

## Extração de taninos de *Acacia sp.* com potencial uso na coagulação: um contributo para a bioeconomia

Ricardo Ferreira <sup>a</sup>, Renata D'arc Coura <sup>a,b</sup>, Ana Isabel Ferraz <sup>a,c</sup>, Leonel Nunes <sup>a</sup>, Ana Cristina Rodrigues <sup>a,c\*</sup>

<sup>a</sup> PROMETHEUS, Unidade de Investigação em Materiais, Energia e Ambiente para a Sustentabilidade - Escola Superior Agrária, Instituto Politécnico de Viana do Castelo, Rua da Escola Industrial e Comercial de Nun'Alvares, 4900-347 Viana do Castelo, Portugal

<sup>b</sup> LEAF—Linking Landscape, Environment, Agriculture and Food Research Center, Associated Laboratory TERRA, Instituto Superior de Agronomia, Universidade de Lisboa, Tapada da Ajuda, 1349-017 Lisboa, Portugal

<sup>c</sup> CEB-Centro de Engenharia Biológica da Universidade do Minho, Campus de Gualtar, 4710-057, Braga, Portugal

### Resumo

A coagulação-floculação é uma das etapas mais importantes do tratamento de água. Nas Estações de Tratamento de Águas utiliza-se tradicionalmente coagulantes inorgânicos pré-polimerizados, contudo, estudos recentes têm evidenciado o potencial de taninos condensados para a produção de coagulantes de origem natural, como alternativa aos coagulantes químicos. Neste contexto, o presente trabalho pretende realçar a importância do desenvolvimento de soluções baseadas na natureza que possam ser alternativas aos processos convencionais, pelos benefícios ambientais, sociais e económicos que podem proporcionar. O estudo centrou-se na otimização do processo de extração de taninos condensados da casca da *Acacia dealbata*, como estratégia para a valorização de resíduos florestais, promoção da bioeconomia e sustentabilidade do território. Nas condições de extração testadas, o melhor rendimento foi obtido à temperatura de 40 °C, utilizando como solvente etanol a 50% (v/v), sem agitação e um tempo de extração de 30 min. As maiores concentrações de taninos condensados e compostos fenólicos foram observadas em amostras de *Acacia sp.* com maior desenvolvimento vegetativo (perímetro do tronco de 20 cm), correspondendo a  $246,2 \pm 9,4$  miligramas por grama de extrato seco ( $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ ) e  $706,2 \pm 27,2$   $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ , respetivamente.

**palavras-chave:** bioeconomia circular, coagulantes naturais, extração de taninos condensados, química verde, valorização de resíduos florestais

**doi:** 10.22181/aer.2023.1202

\* Autor para correspondência.  
E-mail : rcoura@esa.ipv.pt

## Tannins extraction from *Acacia* sp. with potential use in coagulation: a contribution to the bioeconomy

Ricardo Ferreira <sup>a</sup>, Renata D'arc Coura <sup>a,b</sup>, Ana Isabel Ferraz <sup>a,c</sup>, Leonel Nunes <sup>a</sup>, Ana Cristina Rodrigues <sup>a,c\*</sup>

<sup>a</sup> PROMETHEUS, Research Unit in Materials, Energy and Environment for Sustainability - Higher Agricultural School, Polytechnic Institute of Viana do Castelo, Rua da Escola Industrial e Comercial de Nun'Alvares, 4900-347 Viana do Castelo, Portugal

<sup>b</sup> LEAF—Linking Landscape, Environment, Agriculture and Food Research Center, Associated Laboratory TERRA, Instituto Superior de Agronomia, University of Lisbon, 1349-017 Lisbon, Portugal

<sup>c</sup> CEB—Center for Biological Engineering of the University of Minho, Campus de Gualtar, 4710-057, Braga, Portugal

### Abstract

Coagulation-flocculation is one of the most important steps in water treatment. In Water Treatment Plants, pre-polymerized inorganic coagulants are traditionally used; however, recent studies have shown the potential of condensed tannins for the production of natural coagulants as an alternative to chemical coagulants. In this context, the present work intends to highlight the importance of the development of nature-based solutions that can be alternative to conventional processes, due to the environmental, social and economic benefits they can provide. The study focused on optimizing condensed tannin extraction process from *Acacia dealbata* barks, as a strategy for valuing forest residues, promoting the territory bioeconomy and sustainability. In the tested extraction conditions, the best yield was obtained at a temperature of 40 °C, using 50% ethanol (v/v) as the solvent, without stirring and an extraction time of 30 min. The highest concentrations of condensed tannins and phenolic compounds were observed in samples of *Acacia* sp. with higher vegetative development (trunk perimeter of 20 cm), corresponding to  $246,2 \pm 9,4$  milligrams per gram of dry extract ( $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ ) and  $706,2 \pm 27,2$   $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ , respectively.

