

EXTRAÇÃO DO ÓLEO DA SEMENTE DO MELÃO CANTALOUPE

Roberta Kerolayne Campielo dos Santos Teixeira*

Elisângela Lopes Galvão**

RESUMO

Os óleos vegetais apresentam um vasto potencial tecnológico em diversas áreas da indústria química, alimentícia e farmacêutica. A Região Nordeste se destaca como a principal produtora de melão do Brasil, entretanto as sementes são descartadas como resíduo embora apresentem qualidades nutricionais e possibilidade de aproveitamento do óleo. Nesse estudo, foram investigadas diferentes técnicas de extração (Soxhlet e ultrassom) e diferentes condições operacionais a fim de quantificar o teor de óleo presente nas sementes de melão cantaloupe (*Cucumis melo var. cantalupensis*). O rendimento máximo encontrado foi 19,70% para a extração em ultrassom utilizando hexano como solvente.

Palavras-chave: Melão cantaloupe. Extração. Hexano. Soxhlet. Ultrassom.

ABSTRACT

Vegetable oils have a vast technological potential in several areas of the chemical, food and pharmaceutical industry. The Northeast Region stands out as the main melon producer in Brazil, however the seeds are discarded as residue although they present nutritional qualities and the possibility of utilizing the oil. In this study, different extraction techniques (Soxhlet and ultrasound) and different operational conditions were investigated in order to quantify the oil content in the cantaloupe melon seeds (*Cucumis melo var. Cantalupensis*). The maximum yield found was 19.70% for ultrasonic extraction using hexane as the solvent.

Key words: Melon cantaloupe. Extraction. Hexane. Soxhlet. Ultrasound.

* Discente do Bacharelado em Ciência e Tecnologia – Universidade Federal Rural do Semi-Árido/ Campus Angicos. Email: robertakarolayne@hotmail.com

**Professora do Magistério Superior – Universidade Federal Rural do Semi-Árido/ Campus Angicos. Email: elgalvao@ufersa.edu.br

1INTRODUÇÃO

Os óleos vegetais e essenciais têm sido utilizados para diversas finalidades desde a antiguidade. Existem relatos de uso para fins medicinais, cosméticos e em cerimônias religiosas. Recentemente o interesse pelas propriedades e funcionalidades desses óleos tem crescido por parte de farmácias de manipulação, indústrias de biotecnologia, do ramo alimentício, de medicamentos e da orgânica fina (SILVEIRA et al., 2012).

Na atualidade, o mercado de óleos vegetais e essenciais tem tido um crescimento significativo. Tal crescimento pode ser fruto das diversas pesquisas que vem sendo desenvolvidas em todo o mundo e que tem apresentado o grande potencial de aplicações dessas substâncias, as quais apresentam frequente atividade biológica.

O Brasil tem um grande potencial de desenvolvimento nessa área e pesquisas nesse sentido são sempre muito bem vindas, principalmente no caso de aproveitamento de resíduos agroindustriais.

A Região Nordeste se destaca como a principal produtora de melão do Brasil, contribuindo com mais de 90% da produção nacional (CAMARGO et al., 2008), com destaque para o Rio Grande do Norte, que é um grande exportador da fruta. Entretanto, as empresas que produzem o melão geralmente não aproveitam as sementes, desperdiçando esse insumo em potencial. Frequentemente apenas a polpa do melão é aproveitada, o que corresponde a 40% (quarenta por cento) da fruta e as sementes são descartadas como resíduo, fazendo parte dos 60% (sessenta por cento) dos componentes descartáveis da fruta (ROCHA, 2011). Uma das formas de aproveitamento das sementes do melão seria a extração do óleo presente em suas sementes.

Existem diferentes técnicas de extração que podem ser utilizadas para isolar tais óleos: prensagem mecânica a frio, a extração com solvente orgânico a quente (Soxhlet), uso de fluidos supercríticos, ultrassom entre outras. Cada técnica apresenta rendimentos variados e exerce significativa influência na composição do óleo obtido. Assim, dependendo da finalidade para qual o óleo se destina um método ou técnica de extração pode se apresentar menos ou mais vantajosa.

