

# 黄秋葵籽油的超临界 CO<sub>2</sub> 萃取 及其软胶囊制备工艺研究

汤须崇<sup>1</sup>, 彭梦琪<sup>1</sup>, 林雯青<sup>1</sup>, 邓爱华<sup>2</sup>, 牛文静<sup>1</sup>

(1. 华侨大学 化工学院, 福建 厦门 361021; 2. 湖南文理学院 生命与环境科学学院, 湖南 常德 415000)

**摘要:**以黄秋葵籽提油率为响应值,采用响应面法优化黄秋葵籽油超临界 CO<sub>2</sub> 萃取工艺;以崩解时限为评价指标,采用正交实验对黄秋葵籽油软胶囊制备工艺进行优化。结果表明:超临界 CO<sub>2</sub> 萃取黄秋葵籽油的最佳工艺条件为萃取压力 30 MPa、萃取温度 60 ℃、萃取时间 60 min,在此条件下提油率为 17.23%;黄秋葵籽油软胶囊最佳制备工艺条件为水与明胶质量比 1:1、明胶与甘油质量比 3:1、溶胶温度 80 ℃、溶胶时间 10 h,在此条件下黄秋葵籽油软胶囊的崩解时限为 30.3 min,符合《中国药典》中软胶囊崩解时限不大于 1 h 的要求。

**关键词:**黄秋葵籽油;超临界 CO<sub>2</sub> 萃取;软胶囊;制备;工艺优化

**中图分类号:**TS224.4;R944.5 **文献标识码:**A **文章编号:**1003-7969(2021)05-0019-04

## Supercritical CO<sub>2</sub> extraction of okra seed oil and preparation of its soft capsule

TANG Xuchong<sup>1</sup>, PENG Mengqi<sup>1</sup>, LIN Wenqing<sup>1</sup>, DENG Aihua<sup>2</sup>, NIU Wenjing<sup>1</sup>

(1. College of Chemical Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, Fujian, China;

2. College of Life and Environmental Sciences, Hunan University of Arts and  
Science, Changde 415000, Hunan, China)

**Abstract:** Taking the oil extraction rate of okra seed as the response value, the response surface methodology was used to optimize the supercritical CO<sub>2</sub> extraction process of okra seed oil. Taking the disintegration time as the evaluation index, the preparation of okra seed oil soft capsule was optimized by orthogonal experiment. The results showed that the optimal supercritical CO<sub>2</sub> extraction conditions of okra seed oil were obtained as follows: extraction pressure 30 MPa, extraction temperature 60 ℃, extraction time 60 min, and under these conditions, the oil extraction rate was 17.23%. The optimal preparation process of okra seed oil soft capsule were obtained as follows: mass ratio of water to gelatin 1:1, mass ratio of gelatin to glycerin 3:1, sol temperature 80 ℃, sol time 10 h, and under these conditions, the disintegration time of the okra seed oil soft capsule was 30.3 min, which met the requirement of disintegration time not longer than 1 h of soft capsule in *Chinese Pharmacopoeia*.

**Key words:** okra seed oil; supercritical CO<sub>2</sub> extraction; soft capsule; preparation; process optimization

黄秋葵 (*Abelmoschus esculentus* (Linn.) Moench)

收稿日期:2020-08-01;修回日期:2021-01-20

基金项目:厦门市产学研协同创新项目(3502720173051);福建省中青年教育科研教育项目(JAT170049);湖南省教育厅重点项目(17A154)

作者简介:汤须崇(1984),男,副教授,硕士,研究方向为天然产物精深加工(E-mail)tangxuchong@hqu.edu.cn。

是锦葵科秋葵属一年生草本植物,别称越南芝麻、咖啡黄葵、羊豆角,其性喜温,原产地为印度,被广泛栽培于热带和亚热带地区。黄秋葵是药食两用型植物,种子含油率为 15%~20%<sup>[1]</sup>。现代药理研究表明,黄秋葵籽油可通过抑制乳酸和尿素氮的积累等途径保护小鼠因力竭游泳导致的肝损伤<sup>[2]</sup>,提高疲劳运动小鼠肝组织的抗氧化能力<sup>[3]</sup>,还可抑制小鼠