**keywords:** circular bioeconomy, condensed tannins extraction, forest residues recovery, green chemistry, natural coagulants

**doi:** 10.22181/aer.2023.1202

\* Corresponding author.

E-mail : rcoura@esa.ipvc.pt

## 1 Introdução

A coagulação é um processo fundamental no tratamento da água para consumo humano. Nas Estações de Tratamento de Água (ETA) utilizam-se coagulantes químicos, mais concretamente sais metálicos, como o sulfato de alumínio e coagulantes inorgânicos pré-hidrolisados, como cloreto de polialumínio, cloridrato de alumínio e cloreto férrico (Zaman et al. 2021), que permitem neutralizar as cargas elétricas das partículas suspensas na água, facilitando a sua aglomeração e posterior separação. Este processo gera elevadas quantidades de lamas que, por constituírem um potencial risco ambiental, motivaram a procura por alternativas mais sustentáveis. Neste contexto, os polifenóis, em particular os taninos condensados de origem vegetal, têm sido objeto de estudo e investigação pois, além de possuírem um mecanismo de ação semelhante ao dos coagulantes químicos, originam flocos que podem ser utilizados como condicionadores/fertilizantes orgânicos de solos (Mangrich et al. 2014), o que torna a sua aplicação atrativa como forma de contribuir para a valorização de resíduos florestais, bem como para a promoção da (bio)economia circular e da sustentabilidade do território (Shirmohammadli et al. 2018).

Estes metabolitos polifenólicos podem ser classificados em 3 grupos: i) os hidrolisáveis, compostos maioritariamente por ésteres de glucose (Ozacar e Sengil 2003), ii) os florotaninos, que derivam do floroglucinol (1,3,5-tri-hidroxibenzeno) e iii) os condensados, também denominados proantocianidinas (Duval e Avérous 2016). Os taninos podem ser encontrados na generalidade das plantas vascularizadas, porém a sua quantidade é variável de espécie para espécie (Ozacar e Sengil 2003). Podem ser encontrados, por exemplo, nas cascas de *Acacia mearnsii* ou *mollissima* (Abilleira et al. 2021), *Coriaria nepalensis* (Guo et al. 2020), *Pinus patula* (Petins et al. 2021), nas folhas de *Rhus coriaria* L. (Gholami et al. 2021), em favas como *Vicia faba* L. (Kukic et al. 2015) e em sementes de *Moringa oleifera* (Katayon et al. 2006). A natureza heterogénea dos taninos impede uma generalização dos métodos de extração. Parâmetros como a composição dos extratos, a pureza e o rendimento do processo estão subordinados ao tipo de biomassa vegetal, método de extração, tempo de operação, temperatura, entre outros parâmetros (Hoyos-Martínez et al. 2019). Arina e Harisun (2019) em estudo com galhos de *Quercus infectoria* obtiveram maior concentração de ácido tânico ( $2233,82 \pm 1,311 \text{ mg g}^{-1}$ ) à temperatura de 75 °C, utilizando água como solvente e tempo de extração de 120 minutos. Por sua vez, Rhazi et al. (2019), em extrações por microondas a partir de cascas de *Acacia mollissima* utilizando como solvente etanol a 80% (v/v) e tempo de extração de 1 minuto, obtiveram  $18,50 \pm 0,06 \text{ mg g}^{-1}$  de taninos condensados.

