

ARASTIRMA MAKALESİ / RESEARCH ARTICLE

KETEN TOHUMU YAĞININ SÜPERKRİTİK AKIŞKAN EKSTRAKSİYON KİNETİĞİNİN DİFÜZYON KONTROL METODU İLE MODELLENMESİ

Emir Zafer HOŞGÜN¹, Berrin BOZAN^{1,2}

ÖZ

Bu çalışmada; keten tohumu yağı, süperkritik karbondioksit ekstraksiyonu ile ekstre edilmiş ve ekstraksiyon kinetiği difüzyon kontrol yöntemi ile modellenmiştir. Basınç (20, 35, 55 MPa), sıcaklık (323 and 343 K), ve CO₂ akış hızı (1 ve 3 L CO₂ /dakika) gibi proses parametrelerinin etkilerinin, ekstraksiyon verimine ve etkin difüzyon katsayısına (De) etkileri araştırılmıştır.

Etkin difüzyon katsayısı $2,4 \times 10^{-12} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ile $10,8 \times 10^{-12} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ arasında değişmiş, basınç ve CO₂ akış hızı ile artmıştır. Model sonuçlarının deneysel sonuçlara uygun olduğu görülmüştür (OMS, %2,35-7,48).

Anahtar Kelimeler: Süperkritik CO₂ ekstraksiyonu, Difüzyon kontrol modeli, Keten tohumu yağı.

MODELING OF SUPERCRITICAL FLUID EXTRACTION KINETIC OF FLAXSEED OIL BY DIFFUSION CONTROL METHOD

ABSTRACT

In this study, Flaxseed oil was extracted by Supercritical Carbon dioxide Extraction, and extraction kinetics was modelled using diffusion controlled method.

The effect of process parameters, such as pressure (20, 35, 55 MPa), temperature (323 and 343 K), and CO₂ flow rate (1 and 3 L CO₂ /min) on the extraction yield and effective diffusivity (De) was investigated. The effective diffusion coefficient varied between 2.4×10^{-12} and $10.8 \times 10^{-12} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ for the entire range of experiments and increased with the pressure and flow rate. The model fitted well the experimental data (ADD varied between 2.35 and 7.48%).

Keywords: Supercritical CO₂ extraction, Diffusion controlled model, Flaxseed oil.

¹ Anadolu Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Eskişehir, 26000.

e-posta: ezhosgun@anadolu.edu.tr (Emir Zafer Hoşgün)

² e-posta: bbozan@anadolu.edu.tr (Berrin Bozan),

Geliş: 17 Ocak 2013; **Düzeltilme:** 31 Ocak 2013; **Kabul:** 01 Şubat 2013

1. GİRİŞ

Uzun zincirli doymamış yağ asidi içeren yağların kalp hastalıkları ve kanser riskini azalttığına dair yapılan çalışmalarda bu bileşenleri içeren özel yağların besleyici farmasötik olarak kullanımının yaygın olduğu görülmektedir. Özellikle α -linolenik asit (ALA, 18:3)'in yüksek tansiyon, trigliserit ve kolesterol düzenleyici olarak sağlık destekleyici bir bileşen şeklinde kullanılabilmesinin önerilmesinden sonra da bu bileşeni içeren bitkisel yağlara ilgi artmıştır (Simopoulos, 1990; Papas, 1998; Cunnane, 1995). Keten tohumu yağı ALA bakımından en zengin (toplam yağ asidinin %55-60'ı) bitkisel kaynaklardan birisidir. Diğer özel yağların olduğu gibi keten tohum yağının da süperkritik CO₂ ile ekstre edilmesi çözücü ekstraksiyonuna göre pek çok avantajı da beraberinde getirmektedir (King ve List, 1993).