肠道微生物失调<sup>[4]</sup>。黄秋葵籽油中亚油酸含量高达47.4%<sup>[5]</sup>,其次是油酸,二者均具有降低血压、血脂、胆固醇,软化血管及促进微循环等作用,此外黄秋葵籽油中饱和脂肪酸、单不饱和脂肪酸和多不饱和脂肪酸比例较均衡,接近FAO/WHO推荐的1:1:1模式<sup>[6]</sup>。2018年伊朗能源部门评估秋葵作为生物燃料原料的可用性,为生物柴油生产提供了新的非食用油来源<sup>[7]</sup>。

黄秋葵籽油的提取方法包括压榨法<sup>[8]</sup>、水酶法、有机溶剂萃取法<sup>[9]</sup>以及超声波<sup>[10]</sup>和微波辅助溶剂萃取法<sup>[11]</sup>等。其中压榨法工艺较简单但出油率较低,溶剂萃取法存在溶剂残留问题,而水酶法存在酶价格较高,过程较难控制的问题。近年来超临界CO<sub>2</sub>萃取技术因具有萃取剂CO<sub>2</sub>成本低、无毒、安全性高且对环境友好,提取物无溶剂残留,油品质较高,整个萃取过程都在接近室温下进行,不会破坏提取物结构,在CO<sub>2</sub>气氛下提取能隔绝氧气,避免油中亚油酸、亚麻酸氧化变质<sup>[12]</sup>等优点而被广泛应用于植物油的提取,且目前已有黄秋葵籽油的超临界CO<sub>2</sub>萃取工艺研究<sup>[13]</sup>。但黄秋葵籽油中的亚油酸易被氧化,因此本文考虑将超临界CO<sub>2</sub>萃取的黄秋葵籽油制成软胶囊保存。软胶囊制备工艺简单、易放大,符合产业化生产要求<sup>[14]</sup>。软胶囊密封性好、生物利用度高,且剂量准确、服用方便、口感好、起效快,还可掩盖黄秋葵籽油的气味,有利于增加患者依从性<sup>[15]</sup>。本实验先采用响应面法优化黄秋葵籽油的超临界CO<sub>2</sub>萃取工艺,然后以软胶囊崩解时限为评价指标,水与明胶质量比、明胶与甘油质量比、溶胶温度、溶胶时间为考察因素,采用正交实验优化黄秋葵籽油软胶囊的制备工艺,以期制备崩解时限短、合格率高的黄秋葵籽油软胶囊,为黄秋葵籽油在药品、食品领域的工业化生产提供新思路。

## 1 材料与方 法

### 1.1 实验材料

#### 1.1.1 原料与试剂

黄秋葵籽,厦门塔斯曼生物工程有限公司;二氧化碳气体(纯度99.99%),厦门林德气体有限公司;95%乙醇,上海国药集团化学试剂有限公司;明胶、甘油、大豆油均为食品级。

#### 1.1.2 仪器与设备

600Y老本行多功能粉碎机,永康市铂欧五金制品有限公司;DHG-9075A鼓风干燥箱,上海一恒科学仪器有限公司;AR1502CN电子分析天平,上海奥豪斯仪器有限公司;DK-S22电热恒温水浴锅,上

海精宏仪器有限公司;C-MAG HS7control磁力搅拌器,德国IKA公司;HA-06-50超临界CO<sub>2</sub>萃取装置,南通华安超临界萃取有限公司;ZTHT-100软胶囊机,北京中天汇通有限公司;HSXW-1洗丸机,北京东方慧神科技有限公司。

### 1.2 实验方法

#### 1.2.1 黄秋葵籽油的超临界CO<sub>2</sub>萃取

黄秋葵籽经多功能粉碎机粉碎,过0.250 mm(60目)筛,装入超临界CO<sub>2</sub>萃取装置5 L萃取釜中,CO<sub>2</sub>流量设定为30 L/h,在一定的压力和温度条件下萃取一定时间,在萃取釜出口收集黄秋葵籽油。黄秋葵籽提油率( $x$ )按式(1)计算。

$$x = m_1 / m \times 100\% \quad (1)$$

式中: $m_1$ 为黄秋葵籽油的质量; $m$ 为原料质量。

#### 1.2.2 黄秋葵籽油软胶囊的制备

黄秋葵籽油软胶囊内容物制备:将大豆油放到-20℃冰箱中冷藏48 h后,解冻离心去除沉淀物(饱和脂肪酸酯)。将黄秋葵籽油与去除了饱和脂肪酸酯的大豆油按质量比1:2混合,50 r/min搅拌50 min,经0.45 μm尼龙微孔滤膜过滤,得到内容物料液。