Para a produção de coagulantes, os taninos, após extraídos, podem ser cationizados através da reação de Mannich; no entanto, os reagentes utilizados no processo, formaldeídos e aminas, possuem elevada toxicidade. Grenda et al. (2018), a partir da aminometilação de Manich de taninos extraídos de *Acacia mearnsii* e *Schinopsis balansae*, obtiveram uma remoção de turvação de 68% de um efluente industrial. Os autores reportam ainda que a mistura do bio coagulante com um coagulante sintético resultou em remoções de 89% de cor e 93% de turvação. Machado et al. (2020) produziram, entretanto, um coagulante livre de formaldeído a partir de taninos extraídos da *Acacia mearnsii* que, aplicado a um efluente sintético, permitiu obter uma remoção de turvação de 100% e de cor de 90%.

O presente estudo teve como objetivo principal proporcionar um avanço no conhecimento científico e tecnológico sobre os processos de extração de compostos bioativos de matrizes vegetais, seguindo os princípios da química verde. Para alcançar este desígnio, o estudo focou-se na otimização do processo de extração de taninos condensados de *Acacia dealbata*, avaliando o efeito de parâmetros operacionais como a temperatura, velocidade de agitação, tempo de extração e tipo de solvente.

## 2 Materiais e métodos

### 2.1 Matrizes vegetais utilizadas e condições de extração estudadas

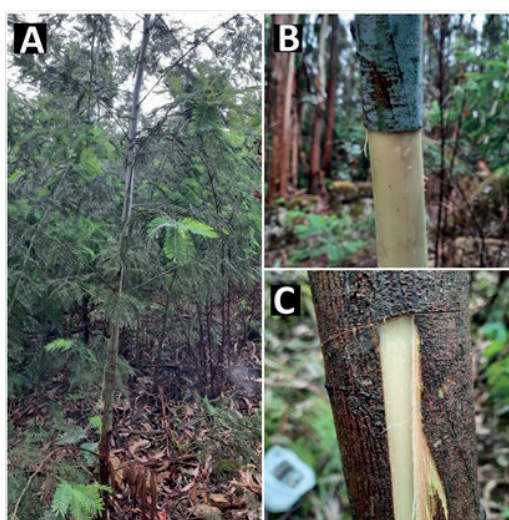
No presente trabalho foram utilizadas matrizes vegetais (*Acacia dealbata*), em três fases distintas de desenvolvimento, para a extração de taninos condensados, tendo-se procedido à sua caracterização em termos de teor de humidade, cinzas e azoto total de Kjeldahl. O processo de extração foi realizado com diferentes condições operacionais no que se refere aos parâmetros: i) tipo de solvente, ii) temperatura, iii) tempo de extração e iv) velocidade de agitação (Quadro 1). O doseamento de compostos fenólicos nos extratos aquosos e etanoicos obtidos foi realizado pelo método de Folin-Ciocalteu, usando ácido gálico como padrão de composto fenólico (Abilleira et al. 2021). A concentração de taninos foi determinada pelo método proposto por Burns (1971). Todas as análises foram realizadas em triplicado.

**Quadro 1.** Condições operacionais

Tipo de solvente	Temperatura	Tempo de extração	Agitação
Água/Etanol a 50% (v/v)	Ambiente (20 °C)/40 °C/60 °C	15/30/60 minutos	com/sem

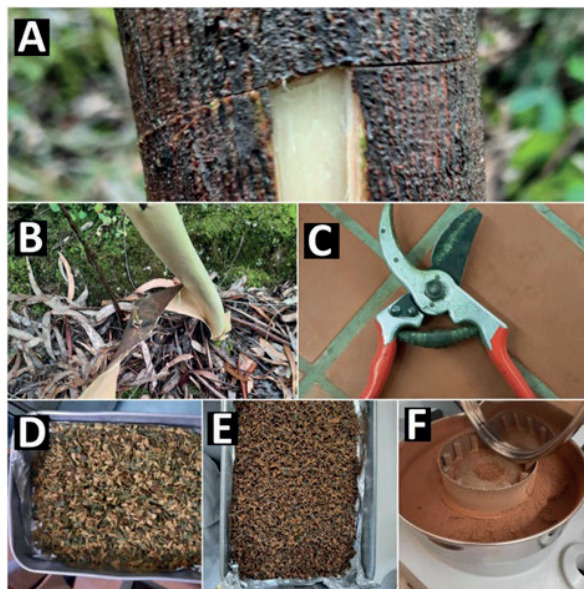
### 2.2 Preparação das amostras para extração