Süperkritik akışkanlar difüsiteleri bakımından gazlara, yoğunlukları bakımından ise sıvılara benzemektedirler. Ayrıca bu özellikleri sıcaklığın ve basıncın fonksiyonu olarak değişmekte ve bu da süperkritik akışkanların çözüme gücünü değiştirmektedir. Toksik, patlayıcı olmayan ve maliyeti ucuz olan süperkritik karbon dioksit (CO₂)'in petrol türevi çözücülere alternatif olarak, özellikle katma değeri yüksek, besin değeri olan özel yağların ekstraksiyonunda kullanımı yaygınlaşmaktadır. Ekstraksiyon işleminin düşük sıcaklıkta uygulanması ve çözücünün üründen kolay ve tamamen uzaklaşması süperkritik akışkan ekstraksiyon prosesinin sağladığı önemli avantajlardır (Rizvi, 1994).

Bir ekstraksiyon prosesinde işletme koşullarının ekstraksiyon verimi üzerine etkisinin bilinmesi sadece prosesin ekonomisi ve optimizasyonu için değil, ekstraksiyon kinetiğinin matematiksel model eşitliklerinin belirlenmesinde de önemlidir. Ekstraksiyon kinetiğinin matematiksel modelinin öngörülebilmesi veya bir modele göre açıklanabilmesi ise ekstraksiyonun endüstriyel boyutta tasarımı ve optimizasyonu için gereklidir. Süperkritik ekstraksiyon kinetiği için literatürde pek çok matematiksel model uygulanmıştır.

Difüzyon kontrol modeli Fick'in ikinci yasası üzerine kurulan bir kütle transfer modelidir. Bu modelde ekstre edilen katı, poroz ve küre şeklinde olup, ekstraktör içinde düzgün bir şekilde dağılmaktadır. Ayrıca küre şeklindeki parçacıkların hepsinin aynı boyutta oldukları varsayılmaktadır (Campos vd., 2005; Esquivel vd.,1999).

Difüzyon kontrol modeli; su kenevirinden süperkritik akışkan ile oleorezin ekstraksiyonu, ayçiçeği küspesinden çeşitli bileşenlerin ekstraksiyonu, havuçtan β -karoten ekstraksiyonu, zeytin küspesinden süperkritik akışkan ile yağ ekstraksiyonu gibi bitkisel maddelerin ekstraksiyon kinetiğinin modellenmesinde kullanılmıştır (Campos vd., 2005; Esquivel vd.,1999; Baumler vd.,2010; Subra vd.,1998).

Bu çalışmanın amacı, Keten tohumu yağının süperkritik CO₂ ekstraksiyonunun difüzyon kontrol metodu ile modellenmesi ve basınç (20, 35, 55 MPa), sıcaklık (323 and 343 K) ve CO₂ akış hızı (1 ve 3 g CO₂ /dakika) gibi proses parametrelerinin etkin difüzyon katsayısına (De) etkilerinin incelenmesidir.

2. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

Keten tohumu (*Linum usitatissimum*) Konya yöresindeki bir yerel pazardan satın alınmış ve kullanılabildiği kadar -20 °C'de muhafaza edilmiştir. Tohumlar kahve değirmeni ile öğütüldükten sonra içermiş olduğu nem miktarı AOCS 2-54 (AOCS,1993) metoduna göre hesaplanmıştır. Süperkritik CO₂ ekstraksiyonu laboratuvar ölçeğinde Newport Science Inc., Jessup, MD marka ekstraktör cihazı ile gerçekleştirilmiştir. %99,95 saflığındaki karbondioksit çalışma basıncına 69 Mpa basınca kadar dayanabilen diyafram pompa ile sıkıştırılmıştır. 300 mL'lik ekstraksiyon kabı ceketli ısıtıcı ile ısıtılmış ve sıcaklık kontrolü termostat ile yapılmıştır. Basınç kontrolü basınç regülatörü ile sağlanmıştır (Bozan ve Temelli, 2002).

Ortalama parçacık boyutu 0.738 mm olan beş gram öğütülmüş keten tohumu 25 mL'lik ekstraksiyon hücresine yerleştirilmiştir. Ekstreler basınç çıkışı vanasına bağlı -20 °C de bulunan

cam tüplerde toplanmıştır. Süperkritik akışkan ekstraksiyonu 323 ve 343 K sıcaklıkta, 21, 35, 55 MPa basınçta, 1 ve 3 L/dak CO₂ akış hızında gerçekleştirilmiştir. Ekstraksiyon verimleri (% g yağ/100 g nemsiz tohum) 180 dk sonunda kuru temel üzerinden hesaplanmıştır.

