaje de volumen correspondiente a cada rango de tamaño.

d ( $\mu\text{m}$ )	Volumen (%)
688,7	20,5
258,7	37,9
56,4	41,6

La mayoría de las partículas presentaban tamaños inferiores a 258,7  $\mu\text{m}$ , con una notable fracción menor a 56,4  $\mu\text{m}$ . Sin embargo, la presencia de partículas más grandes (688,7  $\mu\text{m}$ ) indica heterogeneidad en la muestra. Por tanto, se procedió a tamizar las muestras y se realizó un nuevo análisis granulométrico de la muestra tamizada a 0,5 mm, mostrando una distribución más uniforme:

**Tabla 6.** Distribución del tamaño de partícula de la piel de coco tras el tamizado a 0,5 mm, expresada en términos de tamaño de partícula promedio (d, en micrómetros) y porcentaje de volumen correspondiente.

d ( $\mu\text{m}$ )	Volumen (%)
429,5	62,5
47,18	37,5

Estos resultados muestran una distribución más uniforme del tamaño de partícula tras el tamizado de la muestra de piel de coco a 0,5 mm. La mayor parte del volumen (62,5%) corresponde a partículas con un tamaño promedio de 429,5  $\mu\text{m}$ , mientras que el 37,5% restante está compuesto por partículas significativamente más pequeñas, con un tamaño promedio de 47,18  $\mu\text{m}$ .

Con el fin de evaluar el impacto de la uniformidad en el tamaño de partícula, se realizaron extracciones empleando la sonda de ultrasonidos bajo condiciones estándar (60 min, 0,5 g de muestra en 25 g de DES, 70% de amplitud) comparando muestras sin tamizar y tamizadas a 0,5 mm y se obtuvieron los siguientes resultados:

**Tabla 7.** Comparación del porcentaje de extracción de lignina entre muestras de piel de coco sin tamizar y tamizadas a 0,5 mm.

Muestra	Extracción de la lignina (%)
Sin tamizar	15
Tamizada 0,5 mm	24

El tamizado redujo el tamaño máximo de las partículas, aumentando significativamente el porcentaje de lignina extraída. Este incremento se atribuye a la mayor superficie específica disponible para la interacción con el disolvente. Por tanto, la uniformidad y reducción del tamaño de partícula tienen un impacto crítico en la eficiencia de extracción de lignina.

### 3.3. Optimización de la extracción de lignina de piel de coco mediante diseño experimental con sonda de ultrasonidos

Para la extracción de la lignina mediante el empleo de sonda de ultrasonidos, se seleccionaron como variables operativas la amplitud de la sonda de ultrasonidos (60-80%), el tiempo de extracción (60-90 minutos) y la cantidad de muestra (0,1-0,5 g). Estas condiciones se han establecido después de fijar el resto de las variables (tipo de DES, factor de dilución del DES y tamaño de partícula de la muestra de piel de coco de partida) para garantizar la reproducibilidad y maximizar la eficacia de la extracción. El método se inicia pesando la muestra tamizada y poniéndola en contacto con 25 g de DES; dilución 1:5 y ajustando a pH

9,5-10 ya que la sonda de ultrasonidos no permite trabajar a pH más básicos, ajustando posteriormente los parámetros seleccionados en la sonda de ultrasonidos.

5 Como variable respuesta del diseño experimental se ha seleccionado el contenido (%) de lignina en el extracto obtenido para poder evaluar el rendimiento de deslignificación al comparar el contenido de lignina extraída frente al contenido de lignina inicial presente en la muestra. La determinación del contenido de lignina se ha llevado a cabo mediante espectrofotometría UV-Visible y para ello se mide la absorbancia a la longitud de onda 288 nm. Los patrones de la recta de calibrado se preparan a partir de lignina pura. Para ello, se  
10 pesan 0,04 g de lignina y se diluyen con NaOH 0,1 M hasta una masa total de 20 gramos. A partir de esta disolución madre, se preparan diluciones en un rango de concentración de 10 a 50 mg/L.

15 Las variables seleccionadas (tiempo, cantidad de muestra y amplitud) y sus respectivos intervalos se introdujeron en el diseño, generando una serie de experimentos cuyas condiciones y resultados se presentan a continuación:

20 **Tabla 8.** Porcentaje de extracción de lignina obtenido en función del tiempo, la cantidad de muestra y la amplitud de la sonda de ultrasonidos, como parte del diseño experimental para optimizar el proceso.

Tiempo (min)	Cantidad de muestra (g)	Amplitud sonda (%)	Extracción (%)
90	0,5	70	16,53
67,5	0,5	80	19,53
67,5	0,3	70	7,12
90	0,3	60	5,7
67,5	0,3	70	11,44
45	0,1	70	3,43
67,5	0,3	70	11,4
67,5	0,5	60	3,69
67,5	0,1	80	32,28
45	0,3	60	2,39

90	0,3	80	34,33
45	0,3	80	6,11
67,5	0,3	70	8,9
67,5	0,3	70	10,85
90	0,1	70	28,86
45	0,5	70	4,08
67,5	0,1	60	7,21

Tras analizar los resultados obtenidos se elabora el diagrama de Pareto, representando en la figura 1, que muestra los efectos estandarizados de los factores analizados y sus interacciones en la eficiencia de extracción de lignina.

5

Así, dicha figura 1 muestra el diagrama de Pareto estandarizado para la extracción de lignina (%) mediante el empleo de sonda de ultrasonidos, recogiendo los efectos estandarizados de los factores analizados (amplitud, tiempo y cantidad de muestra) y sus interacciones en la eficiencia de extracción de lignina.