Com base nisso, o presente trabalho tem como objetivo avaliar diferentes técnicas de extração para obtenção do óleo presente nas sementes de melão

quanto ao rendimento extrativo, contribuindo assim com dados para a indústria que tenha interesse em beneficiar as sementes de melão de modo a agregar valor ao resíduo.

2 REFERENCIAL TEÓRICO

2.1 Melão cantaloupe

O melão pertence à família *Cucurbitaceae*, sendo originário da África e da Ásia. É cultivado na Europa e na Ásia desde os primórdios da Era Cristã. O Brasil nos últimos anos passou a ser exportador de melão, devido à grande produção no nordeste brasileiro, onde existem solos de textura média e de boa fertilidade natural, o que contribui para uma alta produtividade e qualidade da fruta, favorecendo sua aparência e sabor (INFOBIBOS, 2009).

A produção de melão é muito importante no semiárido nordestino devido à geração de empregos. A maior parte da produção nacional (87%) está concentrada em Mossoró-Assu, no Estado do Rio Grande do Norte, e Vale do Jaguaribe no Estado do Ceará (IBGE, 2015).

A maior parte dos melões produzidos em Mossoró-Assu é do tipo amarelo, pertencente ao grupo botânico *inodorus*. Porém, para diversificar os produtos que serão comercializados, muitas empresas cultivam outros tipos de fruta, incluindo os melões cantaloupe, que pertencem ao grupo *Cantaloupensis* (Figura 01). Cantaloupe é uma variedade de melão que apresenta listras longitudinais que atravessam a casca e possui uma polpa laranja perfumada. É considerado um melão nobre, devido ao alto teor de sólidos solúveis e carotenóides (CUEVAS; STAUB; SIMON, 2010). Cerca de 16,1% dos melões exportados pelo porto de Natal pertencem ao tipo cantaloupe. Os agricultores pretendem aumentar a área plantada com melão, devido ao seu alto preço no mercado internacional (SALES JÚNIOR et al., 2006).

No Brasil, a forma mais comum de consumo do melão é a da fruta *in natura*, mas o melão também é utilizado na produção industrial de sucos, iogurtes e sorvetes. Esse fruto contém grande quantidade de sementes que, apesar de apresentarem potencial nutritivo, constituem material de descarte em indústrias de alimentos e no consumo doméstico (MALACRIDA et al. 2007).

Figura 01: Melão Cantaloupe.



Fonte: <<https://www.dicasdemulher.com.br/melao-cantaloupe/>>

As sementes de melão contêm muitas vitaminas, tais como a B12, B6, A, D, E, K, além de selênio, potássio, zinco, cobre, proteínas, lipídios e fibras (MENDONÇA; MAGNUSSON; ZUANON, 2005).

2.2 Óleos vegetais

De acordo com Gioielli (2019), os triglicerídeos são formados pela reação de esterificação completa do glicerol com ácidos graxos, estando presentes na composição de óleos e gorduras naturais. Os triglicerídeos formam a classe mais significativa de lipídeos de armazenamento em vegetais e na maioria dos animais (GUNSTONE E NORRIS, 1983a. Apud. GIOIELLI, 2009) Todas as demais substâncias situadas em óleos e gorduras são denominadas componentes menores (HOFFMANN, 1989). O material constituído principalmente de hidrocarbonetos, álcoois graxos, esteróis, corantes e tocoferóis, extraível com solvente orgânico após a saponificação da gordura é a fração insaponificável (ROSSELI, 1986).

Segundo Hoffmann (1989), na extração da fração lipídica o solvente mais utilizado é um hidrocarboneto de petróleo leve, chamado hexana, contendo cerca de 45-90% de n-hexano e o restante sendo constituído por 2- e 3-metil-pentano, 2,3-dimetil-butano, metilciclopentano e ciclohexano. A faixa de ebulição é de 63-69°C e este solvente preenche a maioria dos critérios, exceto inflamabilidade e explosividade (HOFFMANN, 1989). Outros solventes que podem ser empregados nas extrações de óleos vegetais são: etanol, tricloroetileno, acetona, azeótropos de isopropanol e misturas álcoois com acetona (HOFFMAN, 1989).