2.1 Matematik Model

Bitkisel materyallerin ekstaksiyonunda hız belirleyici basamak, genellikle katı içinde çözünen maddenin çözücüye difüzyonudur. Seyreltik ekstrelere çalışıldığı zaman kütle transferi için dış direnç ihmal edilmektedir. Bu yüzden ekstraksiyon hızı büyük konsantrasyon farkından dolayı yükselir. Böylece, çözünen maddenin konsantrasyonu ile etkin difüzyon hızının değişmediği varsayımı yapılır. Hızı belirleyen basamağın difüzyon hızı Fick yasaları ile tanımlanabilir (Carman ve Haul, 1954; Geankoplis, 2003). Fick yasaları moleküler difüzyonun analizi için yarı ampirik temel oluşturur. Fick'in 1. yasası yataşkın durumlarda difüzyon hızını tanımlamak için kullanılabilir. Yataşkın olmayan, çözünen madde konsantrasyonunun zamanla (t) ve katı madde içinde (r) yönünde değiştiği ve kısa süreler için uygulamalarda Fick'in 2. yasası kullanılır. Fick'in 2. yasasının genel formu eşitlik 2.1' de verilmektedir.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \quad (2.1)$$

Burada; C, konsantrasyon (kgm⁻³); D_e, etkin difüzyon katsayısı (m² s⁻¹); r, karakteristik uzunluk (küre için yarı çap, m); t, zaman (s) dir.

Küre şeklinde parçacıkların kullanıldığı, katı parçacıkların hepsinin aynı özelliklere sahip olduğu ve katı-sıvının mükemmel karıştığı varsayımlarının yapıldığı modelde, Eşitlik 2.1'nin analitik çözümünde aşağıdaki başlangıç ve sınır koşulları kullanılır.

Başlangıç koşulu: t=0 ve 0 ≤ r ≤ R de C=C₀

Sınır koşulları : t>0 ve r=R de C=0

$$t \geq 0 \text{ ve } r=0 \text{ da } \frac{\partial C}{\partial r} = 0$$

Eşitlik 2.1'in analitik çözümü boyutsuz grup Y (eşitlik 2.2)'nin zamanla değişimi şeklindedir (eşitlik 2.3).

$$Y = \frac{y - y_e}{y_0 - y_e} \quad (2.2)$$

$$Y = \sum_{n=1}^{\infty} B_n \exp\left(-\frac{q_n^2 D_e t}{r^2}\right) \quad (2.3)$$

Eşitlik 2.2 ve 2.3'de y, t anında ekstre edilen maddenin çözeltideki ağırlık fraksiyonu (g/g); y_e, dengede ekstre edilen maddenin çözeltideki ağırlık fraksiyonu (g/g); y₀, t=0 anındaki ekstre edilen maddenin çözeltideki ağırlık fraksiyonu (g/g), B₁ (0,608) ve q (3,142) denklem sabitleridir.

Etkin difüzyon katsayısını bulmak için Eşitlik 2.3'ün açılımı yapılmış ve birinci serinin her iki tarafının da logaritması alınıp eşitlik 2.4 elde edilmiştir.

$$\ln Y = -0,49 - \left(\frac{q_1}{r}\right)^2 D_e t \quad (2.4)$$

Eşitlik 2.4'e göre zamana (t) karşı lnY grafiğinin hızlı ekstraksiyon süresindeki eğiminden (q₁/r)²D_e değeri bulunmuştur. Bu eğim değerinden etkin difüzyon katsayısı (D_e) hesaplanmıştır.