黄秋葵籽油软胶囊胶液制备:将甘油与水按一定比例(质量比)混合,搅拌并加热至70℃,加入明胶,在一定温度下搅拌一定时间使其全部溶解,随后在真空度0.05 MPa下脱气60 min至胶液气泡脱净后,过0.150 mm(100目)筛,在60℃下保温6 h,得到胶液。

黄秋葵籽油软胶囊制备:采用软胶囊机压制软胶囊,压制时喷体温度55℃,转速4.5 r/min,然后在温度26℃、相对湿度45%下定型4 h。洗丸至软胶囊表面光洁且无油脂。再于温度35℃、相对湿度35%下干燥6 h,得到黄秋葵籽油软胶囊成品。

#### 1.2.3 黄秋葵籽油软胶囊崩解时限测定

参考《中国药典》(2020版)通则0921“崩解时限检查法”测定黄秋葵籽油软胶囊的崩解时限。取供测试成品6粒,按片剂的装置与方法检查,放进盛有200 mL温度为(20±5)℃水的250 mL烧杯中,记录其完全崩解所需时间。一次检查6粒,如有1粒不能完全崩解,应另取6粒复试,均应符合规定。

## 2 结果与分析

### 2.1 黄秋葵籽油超临界CO<sub>2</sub>萃取工艺的响应面实验优化

根据前期预实验结果,按照Box-Behnken实验设计原理,选取萃取压力( $A$ )、萃取温度( $B$ )、萃取时间( $C$ )为考察因素,提油率( $Y$ )为响应值,设计三因素三水平的响应面实验。响应面实验因素水平见表1,响应面实验设计方案与结果见表2,方差分析见表3。

表1 响应面实验因素水平

| 水平 | A/MPa | B/°C | C/min |
|----|-------|------|-------|
| 1  | 15.0  | 40   | 60    |
| 2  | 22.5  | 50   | 120   |
| 3  | 30.0  | 60   | 180   |

表2 响应面实验设计方案与结果

| 实验号 | A | B | C | 提油率/% |
|-----|---|---|---|-------|
| 1   | 1 | 1 | 2 | 14.50 |
| 2   | 1 | 2 | 3 | 16.23 |
| 3   | 1 | 2 | 1 | 11.25 |
| 4   | 1 | 3 | 2 | 12.02 |
| 5   | 2 | 1 | 1 | 13.46 |
| 6   | 2 | 1 | 3 | 16.11 |
| 7   | 2 | 2 | 2 | 16.01 |
| 8   | 2 | 2 | 2 | 14.88 |
| 9   | 2 | 2 | 2 | 15.67 |
| 10  | 2 | 2 | 2 | 15.45 |
| 11  | 2 | 2 | 2 | 15.46 |
| 12  | 2 | 3 | 3 | 15.90 |
| 13  | 2 | 3 | 1 | 15.17 |
| 14  | 3 | 1 | 2 | 16.46 |
| 15  | 3 | 2 | 1 | 15.96 |
| 16  | 3 | 2 | 3 | 16.63 |
| 17  | 3 | 3 | 2 | 16.63 |

表3 方差分析

| 方差来源           | 平方和   | 自由度 | 均方    | F     | P          |
|----------------|-------|-----|-------|-------|------------|
| 模型             | 35.55 | 9   | 3.95  | 8.13  | 0.005 7 ** |
| A              | 17.05 | 1   | 17.05 | 35.08 | 0.000 6 ** |
| B              | 0.08  | 1   | 0.08  | 0.17  | 0.693 5    |
| C              | 10.19 | 1   | 10.19 | 20.97 | 0.002 5 ** |
| AB             | 1.76  | 1   | 1.76  | 3.61  | 0.099 1    |
| AC             | 4.64  | 1   | 4.64  | 9.55  | 0.017 5 *  |
| BC             | 0.92  | 1   | 0.92  | 1.90  | 0.210 9    |
| A <sup>2</sup> | 0.57  | 1   | 0.57  | 1.17  | 0.315 9    |
| B <sup>2</sup> | 0.21  | 1   | 0.21  | 0.44  | 0.529 9    |
| C <sup>2</sup> | 0.05  | 1   | 0.05  | 0.10  | 0.756 6    |
| 残差             | 3.40  | 7   | 0.49  |       |            |
| 失拟项            | 2.73  | 3   | 0.91  | 5.36  | 0.069 2    |
| 纯误差            | 0.68  | 4   | 0.17  |       |            |
| 总和             | 38.96 | 16  |       |       |            |