10

El eje horizontal de la figura 1 representa la magnitud del efecto estandarizado de cada variable y sus interacciones en el modelo. Los valores más altos indican una mayor influencia en la respuesta (el porcentaje de extracción). Esto permite priorizar las variables con un impacto más relevante sobre el proceso analizado.

15

El gráfico representado en la figura 1 muestra los efectos estandarizados de los factores y sus interacciones en el proceso de extracción. La amplitud (C) es el factor más influyente, seguido por el tiempo (A) y la cantidad de muestra (B). Las interacciones significativas, como AC (amplitud y tiempo), también son destacadas, indicando su importancia en la optimización del proceso. Los signos positivo (+) y negativo (-) representan el efecto de cada factor sobre la respuesta.

20

De los resultados obtenidos se concluye que:

Amplitud (C): Es el factor más influyente. Una mayor amplitud mejora significativamente la extracción debido a la cavitación ultrasónica, que genera ondas de choque capaces de romper

25

las paredes celulares y liberar lignina.

Tiempo de extracción (A): Es el segundo factor más importante. Tiempos más prolongados aumentan la interacción entre el disolvente y la muestra, mejorando la eficiencia del proceso.

Cantidad de muestra (B): Tiene un efecto negativo, ya que cantidades mayores pueden saturar el sistema y reducir la eficiencia de extracción.

Interacción entre amplitud y tiempo (AC): Es significativa, indicando que estos factores deben ser optimizados conjuntamente.

Las interacciones cuadráticas y otras interacciones entre los factores (como BB y AB) también tienen ciertos efectos, aunque menos pronunciados que los factores principales y la interacción AC. Los signos positivos y negativos de estas interacciones indican la naturaleza compleja de cómo estos factores influyen conjuntamente en la eficiencia de extracción.

La ecuación modelo obtenida para dicho ensayo es la siguiente:

$$\text{Extracción} = 137,94 - 1,29 \cdot \text{Tiempo} + 59,76 \cdot \text{Cantidad de muestra} - 3,89 \cdot \text{Amplitud} - 0,00028 \cdot \text{Tiempo}^2 - 0,72 \cdot \text{Tiempo} \cdot \text{Cantidad de muestra} + 0,03 \cdot \text{Tiempo} \cdot \text{Amplitud} - 85,66 \cdot \text{Cantidad de muestra}^2 - 1,14 \cdot \text{Cantidad de muestra} \cdot \text{Amplitud} + 0,02 \cdot \text{Amplitud}^2$$

Por tanto, las condiciones óptimas que establece el modelo se muestran en la Tabla 9:

**Tabla 9.** Condiciones óptimas determinadas para la extracción de lignina mediante sonda de ultrasonidos.

Factor	Óptimo
Tiempo (minutos)	90
Cantidad de muestra (g)	0,1
Amplitud (%)	80

La validación del modelo se realizó mediante experimentos por triplicado bajo estas condiciones óptimas. Los resultados experimentales indicaron una extracción de lignina de **61 ± 3%**, superior al valor teórico previsto por el modelo (48%) (Tabla 10). Este resultado confirma la robustez del método, respaldado por un coeficiente de determinación  $R^2$  del **98,16%**, que

demuestra la adecuación del modelo y los rangos seleccionados para las variables. Los parámetros significativos incluyen efectos principales (C, A, B), interacciones (AC) y términos cuadráticos (BB). Por tanto, los valores experimentales confirman la precisión del modelo, superando el valor predicho.

5

**Tabla 10.** Parámetros estadísticos y resultados de validación del modelo para la extracción de lignina.

	<b>R-squared</b>	<b>Párametros significativos</b>	<b>Valor predicho (%)</b>	<b>Valor experimental (%)</b>
<b>Extracción (%)</b>	98,16	C(+); A(+); AC(+); B(-), BB(+)	48,10	61 ± 3

El pH en la sonda de ultrasonidos no puede ser ajustado por encima de 10 debido a limitaciones del equipo, lo que podría influir en la solubilidad de la lignina, ya que se ha comprobado que esta presenta una mayor disolución en NaOH a un pH por encima de 12. Sin embargo, al comparar este método con la extracción convencional, que alcanza un rendimiento aproximado menor del 40% (Arni, 2018; Saini et al., 2024), se observa que el uso de ultrasonidos compensa esta limitación al mejorar significativamente la eficiencia del proceso. En particular, la amplitud de los ultrasonidos se destaca como un factor determinante, ya que intensifica la cavitación ultrasónica y facilita la despolimerización de la lignina, logrando resultados comparables o superiores a los métodos tradicionales en condiciones menos extremas.

### 3.4. Optimización de la Extracción de Lignina de Piel de Coco mediante Diseño Experimental con Baño de Ultrasonidos

Para la extracción de lignina de la piel de coco mediante el empleo de baño de ultrasonidos se han optimizado un conjunto de variables, incluyendo el tiempo de extracción (60-90 minutos), el pH (10-13) y la temperatura (50-80 °C). Estas variables se estudiaron utilizando un diseño experimental tipo Box-Behnken, generando una combinación de experimentos cuyas condiciones y resultados se presentan a continuación:

**Tabla 11.** Resultados del diseño experimental para la extracción de lignina utilizando baño de

ultrasonidos. Los experimentos se realizaron variando el tiempo, la temperatura y el pH para determinar su impacto en el porcentaje de extracción, permitiendo identificar las condiciones óptimas del proceso.