Deneyel sonuçlardan elde edilen difüzyon katsayıları ile ekstraksiyon verimleri hesaplanmıştır. Hesaplanan verimler ile deneyel verimler arasındaki farklar ortalama mutlak sapma (OMS) olarak eşitlik 2.5'e göre hesaplanmıştır.

$$OMS(\%) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{Y_{deneyel} - Y_{hesaplanan}}{Y_{deneyel}} \quad (2.5)$$

3. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

Farklı ekstraksiyon koşullarında (basınç, sıcaklık, CO₂ akış hızı) ekstraksiyon verimleri (%) ve difüzyon kontrol modeli ile elde edilen difüzyon katsayıları Çizelge 1'de verilmiştir. En yüksek ekstraksiyon verimine (%29,33) 3 L/dk, 343 K ve 55 MPa ekstraksiyon şartlarında ulaşılmıştır. Çalışılan ekstraksiyon koşullarında tohumda bulunan yağın %55-74'ü ekstre edilebilmiştir. Ekstraksiyon verimi (%) üzerine en fazla sırasıyla basınç, akış hızı ve sıcaklık etki etmiştir.

Fick'in ikinci yasasının analitik çözümünden elde edilen difüzyon katsayıları $2,4 \times 10^{-12}$ ile $10,8 \times 10^{-12}$ m²/s arasında değişmektedir (Çizelge 1). En yüksek difüzyon katsayısı ($10,8 \times 10^{-12}$ m²/s) 3 L/dk CO₂ akış hızı, 343 K sıcaklık ve 55 MPa basınç koşullarında elde edilmiştir. En düşük difüzyon katsayısına ise 1 L/dk CO₂ akış hızı, 323 K sıcaklık ve 20 MPa basınç koşullarında ($2,4 \times 10^{-12}$ m²/s) ulaşılmıştır.

Çalışılan parametreler içinde difüzyon katsayısı üzerine en etkin parametrenin basınç olduğu görülmüştür. Etkin difüzyon katsayısı basıncın artması ile artmaktadır. Sabit sıcaklık ve akış hızında (323 K ve 1 L/dk) basınç 20 MPa'dan 35 MPa'ya çıkarıldığında %54 artarken, basıncın 35MPa'dan 55 MPa artmasıyla bu artış azalmıştır (%12). Basıncın artması ile CO₂ yoğunluğu ve CO₂ nin çözme gücü artmaktadır. Etkin difüzyon katsayısı düşük basınçlarda sıcaklıkla değişmemiştir ancak yüksek basınçlarda (55 MPa) ve yüksek (343 K) sıcaklıkta difüzyon katsayısı düşmüştür. Bunun nedeni yüksek sıcaklıkta çözünenin uçuculuğunun artması ve CO₂ yoğunluğunun azalması olarak açıklanabilir (Friedrich ve Pryde, 1984; Stahl vd., 1980).

Çözücü hızının artması ile çözünen madde ile temas eden çözücü miktarı artmaktadır. Buna bağlı olarak da kütle transferi hızlanıp difüzyon katsayısı artmaktadır. CO₂ miktarı (L/dk) üç kat arttığında ekstre verimi düşük sıcaklıklarda %5,5-8,0, yüksek sıcaklıklarda %15,0-19,0, difüzyon katsayısı ise ortalama %50 artmıştır (Çizelge 1).

Bu çalışmada elde edilen etkin difüzyon katsayılarının bitkisel yağların süperkritik CO₂ ekstraksiyonu ile elde edilenlerle uyum içinde olduğu görülmüştür. Katı içinde difüzyona etki eden parametrelerin başında katı matriksin yapısı gelmesine rağmen, parçacık boyutu, basınç ve sıcaklığın etkisinin incelendiği çalışmalarda etkin difüzyon katsayıları 10^{-9} - 10^{-15} m²/s arasında değişmiştir (Del Valle vd., 2006). Reverchon ve Marrone (2001), bitkisel yağların süperkritik CO₂ ekstraksiyonunun modellenmesi çalışmasında ortalama parçacık boyutu 3,0 mm olan ayçiçeği çekirdek yağının 280 bar 40°C de yapılan ekstraksiyonunda etkin difüzyon katsayısını $4,9 \times 10^{-9}$ olarak bulmuştur. Yine aynı çalışmada domates çekirdeği yağının 245 bar, 40°C'deki ekstraksiyonunda parçacık boyutunun (0,25 mm-1,02 mm) etkin difüzyon katsayısına (ort. $3,9 \times 10^{-10}$ m²/s) etkisinin olmadığını bildirmişlerdir. Bu çalışmada yine üzüm çekirdeği