Na Figura 1A está representada a matriz vegetal utilizada (casca de *Acacia dealbata*, vulgarmente conhecida como mimosa). As amostras foram recolhidas em Arnoso (Santa Maria) em Vila Nova de Famalicão. Foram recolhidas três amostras de casca de *Acacia dealbata* com desenvolvimentos vegetativos diferentes, correspondentes a diferentes perímetros do tronco a 1 m do solo, designadamente 3 cm (A1), 15 cm (A2) e 20 cm (A3). Com o desenvolvimento vegetativo mais avançado ocorre o endurecimento e alteração da tonalidade da casca (Figura 1C) comparativamente à casca de *Acacia* com desenvolvimento vegetativo mais precoce que, normalmente, se apresenta menos rígida e possui uma tonalidade esverdeada (Figura 1B).



**Figura 1.** Matriz vegetal utilizada (*Acacia dealbata*): A) *Acacia dealbata*; B) Tronco de *Acacia* sp. de cor esverdeada com a casca parcialmente removida; C) Tronco de *Acacia* sp. de cor castanha com a casca parcialmente removida

Após a remoção de ramos e rebentos (Figuras 2A e B), utilizando-se uma tesoura (Figura 2C) as cascas foram cortadas em amostras de aproximadamente 1 cm<sup>2</sup> (Figura 2D) e submetidas a um processo de secagem em estufa com circulação forçada de ar, à temperatura de 60 °C, até se obter peso constante (Figura 2E). Após a desidratação, realizou-se a moagem para obter amostras com granulometria de cerca de 0,5 mm (Figura 2F).



**Figura 2.** Etapas da preparação da casca da *Acacia sp.* para extração: A e B) recolha da matriz vegetal (casca de *Acacia sp.*); C) instrumento de corte utilizado; D) amostras de casca de *Acacia sp.* cortada (1 cm<sup>2</sup>); E) casca de *Acacia sp.* cortada e desidratada; F) moagem das cascas cortadas e desidratadas

### 2.3 Processo de extração

Foram adicionados a frascos SHOTT, com volume útil de 50 mL, 1 g de casca de *Acacia sp.* desidratada e moída e 10 mL de solvente (água desionizada ou etanol a 50% v/v) (Figura 3A). O processo de extração decorreu em incubadora orbital (Sheldon incubator SI4-2) (Figura 3B) variando-se parâmetros como o tipo de solvente, a temperatura, o tempo de extração e a velocidade de agitação. Após o tempo de extração, as soluções foram transferidas para tubos Falcon (Figura 3C) e centrifugadas (centrífuga Hettich zentrifugen D-78532 tuttingen) durante 10 minutos, à temperatura de 4 °C e agitação de 5000 rpm. Após a centrifugação (Figura 3D), procedeu-se à filtração das soluções de extração (Figura 3E). Armazenou-se o sobrenadante à temperatura de 4 °C em frascos revestidos com papel de alumínio (Figura 3F) para posterior determinação da concentração de taninos condensados e o precipitado foi refrigerado em placas de Petri.

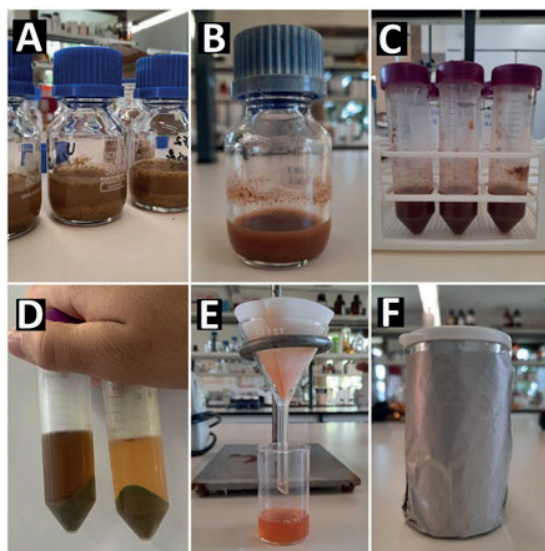
Após a filtração, 5 mL do sobrenadante foram adicionados a placas de Petri previamente condicionadas e levadas à estufa, à temperatura de 105 °C até peso constante. A concentração do extrato seco foi calculada de acordo com a equação (1).