Tiempo (h)	Temperatura (°C)	pH	Extracción (%)
4	65	10	9,782
2,75	65	11,5	12,6511
2,75	50	10	2,49
4	80	11,5	17,02
1,5	65	13	101,93
2,75	80	13	105,26
4	50	11,5	15,49
1,5	65	10	9,69
2,75	65	11,5	14
2,75	50	13	84
4	65	13	108,56
1,5	80	11,5	11,99
2,75	80	10	9,07
2,75	65	11,5	14,14
1,5	50	11,5	14,87
2,75	65	11,5	19,2
2,75	65	11,5	11,56

5

Para el desarrollo del método de extracción, se optó por un enfoque que combinara eficiencia y escalabilidad. Tras la producción del DES, este se diluye con agua destilada y después se ajusta el pH a los niveles determinados. Posteriormente, la solución diluida se mezcla con 0,1 gramos de la muestra de piel de coco tamizada. Los vasos de reacción son sometidos a un baño de ultrasonidos, previamente precalentado a la temperatura correspondiente, bajo las condiciones experimentales establecidas.

10

La elección del factor de dilución del DES se realizó tras una serie de pruebas con baño de ultrasonidos, empleando condiciones controladas: pH 13; 1,3 horas de tratamiento, y 0,1 gramos de muestra en 25 gramos de DES diluido, sin añadir NaOH. Los resultados no mostraron diferencias estadísticamente significativas entre el % de extracción obtenido

15



empleando una dilución 1:10 al comparar con el valor obtenido para la dilución 1:5; por tanto, se ha considerado que la dilución 1:10 permite un menor consumo de DES, y se ha optado por este factor de dilución.

- 5 Esta decisión se fundamenta en la necesidad de desarrollar un método más escalable y sostenible. Además, el método integra el uso de ultrasonidos, cuya amplitud constituye un factor crítico para la eficiencia del proceso, al potenciar la cavitación ultrasónica y la interacción entre el DES y la lignina, lo que permite mantener una extracción efectiva incluso con una dilución mayor.

10

Para llevar a cabo los experimentos, se pesaron 0,1 g muestra de piel de coco tamizada (cantidad óptima del diseño experimental anterior) y se pusieron en contacto con 25 g de DES diluido 1: 10, a una potencia del baño de ultrasonidos de 195W y 50-60Hz. El diagrama de Pareto generado a partir del análisis de los experimentos (Figura 2) muestra los efectos estandarizados de las variables y sus interacciones sobre la eficiencia de extracción de lignina.

15

Al igual que en la figura 1, el eje horizontal de la figura 2 representa la magnitud del efecto estandarizado de cada variable y sus interacciones en el modelo. Los valores más altos indican una mayor influencia en la respuesta (el porcentaje de extracción). Esto permite priorizar las variables con un impacto más relevante sobre el proceso analizado.

20

De los resultados obtenidos, se concluye que:

pH (C): Es el factor más significativo en la extracción de lignina mediante el empleo de un baño de ultrasonidos. Su efecto positivo indica que un aumento en el pH mejora considerablemente el porcentaje de extracción. Este comportamiento podría deberse a una mayor disolución de la lignina en medios alcalinos, favoreciendo su liberación.

25

Término cuadrático del pH (CC): También tiene un impacto importante, lo que resalta la sensibilidad del proceso a los valores de pH. Esto sugiere la necesidad de mantener un pH óptimo para maximizar la eficiencia de extracción.

30

Temperatura (B): Aunque menos influyente que el pH, la temperatura tiene un efecto positivo moderado, favoreciendo la extracción al incrementar la energía disponible para descomponer las estructuras lignocelulósicas.

Tiempo (A): Tiene un efecto muy limitado en comparación con las otras variables, indicando que extender el tiempo de extracción más allá de ciertos límites no produce mejoras

35

significativas.

Interacciones y términos menores: Las interacciones entre las variables, como AA, BB y BC, presentan efectos menos pronunciados. No obstante, estas interacciones complejas deben considerarse para optimizar las condiciones experimentales.

5

**Tabla 12.** Parámetros estudiados en el diseño experimental de extracción mediante el baño de ultrasonidos. Valor experimental se expresa como valor medio  $\pm$  desviación estándar (n=9).

	<b>R-squared</b>	<b>Parámetros significativos</b>	<b>Valor teórico (%)</b>	<b>Valor experimental (%)</b>
<b>Extraction (%)</b>	99,31	C(+); CC(+)	100	100 $\pm$ 10

El modelo predice un valor teórico de extracción del 100%, con un coeficiente de determinación  $R^2$  del 99,31%, lo que indica una alta precisión en el ajuste del modelo. Para validar el modelo, se realizaron experimentos por triplicado en 3 días diferentes (n=9) en las condiciones óptimas (Tabla 12), obteniéndose un porcentaje de extracción experimental de 100  $\pm$  10%. Este resultado confirma la robustez del modelo y resalta el impacto de las variables seleccionadas.

15

**Tabla 13.** Condiciones óptimas determinadas para la extracción de lignina mediante el uso de baño de ultrasonidos y DES.

<b>Factor</b>	<b>Óptimo</b>
<b>Tiempo (minutos)</b>	90
<b>Temperatura (°C)</b>	65
<b>pH</b>	13

En este caso, el análisis estadístico y experimental demuestra que el pH es la variable más influyente en la extracción de lignina, seguido por la temperatura y, en menor medida, el tiempo. La interacción entre las variables es limitada, pero el término cuadrático del pH subraya la importancia de mantener un nivel óptimo para maximizar la eficiencia del proceso. Este enfoque proporciona una base sólida para la optimización de procesos de extracción utilizando baño de ultrasonidos.