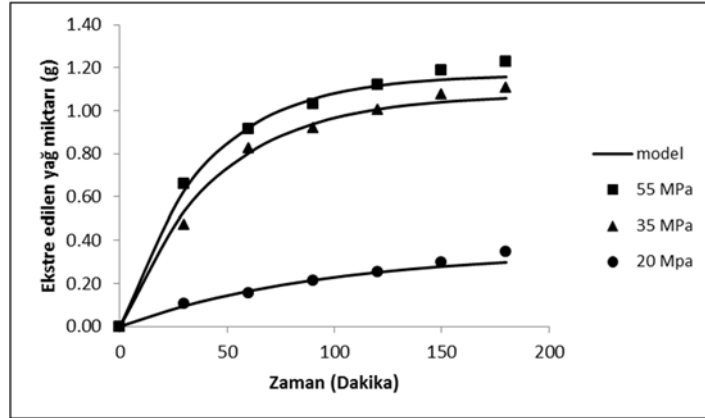
yağının difüzyon katsayısı ortalama $1,2 \times 10^{-10}$ m²/s, kişniş çekirdek yağının ortalama $6,16 \times 10^{-11}$ m²/s, kuşburnu tohumunun $1,1 \times 10^{-11}$ - $4,2 \times 10^{-10}$ m²/s arasında olduğu bildirilmiştir. Badem yağının 350 bar ve 40°C da ekstraksiyonunda etkin difüzyon katsayıları ($1,9 \times 10^{-11}$ - $1,4 \times 10^{-10}$ m²/s) parçacık boyutu ile artmıştır (0,30-1,90 mm) (Marrone vd., 1998). Üzüm çekirdeği ile yapılan diğer bir çalışmada ise üzüm çekirdeğinin parçacık boyutu arttıkça (0,20-0,69 mm) difüzyon katsayısı ($1,5 \times 10^{-12}$ - $2,8 \times 10^{-13}$ m²/s) azalmıştır (Sovova, 1994). 50°C sıcaklıkta, basınçla çuha çiçeği tohum yağı ekstraksiyonunda basıncın 400 bardan 600 bara çıkmasıyla etkin difüzyon katsayısı $3,9 \times 10^{-11}$ m²/s den $9,9 \times 10^{-11}$ m²/s'e artmıştır (King vd., 1997). Zeytin yağının süperkritik CO₂ ekstraksiyonu ile ilgili olarak yapılan bir başka çalışmada da 313 K ve 10 MPa'da $6,4 \times 10^{-13}$ m²/s olan etkin difüzyon katsayısı sabit sıcaklıkta 18 MPa'da yaklaşık dört katı artarak $24,6 \times 10^{-13}$ m²/s'e çıktığı bildirilmiştir (Esquivel vd., 1999).

Fick'in ikinci yasasının analitik çözümü sonucunda hesaplanan etkin difüzyon katsayıları kullanılarak boyutsuz konsantrasyon (Y) hesaplanmış ve buradan zamanla ekstre edilen yağ miktarı (g) bulunmuştur. Basınç, sıcaklık ve CO₂ akış hızının, deneysel ve modelden elde edilen ekstraksiyon hızı üzerine etkisi Şekil 1-3 de gösterilmiştir.