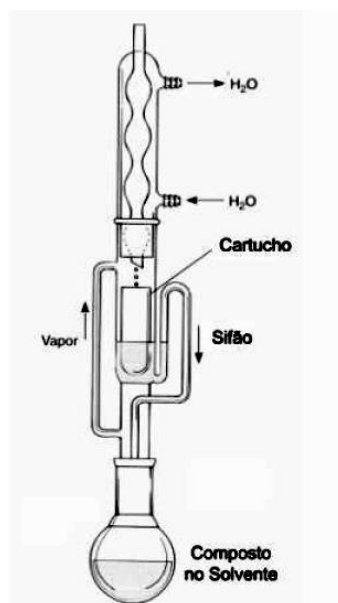
2.3 Técnicas de extração

2.3.1 Extração com solvente orgânico a quente (Soxhlet)

O extrator Soxhlet (Figura 2) faz parte das vidrarias de laboratório e foi criado para a extração de lipídios e outras substâncias sólidas que são insolúveis em água, mas solúveis em compostos orgânicos. Com relação à forma da vidraria, a mesma é composta por um reservatório de vidro com tubo lateral e esta estrutura é acoplada na parte superior a um condensador e na parte inferior a um balão (FRANZ, 2010).

O funcionamento desta peça começa com a introdução da matéria-prima no reservatório (é importante que a matéria-prima esteja envolta por um papel filtro ou cartucho). O solvente extrativo deve ser adicionado ao balão e o sistema deve ser montado e acoplado a um condensador. O balão deve ser aquecido com o auxílio de uma manta aquecedora (FRANZ, 2010).

Figura 2 - Extrator Soxhlet.



Fonte: Adaptado de QUALIVIDROS (2014).

Este processo tem o objetivo de fazer o solvente entrar em ebulição e o vapor alcançar o condensador, que fica na parte superior, se transformando em líquido. As gotas que resultam da condensação do solvente caem sobre o papel filtro (ou

cartucho) e enchem o reservatório até o nível do tubo lateral que leva o solvente de volta para o balão junto com as substâncias solúveis da amostra contida no papel de filtro. O reciclo do solvente ocorre no sistema Soxhlet até a obtenção do composto final (FRANZ, 2010).

2.3.2 Ultrassom

Trata-se de uma técnica alternativa à extração por solvente a quente, aplicada em extrações de compostos orgânicos com material particulado (WISE et al., 1988). Apresenta eficiência de recuperação bastante positiva, sendo igual ou melhor do que a obtida em vários tipos de extrações, como por exemplo, extração por solvente à quente (EICEMAN et al., 1980; BLANCO; PRADO; BORREGO, 1992).

As ondas ultrassônicas causam mudanças físicas e químicas devido à variação de pressão no líquido gerando a cavitação e micro fluxos nos líquidos, aquecimento e ruptura nos sólidos e instabilidade na superfície da interface de sistemas líquido-líquido e líquido-gás (BARBOZA; SERRA, 1992). O método de ultrassom apresenta diversas vantagens, pela simplificação do equipamento, economia do custo inicial e diminuição do tempo necessário para realização da extração. Devido a essas inúmeras vantagens, tem sido aplicado na indústria farmacêutica, apresentando resultados promissores (BARBOZA;SERRA, 1992).

3 METODOLOGIA DA PESQUISA

No presente trabalho foram utilizadas diferentes técnicas de extração (Soxhlet e ultrassom) para obtenção do óleo presente na semente de melão do tipo cantaloupe (*Cucumis melo var. cantalupensis*).

3.1. Obtenção e preparo da matéria-prima

As sementes utilizadas nos testes de extração foram fornecidas por uma empresa produtora de melão localizada no município de Aracati/CE, divisa com o Rio Grande do Norte.

As sementes foram lavadas com água destilada e secas em estufa a 40 °C para redução da umidade a um percentual abaixo de 10%. Em seguida, as

sementes secas foram trituradas, homogeneizadas e armazenadas sob refrigeração em frascos de vidro tampados até o uso. As determinações da umidade da amostra foram realizadas de acordo com o método oficial da AOCS (1998).

3.2. Extração do óleo

Os experimentos foram realizados no Laboratório de Química 02 da UFERSA-Campus Angicos. Duas técnicas de extração foram utilizadas: a extração com solvente a quente em extrator do tipo Soxhlet e a técnica com ultrassom.