En este estudio, se observó un efecto sinérgico inesperado y no descrito previamente en la bibliografía al combinar un DES ternario, concretamente formado por cloruro de colina, glicerol y urea con un pH alcalino extremo (pH 13) para la extracción de lignina de piel de coco, utilizando un baño de ultrasonidos (US). Este efecto se traduce en un porcentaje de extracción de lignina significativamente elevado (~100%), que no se deduce de los mecanismos de extracción descritos en el estado de la técnica, ni ha sido reportado específicamente para piel de coco. En condiciones altamente alcalinas (pH 13), la lignina, una macromolécula compuesta de unidades fenólicas, se disuelve fácilmente debido a la desprotonación de sus grupos fenólicos. Este fenómeno debilita las interacciones lignina-celulosa y lignina-hemicelulosa en la matriz lignocelulósica, facilitando su liberación. Estudios previos han reportado que soluciones alcalinas (NaOH) son eficaces para la extracción de lignina en otros sustratos lignocelulósicos, pero no bajo las condiciones específicas de este trabajo combinando DES y US (Melro et al, 2020). Además, el DES ternario empleado en este estudio, compuesto por un donador de enlaces de hidrógeno (HBD) y un aceptador de enlaces de hidrógeno (HBA), fomenta interacciones químicas directas con los grupos fenólicos de la lignina. Estas interacciones debilitan aún más la estructura de la lignina, promoviendo su extracción. La literatura ha demostrado que los DES pueden romper enlaces hidrógeno y estructuras aromáticas (Francisco et al, 2013), pero su uso combinado con condiciones de pH 13 y ultrasonidos no ha sido reportado para piel de coco. El mecanismo de acción del DES ternario compuesto por cloruro de colina, urea y glicerol se basa en la capacidad de estos componentes para interactuar de manera sinérgica con la lignina a través de enlaces de hidrógeno. Este sistema eutéctico contiene:

- **Cloruro de colina (HBA, aceptador de enlaces de hidrógeno):** Este componente aporta una base fuerte capaz de estabilizar los protones liberados durante la desprotonación de los grupos fenólicos de la lignina en condiciones de pH 13. Esto facilita la ruptura de enlaces hidrógeno internos en la lignina, debilitando su estructura tridimensional (Alonso et al, 2018).
- **Urea (HBD, donador de enlaces de hidrógeno):** La urea interactúa directamente con los grupos hidroxilo y fenólicos de la lignina, formando enlaces de hidrógeno que alteran la estabilidad estructural de esta biomolécula. Estas interacciones reducen las fuerzas intermoleculares entre lignina y otros componentes de la matriz lignocelulósica, como celulosa y hemicelulosa, promoviendo su solubilización (Ruesgas-Ramon et al 2023).
- **Glicerol (HBD, donador de enlaces de hidrógeno):** El glicerol refuerza las interacciones entre el DES y la lignina al ofrecer múltiples sitios para formar enlaces

de hidrógeno con los grupos funcionales de la lignina. Además, su naturaleza polar mejora la solvencia del sistema, favoreciendo la dispersión y extracción de lignina (Bergua, 2017).

La combinación del DES ternario con el pH alcalino extremo crea un medio químico único que no solo facilita la disolución de la lignina por el pH, sino que también mejora la eficiencia de extracción mediante interacciones directas entre los HBD del DES y los grupos fenólicos desprotonados de la lignina. Este efecto sinérgico es amplificado por la cavitación ultrasónica, que aumenta la penetración del DES en la matriz lignocelulósica, generando un impacto mecánico que promueve la liberación de lignina. Tras una revisión bibliográfica exhaustiva, no se ha encontrado ningún documento que describa el uso del DES empleado en este trabajo combinado con pH 13 y ultrasonidos para la extracción de lignina en piel de coco. Los estudios previos sobre DES se centran en aplicaciones para otras matrices lignocelulósicas, como madera o paja de trigo, pero las condiciones específicas utilizadas en este estudio (DES ternario, pH 13 y US) no han sido exploradas. Además, el efecto sinérgico descrito no puede deducirse de los trabajos existentes, ya que los mecanismos de interacción entre el DES ternario empleado en este estudio y los grupos funcionales de la lignina no han sido estudiados en condiciones alcalinas extremas. Por tanto, el uso combinado del DES ternario cloruro de colina, urea y glicerol y pH 13 crea un sistema eficiente e innovador para la extracción de lignina y la aplicación de los US amplifica los efectos del DES y el pH, mejorando significativamente el rendimiento del proceso de extracción, tal como lo confirman los resultados obtenidos en el marco de la presente invención.

Al comparar el método desarrollado objeto de esta invención con el método convencional basado en la extracción con NaOH, la combinación de ultrasonidos, DES y pH 13 no solo supera significativamente al método convencional con NaOH en términos de rendimiento de extracción, sino que también introduce un enfoque más sostenible y eficiente para la extracción de lignina en matrices lignocelulósicas como la piel de coco. A diferencia del NaOH, el DES ternario interactúa directamente con los grupos fenólicos de la lignina mediante enlaces de hidrógeno, lo que no solo mejora la extracción, sino que también permite mantener la estabilidad química de otras fracciones lignocelulósicas. Estos resultados refuerzan la innovación y aplicabilidad del método propuesto, destacando su potencial para su escalado industrial.

### 3.5. Combinación de Sonda y Baño de Ultrasonidos con el fin de mejorar el rendimiento

**de extracción de lignina de la piel de coco**

En el marco del desarrollo de la presente invención, se ha estudiado una innovadora combinación de sonda y baño de ultrasonidos para optimizar el proceso de extracción de lignina a partir de piel de coco. Este método combina las ventajas individuales de ambos equipos de ultrasonidos descritos anteriormente, logrando un aumento significativo en la eficiencia del proceso de extracción y reduciendo drásticamente el tiempo de extracción.