注:\*\*表示差异显著, $P < 0.01$ ; \*表示差异一般显著, $P < 0.05$ 。

对表2实验数据进行多元回归拟合,得到的二元多项回归方程为:

$$Y = 15.49 + 1.46A - 0.1B + 1.13C + 0.66AB - 1.08AC - 0.48BC - 0.37A^2 - 0.22B^2 - 0.11C^2$$

由表3可看出,二次回归模型的 $P < 0.01$ ,表明

该二次方程模型显著,实验方法可靠。失拟项不显著( $P > 0.05$ ),说明实验未考虑因素对结果影响不大,实验模型与实际相符。模型的相关系数( $R^2$ )为0.912 7,说明黄秋葵籽提油率实验值与模拟值线性相关性显著,该模型误差小,预测准确。从 $P$ 值可得萃取压力、萃取时间是黄秋葵籽提油率的显著影响因素。两两因素之间的交互作用中,萃取压力和萃取时间的交互作用对黄秋葵籽提油率影响显著。

根据响应面法结果,得到超临界 $\text{CO}_2$ 萃取黄秋葵籽油最佳工艺条件:萃取压力30 MPa,萃取温度60 °C,萃取时间60.19 min。为方便验证实验操作将工艺条件修正为萃取压力30 MPa、萃取温度60 °C、萃取时间60 min,此条件下黄秋葵籽提油率预测值为17.24%。在最佳条件下进行3组验证实验,得到3组实验提油率分别为17.23%、17.27%、17.19%,平均值为17.23%,与预测值17.24%相比无显著差异( $P > 0.05$ )。说明该模型拟合实际情况,准确可信。

## 2.2 黄秋葵籽油软胶囊制备的正交实验优化

在前期预实验基础上,综合考虑水与明胶质量比(A)、明胶与甘油质量比(B)、溶胶温度(C)、溶胶时间(D)对黄秋葵籽油软胶囊崩解时限的影响,设计四因素三水平正交实验对黄秋葵籽油软胶囊制备工艺进行优化。正交实验因素水平见表4,正交实验设计及结果见表5。

表4 正交实验因素水平

| 水平 | A     | B   | C/°C | D/h |
|----|-------|-----|------|-----|
| 1  | 1:1.2 | 3:1 | 60   | 8   |
| 2  | 1.2:1 | 2:1 | 70   | 10  |
| 3  | 1:1   | 1:1 | 80   | 12  |

表5 正交实验设计及结果

| 实验号   | A    | B    | C    | D    | 崩解时限/min |
|-------|------|------|------|------|----------|
| 1     | 1    | 1    | 1    | 1    | 40       |
| 2     | 1    | 2    | 2    | 2    | 38       |
| 3     | 1    | 3    | 3    | 3    | 39       |
| 4     | 2    | 1    | 2    | 3    | 44       |
| 5     | 2    | 2    | 3    | 1    | 41       |
| 6     | 2    | 3    | 1    | 2    | 32       |
| 7     | 3    | 1    | 3    | 2    | 30       |
| 8     | 3    | 2    | 1    | 3    | 39       |
| 9     | 3    | 3    | 2    | 1    | 36       |
| $k_1$ | 39.0 | 38.0 | 37.0 | 39.0 |          |
| $k_2$ | 39.0 | 39.3 | 39.3 | 33.3 |          |
| $k_3$ | 35.0 | 35.7 | 36.7 | 40.7 |          |
| R     | 4.0  | 3.6  | 2.6  | 7.4  |          |

由表 5 可看出:溶胶时间是最大的影响因素,其次是水与明胶质量比、明胶与甘油质量比,影响最小的因素是溶胶温度,最佳组合为  $A_3B_3C_3D_2$ ; 由于 9 组实验中第 7 组实验的崩解时限最短,各因素组合为  $A_3B_1C_3D_2$ , 因此经综合考虑采用此实验组合作为最佳工艺条件,即水与明胶质量比 1:1、明胶与甘油质量比 3:1、溶胶温度 80℃、溶胶时间 10 h。在最佳工艺条件下进行 3 组验证实验,得到崩解时限分别为 28、32、31 min,平均值为 30.3 min,符合 2020 年版《中国药典》中软胶囊崩解时限要求(崩解时限 $\leq 1$  h)。