Escolheu-se trabalhar com dois tipos de solventes, um apolar (hexano) e um polar (etanol). O hexano é muito utilizado na extração de óleos, pois reúne características interessantes: não forma azeótropos, é imiscível em solução aquosa e possui baixa faixa de temperatura de ebulição (68°C). Em contrapartida, apresenta grande inflamabilidade e é altamente tóxico (PRADO, 2014). Já o etanol, por ser uma molécula polar dissolve facilmente em água, tem um cheiro muito peculiar e seu ponto de ebulição é atingido aos 78,37 °C.

Em diversos trabalhos da literatura, o tempo de extração exerce influência no rendimento do processo extrativo de óleos de sementes (GALVÃO, 2009). Sendo assim, foram definidos dois tempos operacionais de extração (2 e 4 horas) para os ensaios em aparato Soxhlet e as temperaturas operacionais adotadas foram as de ebulição dos solventes. Na extração ultrassônica, os ensaios foram realizados a temperatura ambiente para um tempo operacional de 50 min. Todos os testes foram realizados em triplicata para cada condição operacional. A Tabela 1 apresenta um resumo das condições operacionais adotadas nos ensaios extrativos.

Tabela 1. Condições operacionais da extração do óleo da semente de melão.

Técnica de extração	Tempo de extração	Solvente extrativo	Temperatura operacional
Soxhlet	2h e 4h	Hexano	Teb*
	2h e 4h	Etanol	Teb**
Ultrassom	50 min	Hexano	Ambiente
		Etanol	Ambiente

*Teb= temperatura de ebulição do hexano; **Teb= temperatura de ebulição do etanol.

Para cada ensaio de extração, utilizou-se uma massa de 10 g da semente de melão triturada e homogeneizada.

Na extração Soxhlet, a semente foi colocada em um casulo de papel de filtro e inserida no equipamento. Foram utilizados 150mL de solvente (hexano ou etanol) em cada ensaio. Para o controle da temperatura foi utilizado um agitador magnético (Logen, modelo: LS59D-220-400-VC, 400w). Após atingido o tempo operacional de extração, o conteúdo do balão (extrato da semente de melão+ solvente extrativo) era removido do sistema e colocado para secar em estufa para esterilização (BRASDONT – modelo 4), até a completa evaporação do solvente (determinada através de 3 pesagens constantes sucessivas).

Ao final, a massa de óleo obtida foi pesada e utilizada no cálculo do rendimento.

O rendimento do processo pode ser calculado com base na Equação 1 (GALVÃO, 2009).

$$R(\%) = \frac{m_{\text{óleo}}}{m_{\text{amostra}}} \times 100 \quad \text{Equação (1)}$$

Em que:

- $R(\%)$ = rendimento de extração (%);
- $m_{\text{óleo}}$ = massa de óleo vegetal obtida após a evaporação do solvente (g);
- m_{amostra} = massa de semente de melão utilizada (g).

Nas extrações através do ultrassom, utilizou-se um banho ultrassônico UltraCleaner 1400, contendo água destilada. Uma amostra de 10 gramas de sementes trituradas foi pesada e adicionada a um béquer de 100mL, juntamente com 25mL de solvente extrativo (hexano ou etanol). O béquer então foi introduzido no banho ultrassônico e foi iniciada a extração. Para esta técnica, adotou-se um tempo operacional de extração de 50 minutos. Encerrado o tempo, procedeu-se a separação da fração sólida através de filtração a vácuo. A fração líquida (óleo extraído + solvente) resultante foi seca em estufa para remoção do solvente extrativo e determinação da massa de óleo extraída. As extrações foram realizadas em triplicata para cada solvente. Para o cálculo do rendimento foi utilizada a equação (1).