La metodología empleada ha consistido en una primera etapa de pretratamiento de la muestra y rotura de la matriz vegetal con la sonda de ultrasonidos, seguido de un segundo proceso de extracción empleando un baño de ultrasonidos bajo condiciones controladas. Las condiciones específicas han sido las que se detallan a continuación:

**Etapla 1: Sonda de ultrasonidos:** Dilución del DES (cloruro de colina, urea y glicerol) en proporción 1:10 (DES/Agua). Posteriormente, 0,1 g de piel de coco tamizada se ponen en contacto con 25 g de DES diluido 1:10). Tras ello, se ajusta el pH de la mezcla a 9,5. Aplicación de ultrasonidos durante 5 minutos al 80% de amplitud.

**Etapla 2: Baño de ultrasonidos (195W):** Calentamiento previo del baño a 65°C. Ajuste del pH de la mezcla muestra de coco y DES a un valor de 13 y extracción de la lignina bajo esas condiciones durante 30 min.

Mediante la aplicación de esta combinación, se ha obtenido un rendimiento de extracción de lignina de la piel de coco del  $80 \pm 7$  %, comparable al rendimiento alcanzado tras 60 minutos utilizando únicamente el baño de ultrasonidos en las condiciones detalladas (pH=13; 65°C, 60 min) que ha sido de  $82 \pm 8$ %.

La combinación descrita de ambos equipos de ultrasonidos permite completar la extracción en tan solo 35 minutos, en comparación con los 60 minutos requeridos cuando se utiliza exclusivamente el baño de ultrasonidos. Esto representa una **disminución del 41,6% en el tiempo total del proceso de extracción**, lo que se traduce en una mayor eficiencia operativa.

Por otro lado, mientras que el uso exclusivo de la sonda de ultrasonidos está limitado a un pH máximo de 10 debido a restricciones de uso del fabricante del equipo, la transición al baño de ultrasonidos permite trabajar a un pH de 13. Este ajuste es fundamental para mejorar la solubilidad de la lignina, ya que **en condiciones alcalinas extremas se debilitan las**  
5 **interacciones lignina-celulosa y lignina-hemicelulosa**, facilitando la liberación de la lignina y mejorando así el proceso de extracción.

Además, la aplicación inicial de ultrasonidos mediante el empleo de la sonda genera una  
10 disrupción mecánica que aumenta la superficie de contacto entre la piel de coco y el DES empleado, optimizando la posterior acción del baño de ultrasonidos. Esto reduce la energía requerida en el baño al disminuir la duración de la etapa más intensiva en términos de consumo energético. Por otro lado, los experimentos realizados confirman la necesidad de emplear en la segunda etapa de extracción un baño de ultrasonidos. Cuando se realiza la  
15 extracción combinando únicamente la sonda de ultrasonidos (pH 9,5, 5 minutos al 80% de amplitud) y una posterior basificación (pH 13), el rendimiento de extracción obtenido ha sido de tan solo  $11,8 \pm 1,0\%$ , demostrando que la etapa con el baño de ultrasonidos es indispensable para alcanzar una extracción eficiente y completa.

Por todo lo expuesto, se ha demostrado en la presente invención que la combinación de sonda  
20 y baño de ultrasonidos permite aprovechar el impacto mecánico de alta intensidad de la sonda y el calentamiento uniforme del baño, generando un efecto sinérgico que acelera la descomposición de la matriz lignocelulósica. Este efecto sinérgico resulta en un rendimiento superior al 80% en menos de 60% del tiempo requerido por el método convencional.

El pretratamiento con sonda de ultrasonidos mejora significativamente la permeabilidad del  
25 DES en la piel de coco ya que la cavitación inducida por la sonda genera microfracturas en la matriz lignocelulósica, aumentando la superficie activa para las interacciones químicas entre el DES y los grupos funcionales de la lignina. Esto también permite una distribución más uniforme del calor en la etapa de baño, mejorando la eficiencia del proceso de extracción de  
30 lignina.

Por otro lado, el ajuste del pH a 13 en la etapa del empleo del baño de ultrasonidos maximiza la solubilidad de la lignina, lo que no es posible con la sonda de ultrasonidos debido a sus

limitaciones operativas. Este hecho pone de manifiesto la importancia de la combinación de ambos dispositivos, superando las limitaciones individuales de cada uno.

El efecto sinérgico comentado se demuestra ya que la aplicación únicamente de la sonda durante 5 min en las condiciones comentadas y la basificación posterior del medio conduce sólo a un rendimiento de extracción de lignina del 11% aproximadamente mientras que la aplicación sólo del baño de ultrasonidos requiere de tiempos largos para alcanzar rendimientos superiores al 80%. La combinación de ambos métodos, por tanto y debido al efecto sinérgico, permite obtener un rendimiento superior al 90% en 40 min.

En experimentos llevados a cabo mediante la aplicación de la sonda de ultrasonidos durante 10 min en las mismas condiciones detalladas en la etapa 1 y posterior aplicación de la etapa 2, se ha obtenido un valor de rendimiento de lignina extraída de  $90 \pm 10\%$ .

Por tanto, la combinación de sonda y baño de ultrasonidos representa un avance significativo en la optimización del proceso de extracción de lignina de piel de coco. Este enfoque reduce el tiempo del proceso, mejora la eficiencia de extracción y permite trabajar en condiciones óptimas de pH. Además, introduce un método más sostenible y escalable, con potencial para aplicaciones industriales. Estas ventajas destacan la innovación y aplicabilidad del método propuesto, posicionándolo como una alternativa superior frente a las técnicas convencionales.

### **3.6. Recuperación de la Lignina extraída de Piel de Coco mediante Diseño Experimental con Baño de Ultrasonidos**

Tras el proceso de extracción de la lignina, es fundamental considerar que esta precipita en condiciones de pH ácido. En consecuencia, con el fin de recuperar la lignina extraída, el primer paso consiste en acidificar el extracto de lignina filtrado con HCl 37% (12 M) para crear un medio ácido (pH 3-4). Posteriormente, se realiza una centrifugación con el fin de separar la lignina sólida en suspensión acuosa para luego someter a la lignina obtenida a un proceso de filtración y secado para eliminar el exceso de agua y obtener el material en su forma seca y estable.