$$\text{Concentração extrato seco (g L}^{-1}\text{)} = \frac{P_{ES}}{V_E} \quad (\text{eq. 1})$$

Onde,

P<sub>ES</sub> = Peso do extrato seco (g)

V<sub>E</sub> = Volume de extrato (L)



**Figura 3.** Etapas do processo de extração de taninos condensados: (A) Frascos com a matéria-prima e o solvente de extração; (B) Frascos após a extração de taninos condensados; (C) Amostras colocadas nos tubos Falcon, antes da centrifugação; (D) Amostras centrifugadas; (E) Processo de filtração do sobrenadante; (F) Frasco revestido com papel de alumínio para armazenamento

A concentração de taninos condensados e a concentração de compostos fenólicos na sua relação com o desenvolvimento vegetativo de *Acacia dealbata* descritos em 3.3, foram obtidas a partir da equação (1) e numa base de extrato seco (p/p), de acordo com os métodos descritos em 2.1 (Burns e Folin-Ciocalteu). Optou-se por expressar a concentração de taninos em miligrama por grama de extrato seco ( $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ ) ao invés de miligrama por litro de extrato ( $\text{mg L}^{-1}$ ).

Por sua vez, o rendimento da extração foi calculado de acordo com a equação (2), em que a concentração de taninos condensados é expressa numa base de extrato húmido (p/v).

$$\text{Rendimento (\%)} = \left( \frac{C_{TC} \times V_E}{P_{MP}} \right) \times 100 \quad (\text{eq. 2})$$

Onde,

$C_{TC}$  = Concentração de taninos condensados ( $\text{g L}^{-1}$ )

$V_E$  = Volume de extrato (L)  $P_{MP}$  = Peso inicial de matéria-prima (g)

## 2.4 Análise estatística

A análise estatística foi realizada através do software SPSS Statistics na versão 22 (SPSS Inc., Chicago, IL, EUA) e a análise de variância unidirecional (ANOVA) foi usada para comparar as médias dos tratamentos. Foram consideradas as diferenças ao nível significativo de 95% ( $p \leq 0,05$ ) através do teste post-hoc de Tukey.

## 3 Resultados e discussão

### 3.1 Caracterização da matriz de extração (casca de *Acacia dealbata*)

Considerando o perímetro do tronco a 1 m acima do solo como indicador do nível de desenvolvimento vegetativo da planta, é possível observar através da caracterização química das amostras de casca de *Acacia dealbata* descritas no Quadro 2, que a amostra da planta com um desenvolvimento vegetativo menor (A1) apresenta um maior teor de humidade (4,0%). As outras duas amostras, correspondentes a plantas com maior

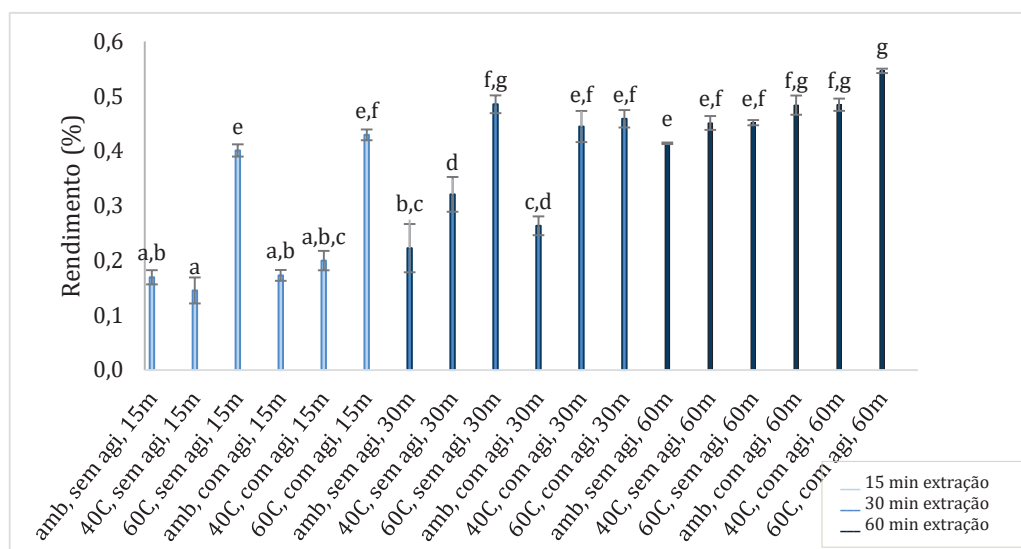
desenvolvimento vegetativo, apresentam menor percentagem de humidade (3,6% no caso da amostra A2 e 3,5% no caso da amostra A3). O teor de azoto total de Kjeldahl revelou uma tendência decrescente à medida que aumenta a idade da planta. Todas as amostras apresentaram, aproximadamente, um teor de 2,0% no que se refere às cinzas.