### 3 结论

以萃取压力、萃取温度、萃取时间为因素,提油率为指标,采用响应面法优化超临界  $CO_2$  萃取黄秋葵籽油工艺,得到黄秋葵籽油最佳萃取工艺条件为:萃取压力 30 MPa,萃取温度 60℃,萃取时间 60 min。在最佳工艺条件下,黄秋葵籽提油率为 17.23%。将萃取的黄秋葵籽油与大豆油混合制备软胶囊,以水与明胶质量比、明胶与甘油质量比、溶胶温度、溶胶时间为影响因素,崩解时限为指标,采用正交实验对软胶囊制备工艺进行优化,得到最优的制备工艺条件为:水与明胶质量比 1:1,明胶与甘油质量比 3:1,溶胶温度 80℃,溶胶时间 10 h。在最优条件下,黄秋葵籽油软胶囊的崩解时限为 30.3 min,符合 2020 年版《中国药典》中软胶囊崩解时限要求(崩解时限 $\leq 1$  h)。

### 参考文献:

- [1] BENCHASRI S. Okra (*Abelmoschus esculentus* (L.) Moench) as a valuable vegetable of the world [J]. Ratarstvo I Povrtarstvo, 2012, 49(1):105-112.
- [2] 丁雨. 秋葵籽油对高强度运动所致肝损伤的保护作用[J]. 基因组学与应用生物学, 2020, 39(2):914-920.
- [3] 李亚军, 王晓娜. 秋葵籽油对运动小鼠肝组织抗氧化能力的影响[J]. 粮食与油脂, 2019, 32(5):58-60.

- [4] ZHANG J, LU Y, YANG X, et al. Supplementation of okra seed oil ameliorates ethanol-induced liver injury and modulates gut microbiota dysbiosis in mice [J]. Food Funct, 2019, 10(10):6385-6398.
- [5] ANDRÁS C D, SIMÁNDI B, ÖRSI F, et al. Supercritical carbon dioxide extraction of okra (*Hibiscus esculentus* L) seeds [J]. J Sci Food Agric, 2005, 85(8):1415-1419.
- [6] 王金亭. 黄秋葵籽油的研究进展[J]. 中国油脂, 2019, 44(2):19-22, 26.
- [7] MOOSAVI S A, AGHAALIKHANI M, GHOBADIAN B, et al. Okra: a potential future bioenergy crop in Iran [J]. Renew Sust Energ Rev, 2018, 93:517-524.
- [8] ANWAR F, QADIR R, AHMAD N. Cold pressed okra (*Abelmoschus esculentus*) seed oil [J/OL]. Cold Pressed Oils, 2020: 309-314 [2020-07-20]. <https://doi.org/10.1016/B978-0-012-818188-1.00027-X>.
- [9] 谢鹏, 李丹. 两种提取方法所得秋葵籽油中不饱和脂肪酸成分的对比分析[J]. 现代食品, 2019(23):143-146.
- [10] 姚宏亮, 赵炜, 韩燃, 等. 秋葵籽油提取工艺优化及脂肪酸组成与抗氧化分析[J]. 食品工业, 2019, 40(8):71-75.
- [11] IBRAHIM A P, OMILAKIN R O, BETIKU E. Optimization of microwave-assisted solvent extraction of non-edible sandalwood (*Hura crepitans*) seed oil: a potential biodiesel feedstock [J]. Renew Energ, 2019, 141:349-358.
- [12] 诸葛成. 超临界  $CO_2$  流体萃取在化学工业中的应用研究[J]. 石化技术, 2020, 27(6):55-56.
- [13] 冯丽丽, 杨福明, 曹亮, 等. 超临界  $CO_2$  萃取秋葵籽油条件的优化[J]. 民营科技, 2015(8):19.
- [14] 李佳, 陈皓玉, 张文慧, 等. 响应面法优化植物软胶囊囊皮制备工艺[J]. 中国药学杂志, 2019, 54(11):894-899.
- [15] 邵啸, 艾琳, 卢爽, 等. 大蒜油软胶囊的制备工艺探究[J]. 广东蚕业, 2019, 53(9):74-75.

### · 信息 ·

## 声 明

本公司与迈安德集团有限公司侵害著作权纠纷一案,因我司在公司的中文网站上使用的公司中文简介侵犯了迈安德集团有限公司的著作权,给其造成了不良影响。为此,我司深表歉意,为消除影响,特此声明。

河南金鑫智能装备有限公司  
2021年4月