Tras el proceso de extracción, se realizaron pruebas a diferentes niveles de pH ácido para

determinar el rango más adecuado para la obtención de lignina en su fracción sólida. Los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 14:

**Tabla 14.** Rendimiento de lignina obtenido tras la extracción a diferentes valores de pH.

pH	Rendimiento de lignina (%)
2	8 ± 4
3	19 ± 6
4	17 ± 4

5

Los datos muestran que los pH 3 y 4 proporcionan un mayor rendimiento en comparación con el pH 2, lo que sugiere que este rango es el más adecuado para la recuperación de lignina en fracción sólida. Por esta razón, se seleccionó el rango de pH 3-4 como el más adecuado para la obtención de lignina en forma sólida.

10

El rendimiento de lignina se calculó considerando que la piel de coco contiene aproximadamente un 38% de lignina en su composición. Para el caso de pH 3, se obtuvo un rendimiento del 19%, calculado mediante la siguiente fórmula:

$$\text{Rendimiento}_{\text{lignina}} = \frac{m_{\text{lignina}}}{m_{\text{piel de coco}} \cdot \% \text{lignina}}$$

15 donde:

- $M_{\text{lignina}}$ : Masa de lignina obtenida tras la extracción.
- $M_{\text{piel de coco}}$ : Masa inicial de piel de coco utilizada en el proceso.
- $\% \text{lignina}$ : Porcentaje de lignina presente en la piel de coco.

20

Este enfoque garantiza una recuperación eficiente de la lignina, maximizando el rendimiento en condiciones óptimas de pH. La elección de estos parámetros es clave para la implementación industrial del proceso.

#### 25 **4. Resultados obtenidos del método de extracción de lignina propuesto con sonda y baño de ultrasonidos para residuos agroalimentarios diferentes a la piel de coco**

Se plantea la misma metodología combinada detallada en el apartado 3.5 (sonda y baño de ultrasonidos) y en las mismas condiciones que para la piel de coco (es decir, que todas las



etapas seguidas son exactamente igual a lo detallada en el apartado 3.5) para dos muestras diferentes adicionales que corresponden a: corona y cáscara de piña.

En primer lugar, cabe señalar que para dichas muestras de corona y cáscara de piña se ha cuantificado el contenido de lignina inicial, hemicelulosa y celulosa, siguiendo la metodología detallada en el apartado 2. Así, se detalla seguidamente los valores obtenidos:

Corona piña:

Extractivos:  $79 \pm 2\%$

Lignina inicial:  $13,65 \pm 0,02\%$

Holocelulosa:  $54,5 \pm 0,2\%$

Celulosa: 25-30%

Hemicelulosa 20-30%

Cáscara de piña:

Extractivos:  $70,80 \pm 0,02\%$

Lignina inicial:  $22,92 \pm 0,09\%$

Holocelulosa:  $33,14 \pm 0,05\%$

Celulosa: 15-30%

Hemicelulosa: 20-35%

A la vista de los resultados obtenidos se confirma que la corona y la cáscara de piña corresponden a residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10% y un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%.

Seguidamente se detallan los resultados relativos al contenido de lignina extraída (expresada en %) siguiendo el método la presente invención detallado en el apartado 3.5 respecto las dos muestras analizadas.

Corona piña:  $84 \pm 8\%$  lignina extraída

Cáscara piña:  $101 \pm 2\%$  lignina extraída

Así, pues los valores de porcentaje de lignina extraída vienen a confirmar que al combinar la sonda de ultrasonidos con el baño de ultrasonidos, siguiendo las etapas del método de extracción objeto de la presente invención, se alcanzan % de extracción de lignina mayores del 80% respecto del residuo agroalimentario de partida.

## **5. Resultados obtenidos del método de extracción de lignina propuesto con baño de ultrasonidos para residuos agroalimentarios diferentes a la piel de coco**

Seguidamente se muestran resultados de extracción de lignina en residuos agroalimentarios diferentes a la piel de coco.

Conforme a las enseñanzas obtenidas en el apartado 3.4, se realiza la metodología detallada en la reivindicación 1, es decir, para llevar a cabo los experimentos, se pesaron 0,1 g muestra del residuo agroalimentario a analizar y se pusieron en contacto con 25 g de DES diluido 1:10, a una potencia del baño de ultrasonidos de 195W y 50-60Hz.

Antes de proceder con la inmersión en el baño, se ajusta a un pH de 13 la mezcla DES ternario diluido con el correspondiente residuo agroalimentario tamizado.

La metodología se realiza siguiendo las etapas detalladas en el apartado 3.4 para la piel de coco, sin embargo, ahora se analizan las muestras de: corona y cáscara de piña.

Debemos recordar que la cuantificación del contenido de lignina inicial, hemicelulosa y celulosa para dichas muestras de corona y cáscara de piña se ha efectuado en el apartado anterior (siguiendo la metodología detallada en el apartado 2). Así, se detalla seguidamente los valores obtenidos:

Corona piña:  $100 \pm 10\%$  lignina extraída

Cáscara piña:  $100 \pm 3\%$  lignina extraída

Por tanto, los resultados obtenidos demuestran una extracción de lignina mayor del 80% en los residuos agroalimentarios analizados diferentes a la piel de coco.