**Quadro 2.** Caracterização química das amostras de casca de *Acacia dealbata*, em diferentes fases de desenvolvimento vegetativo

Amostra	Humidade (%)	Cinzas (%)	Azoto de Kjeldahl (%)
A1 (perímetro de 3,3 cm)	4,01 ± 0,07	2,00 ± 0,09	1,94 ± 0,02
A2 (perímetro de 15 cm)	3,59 ± 0,05	2,01 ± 0,01	1,85 ± 0,03
A3 (perímetro de 20 cm)	3,51 ± 0,03	2,00 ± 0,02	1,67 ± 0,01

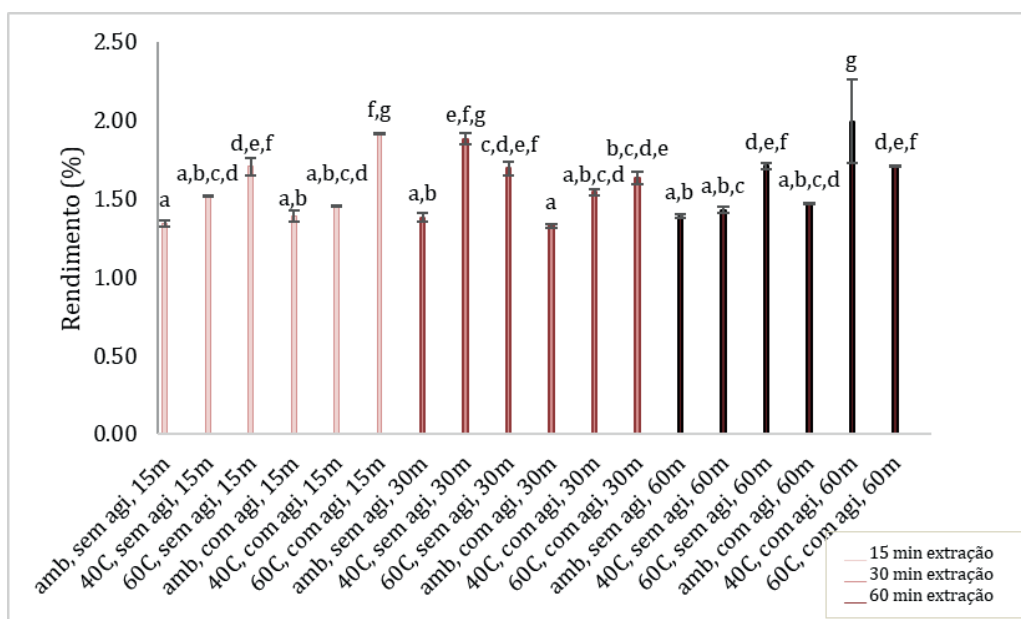
### 3.2 Extração de taninos condensados

Segundo Al-Farsi e Lee (2008), o aumento da temperatura traduz-se num aumento da solubilidade do soluto, assim como num aumento do coeficiente de difusão e redução da viscosidade, o que facilita o processo de extração. Por outro lado, num estudo realizado por Naima et al. (2015), o rendimento de extração à temperatura de 60 °C foi duas vezes superior ao observado à temperatura de 80 °C, sugerindo que temperaturas superiores a 60 °C podem facilitar a degradação dos taninos condensados. No entanto, os resultados obtidos nos ensaios utilizando água como solvente (Figura 4) sugerem reduzida influência da temperatura quando há agitação e o tempo de contato é de 60 min, uma vez que os rendimentos foram de 0,48% a 20 °C; 0,48% a 40 °C e 0,55% a 60 °C.