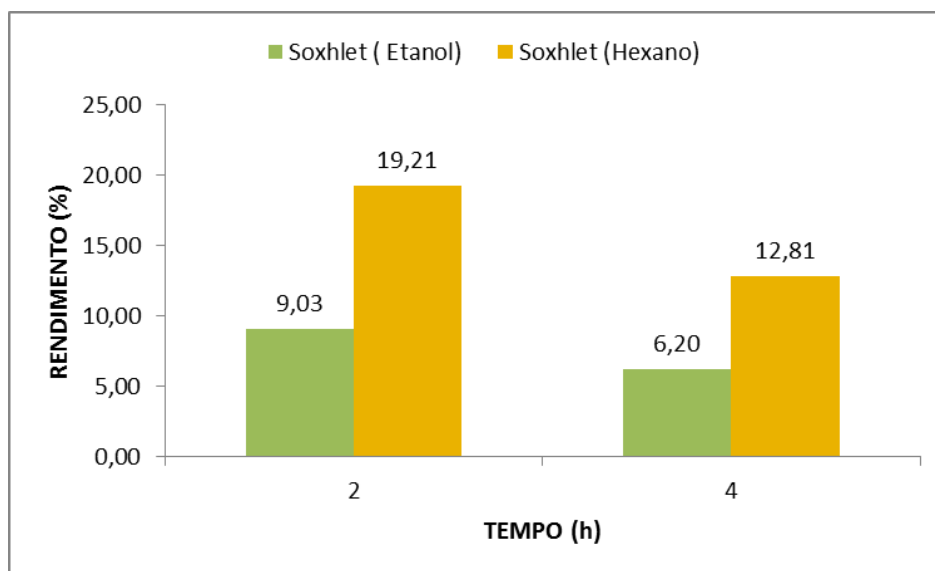
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Diferentes técnicas de extração foram investigadas para obtenção do óleo presente na semente de melão, o teor de óleo variou de 6,02 a 19,7%.

4.1 Rendimento da técnica Soxhlet

Para a técnica que utiliza solvente orgânico à quente em extrator do tipo Soxhlet, os rendimentos variaram de 6,2 a 19,21%. O gráfico 01 apresenta os valores de rendimento médio obtido para cada condição experimental testada nos ensaios em Soxhlet.

Gráfico 01- Rendimento médio das extrações Soxhlet para a semente de melão cantaloupe.



Fonte: Autoria própria (2019).

Comparando os experimentos realizados para o tempo de extração de 2 horas, foi possível observar que o uso do solvente hexano proporcionou um aumento significativo do rendimento do processo, sendo 112,7% maior que o da extração com etanol. O mesmo comportamento foi observado para o tempo operacional de 4 horas.

O hexano foi mais seletivo para os componentes do óleo de melão em virtude da composição do óleo ser constituído predominantemente de triglicerídeos, cuja parte apolar da cadeia se sobrepõe a parte polar.

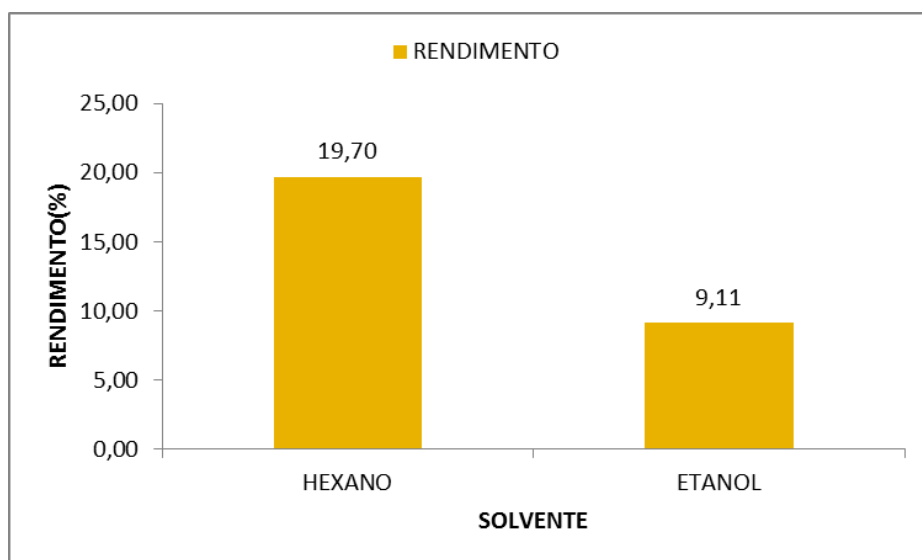
Considerando a variável tempo, o prologamento da extração prejudicou o rendimento do processo. O mesmo comportamento foi observado por BRUNI et al. (2014) para extração do óleo da semente de uva utilizando ultrassom.