## REIVINDICACIONES

1- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55% que comprende las siguientes etapas:

- triturado del residuo agroalimentario;
- homogeneización del residuo agroalimentario mediante tamizado obteniendo el residuo agroalimentario tamizado;
- dilución en agua de un DES ternario a base de urea, cloruro de colina y glicerol;
- mezclado del DES ternario diluido con el residuo agroalimentario tamizado;
- ajuste de la mezcla a un pH entre 12,5 y 13,5 para maximizar la solubilidad de la lignina a extraer del residuo agroalimentario tamizado;
- inmersión de la mezcla obtenida en la etapa anterior, en un baño de ultrasonidos a temperatura constante durante la extracción de la lignina, donde el baño de ultrasonidos ha sido previamente calentado a una temperatura de, al menos, 65°C, obteniendo un extracto de lignina;
- acidificación del extracto de lignina obtenido, precipitación de lignina y filtrado para la recuperación de la lignina sólida,

donde el DES ternario actúa con los grupos fenólicos de la lignina contenida en el residuo agroalimentario mediante interacciones directas entre donadores de enlaces de hidrógeno del DES ternario y grupos fenólicos desprotonados de la lignina, obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 80% del residuo agroalimentario.

2- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que en la homogeneización del residuo agroalimentario se realiza el tamizado entre 0,75 y 0,25 mm.

3- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 2, caracterizado por que en la homogeneización del residuo agroalimentario se realiza el tamizado a 0,5 mm obteniéndose un tamaño de partícula promedio entre 47 y 429 micrómetros.

4- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que la dilución en agua del DES ternario a base de urea, cloruro de colina y glicerol se realiza en una proporción 1:10 (DES/Agua).

5- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que el mezclado se realiza poniendo en contacto 0.1 gramos de residuo agroalimentario tamizado y 25 gramos de DES ternario diluido.

6- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que el pH de la mezcla DES ternario diluido y residuo agroalimentario tamizado está ajustado a 13.

7- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que el baño de ultrasonidos se calienta a una temperatura entre 65°C y 80°C.

8- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que en el baño de ultrasonidos se aplica una potencia de, al menos, 195W y una frecuencia entre 50 y 60Hz.

9- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 1, caracterizado por que tras la inmersión de la mezcla y extracción de lignina del residuo agroalimentario en el baño de ultrasonidos, se procede a la acidificación del extracto de lignina filtrado obtenido con HCl para la recuperación de la lignina sólida.

10- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en

lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según reivindicación 9, caracterizado por que en la acidificación del extracto de lignina filtrado el pH se ajusta a un pH entre 3 y 4.

5 11- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que antes del ajuste de la mezcla a un pH entre 12,5 y 13,5, la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se ajusta a un pH de entre 9,5 y 10, y se aplican  
10 ultrasonidos mediante una sonda de ultrasonidos, con una amplitud entre 60 y 80% y un tiempo de extracción de, al menos, 5 minutos, generando una cavitación ultrasónica que potencia la penetración del DES ternario en la lignina del residuo agroalimentario y la despolimerización de la lignina; de forma que la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se mantiene sumergida en el baño de ultrasonidos durante un tiempo menor  
15 o igual a 35 minutos obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 84% del residuo agroalimentario.

12- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de  
20 celulosa menor del 55%, según la reivindicación 11, caracterizado por que la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se mantiene sumergida en el baño de ultrasonidos durante, al menos, 40 minutos obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 90% del residuo agroalimentario.

25 13- Método de extracción de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de celulosa menor del 55%, según la reivindicación 11, caracterizado por que la aplicación de ultrasonidos mediante la sonda de ultrasonidos es de 10 minutos y la mezcla del residuo agroalimentario y el DES ternario diluido se mantiene sumergida en el baño de ultrasonidos  
30 durante, al menos, 30 minutos obteniéndose una extracción de lignina de, al menos, el 90% del residuo agroalimentario.

14- Uso del producto obtenido por el método descrito en cualquiera de las reivindicaciones anteriores para la obtención de lignina a partir de residuos agroalimentarios con un contenido  
35 en lignina mayor del 10%, un contenido de hemicelulosa menor del 50% y un contenido de

celulosa menor del 55% como materia prima en aplicaciones industriales, incluyendo sectores químicos, farmacéuticos, cosméticos y de materiales avanzados.