**Figura 4.** Rendimentos de extração com água para diferentes condições de operação. Letras diferentes acima das barras indicam diferenças significativas (teste Tukey;  $p < 0,05$ )

Relativamente ao rendimento na extração de taninos condensados, ao utilizar etanol a 50% (v/v) como solvente (Figura 5), não foram observadas diferenças significativas entre o ensaio realizado por 60 minutos sob agitação, à temperatura de 40 °C (1,99%), comparativamente com os ensaios a 60 °C, com agitação por 15 min (1,92%) ou a 40 °C, sem agitação por 30 min (1,88%). Naima et al. (2015) obteve rendimentos na ordem dos 3,2% usando etanol como solvente. A idade (10 anos) da planta utilizada pelo referido autor poderá justificar o rendimento mais elevado quando comparado com os rendimentos obtidos no presente estudo.



**Figura 5.** Rendimentos de extração com etanol a 50% (v/v) para diferentes condições de operação. Letras diferentes acima das barras indicam diferenças significativas (teste Tukey;  $p < 0,05$ )

Relativamente aos tipos de solvente testados, foram obtidos rendimentos de extração mais elevados com o uso de etanol, em concordância com os resultados obtidos num estudo realizado por Abilleira et al. (2021) sobre a extração de taninos condensados de *Acacia* sp. Os referidos autores obtiveram rendimentos de aproximadamente 12% ao utilizar etanol a 80% (v/v), superiores aos obtidos no presente estudo com etanol a 50% (v/v). Segundo Vijayalaxmi et al. (2014), o rendimento da extração é dependente da polaridade do solvente, o que irá definir quantitativamente e qualitativamente o conteúdo extraído, sendo assim fundamental regular este parâmetro através da combinação de etanol com água, em diferentes frações.

### 3.3 Concentração de taninos condensados e compostos fenólicos em extrato seco na sua relação com o desenvolvimento vegetativo de *Acacia dealbata*

Nas condições testadas, observou-se uma tendência crescente no rendimento de extração de taninos condensados (Quadro 3) com o desenvolvimento vegetativo da planta, registando-se diferenças significativas nos valores obtidos para idades de planta mais avançadas, o que está de acordo com os resultados do estudo realizado por Naima et al. (2015). Em relação ao teor de polifenóis, observou-se um aumento significativo da sua concentração no extrato à medida que aumenta o perímetro do tronco de *Acacia dealbata*.

**Quadro 3.** Concentração de taninos condensados e compostos fenólicos totais no extrato e sua relação com o desenvolvimento vegetativo de *Acacia dealbata*. Letras diferentes indicam diferenças significativas (teste Tukey;  $p < 0,05$ )

Perímetro do tronco a 1 metro do solo (cm)	Concentração de taninos ( $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ )*	Concentração de compostos fenólicos totais ( $\text{mg g}_{\text{es}}^{-1}$ )*
3 (A1)	207,45 ± 6,27 <sup>a</sup>	505,90 ± 0,09 <sup>a</sup>
15 (A2)	223,20 ± 3,70 <sup>a</sup>	621,97 ± 29,09 <sup>b</sup>
20 (A3)	246,20 ± 2,41 <sup>b</sup>	706,17 ± 27,21 <sup>c</sup>

\*miligramas por gramas de extrato seco



## 4 Conclusões

Os resultados do presente estudo demonstram que, apesar dos baixos rendimentos, a extração de taninos condensados seguindo os princípios da química verde se apresenta como uma alternativa de valorização de resíduos florestais, podendo contribuir para a promoção da bioeconomia e da sustentabilidade do território.

Destacam-se as seguintes conclusões:

- um tempo de operação de 15 minutos revelou-se adequado para a extração etanólica de taninos condensados de casca de *Acacia dealbata* se houver agitação e à temperatura de 60 °C;
- o uso de etanol a 50% (v/v) como solvente proporcionou um aumento dos rendimentos de extração em 1,2–1,5 pontos percentuais comparativamente com a água.
- considerando-se as menores necessidades energéticas, os resultados sugerem que as condições operacionais mais adequadas foram a extração etanólica sem agitação à temperatura de 40 °C e tempo de contato de 30 minutos, com rendimento de 1,9%.
- a concentração de taninos condensados e de compostos fenólicos totais aumentou significativamente para estados de desenvolvimento vegetativo da planta mais avançados; os valores mais elevados foram observados em árvores com perímetro do tronco de 20 cm.