4.2 Rendimento através da extração com o ultrassom.

O gráfico 02 apresenta os valores de rendimento médio (média de triplicatas) obtidos para os testes realizados em Ultrassom durante 50 minutos.

Os valores de rendimento variaram de 9,11% (para a extração com etanol) a 19,7% (para a extração com hexano).

Gráfico 02 - Rendimento médio das extrações em ultrassom.



Fonte: Autoria própria (2019).

Tendo em vista as variáveis expostas no gráfico 02, observamos que o teor do óleo obtido para a extração com a metodologia do ultrassom apresentou valores superiores com o solvente Hexano (19,70%), sendo 116,2% maior, em relação ao obtido com o solvente etanol (9,11%).

4.3. Comparação entre as técnicas de extração

A Tabela 2 apresenta um resumo dos respectivos valores de teor de óleo para cada combinação de parâmetros estudados.

Tabela 2. Rendimento das extrações nas condições operacionais testadas.

Técnica de extração	Solvente	Tempo	Rendimento (%)
Soxhlet	Etanol	2h	9,03± 0,48
		4h	6,20± 1,17
	Hexano	2h	19,21± 1,45
		4h	12,81± 1,66
Ultrassom	Etanol	50 min.	9,11± 1,57
	Hexano	50 min.	19,70± 0,84

FONTE: Autoria própria (2019).

A análise dos dados expostos na Tabela 2 demonstra que, tanto no método de extração por solvente a quente (Soxhlet) quanto no ultrassom, as extrações com o solvente hexano são mais vantajosas, provavelmente devido aos ácidos graxos presentes na constituição do óleo, a qual apresenta uma longa cadeia carbônica (apolar). Com isto, o teor de óleo extraído da semente será maior para o solvente apolar, uma vez que possuem forças intermoleculares da mesma natureza.

Em ambos os métodos de extração, onde os rendimentos foram maiores (Soxhlet – 2 horas e Ultrassom), a quantidade de óleo obtida com o solvente Hexano foi semelhante. O mesmo comportamento foi observado por Bruni et al., (2014) ao analisar a extração do óleo das sementes de uva.

Diante desses resultados, observou-se que a extração por ultrassom apresentou o melhor rendimento (19,70%). Levando em conta que este método de extração utiliza menor temperatura que o método de Soxhlet, e que se pode trabalhar com tempo reduzido, a escolha pela tecnologia ultrassônica se torna mais vantajosa para obtenção do óleo da semente de melão cantaloupe. Outros pesquisadores têm comprovado a eficiência de recuperação de óleos vegetais utilizando ultrassom em comparação com a extração por solvente a quente. (EICEMAN et al., 1980; BLANCO et al., 1992).

5. CONSIDERAÇÕES FINAIS

Neste trabalho, o teor de óleo recuperado da semente de melão cantaloupe variou de 6,20 a 19,7%.

Os resultados mostraram que o solvente hexano é mais eficiente para recuperar o óleo vegetal presente na semente.

O melhor rendimento foi obtido para a técnica de extração por ultrassom (19,70%). Desta maneira a tecnologia de ultrassom aplicada à extração de óleo da semente do melão tem grande potencial devido à reprodutibilidade, rapidez do processo e redução da quantidade de solvente, sendo, portanto ambientalmente mais favorável.

REFERÊNCIAS

AOCS (1998). **Official methods and recommended practices of the American Oil Chemists` Society**. Press, 3 ed., Champaign, v. 1-2.

BARBOZA, J. C. S.; SERRA, A. A. **Ultra-som(I): Influência do ultra-som na química**. Química Nova, v. 15, p. 302–316, 1992.

BLANCO, C. G.; PRADO, J. G.; BORREGO, A.G. **Org. Geochem.** 1992, 18 (3), 313.

BRUNI et al. Estudo do método de ultrassom para a extração de óleo de sementes de uva provenientes de rejeitos do processo vinícola, 2014. Disponível em: <http://pdf.blucher.com.br.s3.amazonaws.com/chemicalengineeringproceedings/cobeq2014/0724-24287-181250.pdf>. Acesso em: 12 de janeiro de 2019.