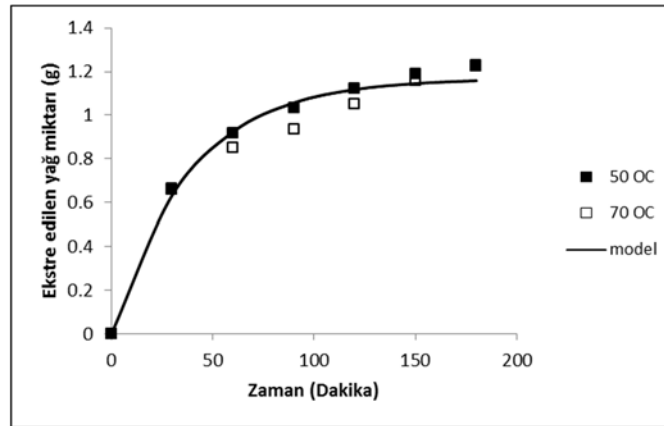
Şekil 1'de 1 L/dk CO₂ akış hızı ve 50 °C sıcaklıkta farklı basınçlardaki ekstraksiyon eğrileri verilmektedir. Buna göre basıncın artmasıyla ekstre edilen yağ miktarı artmaktadır. 1 L/dk CO₂ akış hızı ve 35 MPa basınçta farklı sıcaklıklardaki ekstraksiyon eğrileri Şekil 2'de verilmektedir. Sıcaklık, ekstraksiyon hızına bu sıcaklık ve basınçta etki etmemiştir. Akış hızı arttığında ekstraksiyonun başlangıç kısmı hızla artmaktadır Şekil 3'de 50 °C sıcaklıkta ve 35 Mpa basınçta farklı CO₂ akış hızlarındaki ekstraksiyon eğrileri verilmektedir. CO₂ akış hızının artması difüzyon hızını ve ekstraksiyon hızını arttırmaktadır. Modelden elde edilen ekstraksiyon hızı yaklaşık 120. dakikadan sonra dengeye ulaşmasına rağmen deneysel ekstraksiyon hızı zamanla azalan hızla da olsa devamlı artmaktadır. Deneysel verilerle model eğrileri arasında ortalama mutlak sapma (OMS) değerleri %2,35-%7,48 arasında değişmiştir.

Çizelge 1. Keten tohumu yağının süperkritik CO₂ ekstraksiyonunda etkin difüzyon katsayıları

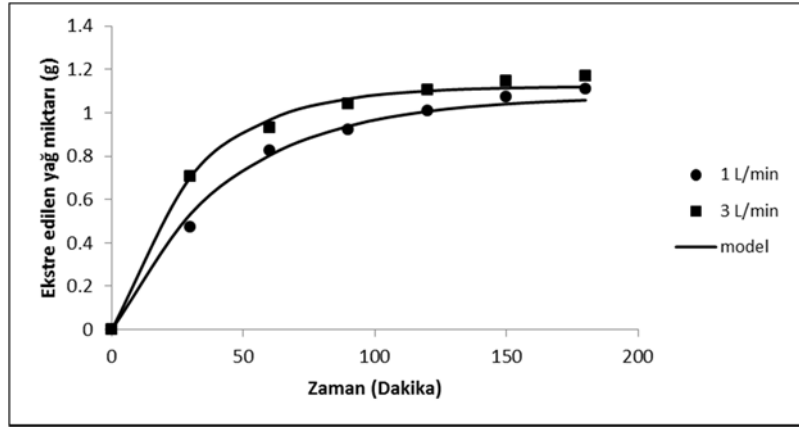
CO ₂ akış hızı (L/dak)			ρ _{CO2}	Ekstraksiyon		
	T (K)	P (MPa)	(kg/m ³)	verimi (%)	De x10 ¹² (m ² /s)	% OMS
1	323	20	786	7,41	2,4	6,13
		35	900	23,64	5,3	4,34
		55	979	26,16	5,9	2,84
	343	20	662	5,66	2,5	7,42
		35	827	24,62	6,0	3,62
		55	924	26,11	3,6	6,62
3	323	35		24,95	7,6	2,35
		55		28,26	9,2	7,48
	343	35		29,33	7,0	3,46
		55		29,93	10,8	5,14



Şekil 1. Basıncın ekstraksiyon hızına etkisi (50°C, 1 L CO₂/dk)



Şekil 2. 35 Sıcaklığın ekstraksiyon hızına etkisi (35 MPa, 1 L CO₂/dk)



Şekil 3. CO₂ akış hızının (L/dk) ekstraksiyon hızına etkisi (50°C, 35MPa)

KAYNAKLAR

AOCS (1993). Official Methods and Recommended Practices of the American Oil Chemists Society, Cilt 1, Dördüncü Baskı, AOCS Press, Champaign.