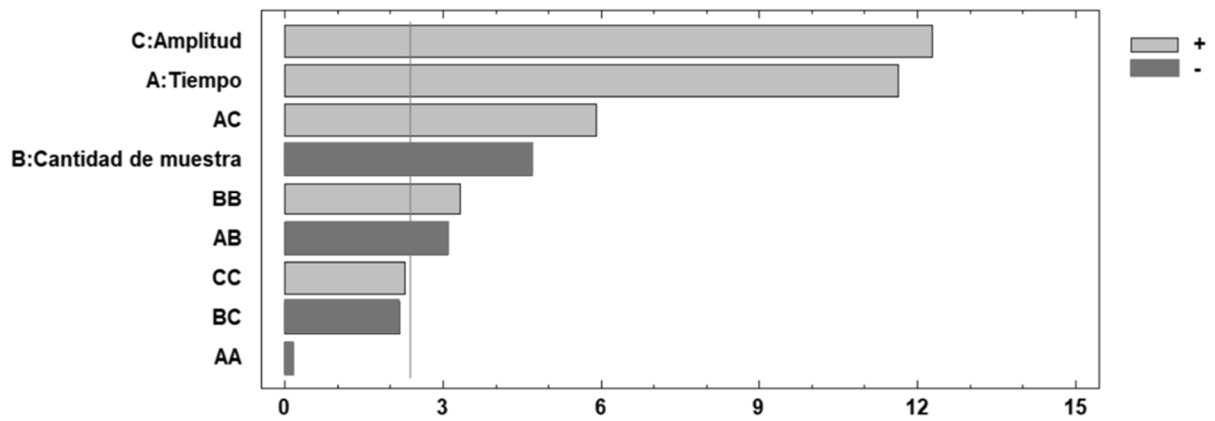


FIG. 1

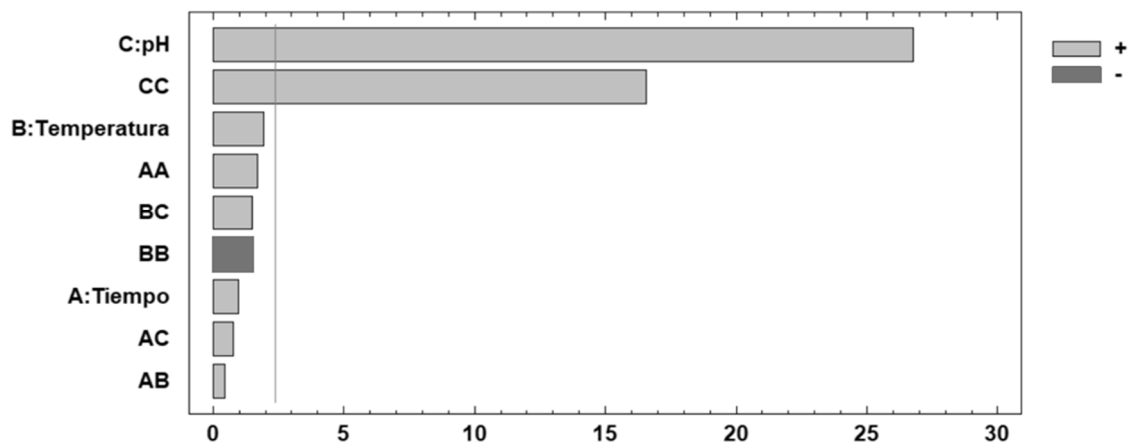


FIG. 2



- 21 N.º solicitud: 202530213
- 22 Fecha de presentación de la solicitud: 12.03.2025
- 32 Fecha de prioridad:

INFORME SOBRE EL ESTADO DE LA TECNICA

51 Int. Cl. :	Ver Hoja Adicional
---------------	--------------------

DOCUMENTOS RELEVANTES

Categoría	56 Documentos citados	Reivindicaciones afectadas
A	SÁNCHEZ ROMERO, R. et al.: " <i>Enhancing Lignin Recovery from Coconut Husk: Innovations with Deep Eutectic Solvents for Sustainable Biomass Processing</i> " 2024, WSFSN-2024 WORLD SUMMIT ON FOOD SCIENCE & NUTRITION, Resumen.	1-14
A	ÁLVAREZ, C. et al.: " <i>Exploring Recent Advances in Lignocellulosic Biomass Waste Delignification Through the Combined Use of Eutectic Solvents and Intensification Techniques</i> ", Processes, 2024, Vol. 12, Nº 11, artículo nº 2514, DOI: <a href="https://doi.org/10.3390/pr12112514">https://doi.org/10.3390/pr12112514</a> , todo el documento; en particular: Abstract, apartado 4: <i>Eutectic Solvents for Delignification</i> ; figura 3; apartado 5.1: <i>Enhanced Delignification Using ES Combined with Ultrasound-Assisted Extraction (UAE)</i> y tabla 2.	1-14
A	QINGHUA, J. et al.: " <i>Efficient removal of lignin from vegetable wastes by ultrasonic and microwave-assisted treatment with ternary deep eutectic solvent</i> ", 2020, Industrial Crops and Products, Vol. 149, artículo nº 112357, ISSN 0926-6690, DOI: 10.1016/j.indcrop.2020., todo el documento; en particular: resumen y conclusiones.	1-14
A	CN 116716751 A (XU YUANYUAN) 08/09/2023	1-14
A	CN 113292738 A (INST OF ENVIRONMENT AND SUSTAINABLE DEVELOPMENT IN AGRICULTURE CHINESE ACADEMY OF AGRICULTURAL SCIEN) 24/08/2021	1-14
A	SRINIVASAN, S. et al.: " <i>One pot green process for facile fractionation of sorghum biomass to lignin, cellulose and hemicellulose nanoparticles using deep eutectic solvent</i> ", 2024, International Journal of Biological Macromolecules, Vol. 277, Nº part 3, artículo nº 134295, ISSN 0141-8130, DOI: 10.1016/j.ijbiomac.2024.134295, todo el documento; en particular: 2º párrafo, página 2.	1-14
<div><div>Categoría de los documentos citados</div><div>X: de particular relevancia Y: de particular relevancia combinado con otro/s de la misma categoría A: refleja el estado de la técnica</div></div> <div><div>O: referido a divulgación no escrita P: publicado entre la fecha de prioridad y la de presentación de la solicitud E: documento anterior, pero publicado después de la fecha de presentación de la solicitud</div></div>		
<div><div>El presente informe ha sido realizado</div><div><input checked="" type="checkbox"/> para todas las reivindicaciones</div><div><input type="checkbox"/> para las reivindicaciones nº:</div></div>		
Fecha de realización del informe 18.11.2025	Examinador A. Maquedano Herrero	Página 1/2



## CLASIFICACIÓN OBJETO DE LA SOLICITUD

**C08J11/24** (2006.01)  
**C08H7/00** (2011.01)  
**C08L97/00** (2006.01)  
**B01D11/02** (2006.01)  
**B09B3/80** (2022.01)  
**B09B101/70** (2022.01)

Documentación mínima buscada (sistema de clasificación seguido de los símbolos de clasificación)

C08J, C08H, C08L, B01D, B09B

Bases de datos electrónicas consultadas durante la búsqueda (nombre de la base de datos y, si es posible, términos de búsqueda utilizados)

AbS colección patentes, AbS colección literatura no patente, INVENES/LATIPAT