CAMARGO, A. M. M .P.; CAMARGO, F. P.; CAMARGO FILHO, W. P. Distribuição geográfica da produção de hortaliças no Estado de São Paulo: participação no País, concentração regional e evolução no período 1996-2006. **Informações Econômicas**, SP, v.38, n.1, p. 28-35, jan. 2008.

CUEVAS H. E, STAUB J.E.; SIMON, P.W. Inheritance of betacarotene-associated mesocarp color and fruit maturity of melon (*Cucumis melo* L.). **Euphytica**, v. 170, p.129-140, 2010.

EICEMAN, G. A.; VIAU, A. C.; KARASEK, F. W. Ultrasonic extraction of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and other organic compounds from fly ash from municipal incinerators. **Analytic Chemistry**, 1980, v.52, p.1492.

FRANZ, C. M. Essential oil research: past, present and future. **Flavour Fragrance Journal**, v. 25, p. 112-113, 2010. ISSN 1099-1026.

GALVÃO, E. L. **Extração supercrítica do óleo de linhaça**: construção do extrator, estudo de parâmetros de processo, avaliação química e antioxidante do produto. 2009. 142 f. Tese (Doutorado) - Curso de Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química, Departamento de Engenharia Química, Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Natal-RN, 2009.

GIOIELI, L. A. Óleos e gorduras vegetais: composição e tecnologia. Disponível em: <http://www.scielo.br/pdf/rbfar/v5n2/a08v5n2.pdf> . Acesso em 14 de mar. 2019.

HOFFMANN, G. - The chemistry and technology of edible oils and fats and their high fat products. London: Academic Press, 1989c. p.201-277

IBGE, 2015. Disponível em: <https://www.ibge.gov.br/estatisticas-novoportal/economicas/agricultura-e-pecuaria/9117-producao-agricola-municipal-culturas-temporarias-e-permanentes.html?edicao=9118&t> . Acesso em 15 de fev. 2019

INFOBIBOS, 2009. Disponível em: http://www.infobibos.com/artigos/2009_3/melao/index.htm . Acesso em: 12 de mar de 2019

MALACRÍDA A. R. et al. Inferences on the population structure and colonization process off the invasive oriental fruit fly, *Bactrocera dorsalis* (Hendel), **Mol Ecol**, v. 16, p. 3522-3532, 2007.

MELÃO CANTALOUPE. Disponível em: <https://www.dicasdemulher.com.br/melao-cantaloupe> . Acesso em: 17 de março de 2019.

MENDONÇA, F. P.; MAGNUSSON, W. E.; ZUANON, J. 2005. Relationships Between Habitat Characteristics and Fish Assemblages in Small Streams of Central Amazonia. **Copeia**, n.4, p. 751-764, 2005.

PRADO, 2014. Avaliação comparativa entre a extração do óleo de soja com Hexano e com álcool anidro e as diferenças físico-químicas no farelo. Disponível em:

http://repositorio.roca.utfpr.edu.br/jspui/bitstream/1/8003/1/PG_COALM_2014_1_08.pdf. Acesso em: 12 de janeiro de 2019.

QUALIVIDROS; 2014. Disponível: <http://www.qualividros.com/pages/produto.php?cod=200>. Acesso em: 29 de janeiro de 2019

ROCHA, L.G.; **Dossiê Técnico, aproveitamento de resíduos agroindustriais**. Fundação Centro Tecnológico de Minas Gerais. Maio, 2011.

ROSSELL, J.B. - Classical analysis of oils and fats. In: HAMILTON, R.J., ROSSELL, J.B., eds. - *Analysis of oils and fats*. London: Elsevier, 1986. p.1-90

SALES JÚNIOR R; DANTAS FF; SALVIANO AM; NUNES GHS. Qualidade do melão exportado pelo porto de Natal-RN. **Ciência Rural** v. 36, p. 286-289, 2006.

SILVA; A. Produção de biodiesel e bioprodutos a partir de óleos vegetais extraídos do caroço melão, 2015. Disponível em <
https://www.ufpe.br/documents/616030/851322/Produ%C3%A7ao_de_bioprodutos_a_partir_de_oleos_extraidos.pdf> Acesso em: 10 de janeiro de 2018.

SILVEIRA, J.C. et al. Levantamento e análise de métodos de extração de óleos essenciais. **Enciclopédia Biosfera**, v.8, n.15, p.2038-2052, 2012.