Bäumler, E.R., Crapiste, G.H. and Carell, A.A. (2010). Solvent Extraction: Kinetic Study of Major and Minor Compounds, *Journal of American Chemical Oil Society (JAOCS)* 82(12), 1489-1495.

Bozan, B. ve Temelli, F. (2002). Supercritical CO₂ Extraction of Flaxseed, *Journal of American Chemical Oil Society (JAOCS)* 79(3), 231-235.

Campos, L.M.A.S., Michielin, E.M.Z., Danielski, L. and Ferreira, S.R.S. (2005). Experimental Data and Modeling the Supercritical Fluid Extraction of Marigold (*Calendula officinalis*) Oleoresin, *Journal of Supercritical Fluids* 34, 163-170.

Carman, P.C. ve Haul, R.A.W. (1954). *Measurement of Diffusion Coefficients*, 222-A, Proceedings of the Royal Society of London.

Cunnane, S.C. (1995). *Flaxseed ALA Function in Human Metabolism and Function of α -Linolenic Acid in Human Nutrition*, in *Flaxseed in Human Nutrition*, Ed: S.C. Cunnane S.C. ve Thompson, L.U., AOCS Press, Champaign.

Del Valle, J.M., Germain, J.C., Uquiche, E., Zetzl, C. and Brunner, G. (2006). Microstructural Effects on Internal Mass Transfer of Lipids in Prepressed and Flaked Vegetable Substrates, *Journal of Supercritical Fluids* 37, 178-190.

Esquivel, M.M., Bernardo-Gil, M.G. and King, M.B. (1999). Mathematical Models for Supercritical Extraction of Olive Husk Oil, *Journal of Supercritical Fluids* 16, 43-58.

Friedrich, J.P. ve Pryde, E.H. (1984). Supercritical CO₂ Extraction of Lipid-Bearing Materials and Characterization of the Products, *Journal of American Chemical Oil Society (JAOCS)* 61, 223-228.

Geankoplis, C.J. (2003). *Transport Processes and Separation Process*, Perison Education Inc., Fourth Edition 410-490.

King, J.W. ve List, G.R. (1993). *Supercritical Fluid Technology in oil and Lipid Chemistry*, Champaign, IL: AOCS Press.

King J.W., Cygnarowicz-Provost, M. and Favati, F. (1997). "Supercritical Fluid Extraction of Evening Primrose Oil Kinetic and Mass Transfer Effects" *Italian Journal of Food Science* 3(9), 193-204.

Marrone, C.M., Poletto, M.E., Reverchon, E.A. and Stassi, A. (1998). Almond Oil Extraction by Supercritical CO₂: Experiments

and Modeling, *Chemical Engineering Science* 53, 3711-3718.

Papas, A.M. (1998). Antioxidant Status, Diet, Nutrition, and Health, CRC Press, Boca Raton, FL.

Reverchon, E. ve C. Marrone, C. (2001). Modeling and Simulation of the Supercritical CO₂ Extraction of Vegetable Oils, *Journal of Supercritical Fluids* 19, 161-175.

Rizvi, S.S.H. (1994). *Supercritical Fluid Processing of Food and Biomaterials*, Chapman & Hall, Glasgow, England.

Simopoulos, A.P. (1990). *Omega-3 Fatty Acids in Growth and Development, in Omega-3 Fatty Acids in Health and Disease*, Ed: Lees, R.S., Karel, M., Dekker, M., New York.

Sovova, H. (1994). Rate of the Vegetable Oil Extraction with Supercritical CO₂. I., Modeling Extraction Curves, *Chemical Engineering Science* 49, 409-419.

Stahl, E., Schutz, E. and Mangold, H.K. (1980). Extraction of Seed Oils with Liquid and Supercritical CO₂, *Journal of Agricultural Food Chemistry*, 28, 1153-1157.

Subra, P., Castellani, S., Jestin, P. and Aoufi, A. (1998). "Extraction of β -Carotene with Supercritical Fluids Experiments and Modelling", *Journal of Supercritical Fluids*, 12, 261-269.