Considerando-se os baixos rendimentos obtidos, estudos futuros sobre a otimização de extrações assistidas por ultrassom podem constituir uma alternativa para potenciar o aumento da extração destes compostos fenólicos.

## Agradecimentos

Este trabalho foi desenvolvido no âmbito do projeto TECH - Tecnologia, Ambiente, Criatividade e Saúde, Norte-01-0145-FEDER-000043, cofinanciado pelo Programa Operacional Regional do Norte (NORTE 2020), através do Portugal 2020 e do Fundo Europeu de Desenvolvimento Regional (FEDER). Leonel Nunes foi apoiado pela proMetheus - Unidade de Investigação & Desenvolvimento em Materiais, Energia e Ambiente para a Sustentabilidade- UIDP/05975/2020, financiado por fundos nacionais através de FCT — Fundação para a Ciência e Tecnologia.

## Referências

- Abilleira F., Varela P., Cancela A., Álvarez X., Sánchez Á., Valero E. (2021). Tannins extraction from *Pinus pinaster* and *Acacia dealbata* bark with applications in the industry. *Industrial Crops and Products*, 164, 113-394. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2021.113394>
- Arina, M.Z.I., Harisun, Y. (2019). Effect of extraction temperatures on tannin content and antioxidant activity of *Quercus infectoria* (Manjakani). *Biocatalysis and Agricultural Biotechnology*, 19, 101104. <https://doi.org/10.1016/j.bcab.2019.101104>
- Al-Farsi M., Lee C. Y. (2008). Optimization of phenolics and dietary fibre extraction from date seeds. *Food Chemistry* 3, 977-985. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2007.12.009>
- Burns, E. R. (1971). Method for estimation of tannin in grain sorghum. *Agronomy Journal*, 63, 511-512. <https://doi.org/10.2134/agronj1971.00021962006300030050x>
- Duval A., Avérous L. (2016). Characterization and physicochemical properties of condensed tannins from *Acacia catechu*. *Journal of agricultural and food chemistry*, 64, 1751-1760. <https://doi.org/10.1021/acs.jafc.5b05671>

- Gholami, M., Yamini, G. (2021). Non-Isocyanate polyurethane from the extracted tannin of sumac leaves: Synthesis, characterization, and optimization of the reaction parameters. *Industrial Crops and Products*, 161, 113195. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2020.113195>
- Grenda K., Arnold J., Gamelas J., Rasteiro M. (2020). Up-scaling of tannin-based coagulants for wastewater treatment: performance in a water treatment plant. *Environmental and Sustainable Chemical Engineering*, 27, 1202-1213. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-2570-5>
- Guo, L., Qiang, T., Ma, Y., Wang, K., Du, K. (2020) Optimisation of tannin extraction from *Coriaria nepalensis* bark as a renewable resource for use in tanning. *Industrial Crops & Products*, 149, 112360. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2020.112360>
- Hoyos-Martínez, P. L. E. (2019). Tannins extraction: A key point for their valorization and cleaner production. *Journal of Cleaner Production*, 206, 1138-1155. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.09.243>
- Katayoon, S., Noor, M.J., Asma, M., Ghani, L.A., Thamer, A.M., Azni, I., Ahmad, J., Khor, B.B., Suleyman, A.M. (2006). Effects of storage conditions of *Moringa oleifera* seeds on its performance in coagulation. *Bioresource Technology*, 97, 1455-1460. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2005.07.031>
- Kukic, D.V., Sciban, M.B., Prodanovic, J.M., Tepic, A.N., Vasic, M.A. (2015). Extracts of fava bean (*Vicia faba* L.) seeds as natural coagulants. *Ecological Engineering*, 84, 229-232. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2015.09.008>
- Machado G., Santos C., Gomes J., Faria D., Santos F., Lourega R. (2020). Chemical modification of tannins from *Acacia mearnsii* to produce formaldehyde free flocculant. *Science of the total environment*, 745, 140-875. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140875>
- Mangrich, A. S., Doumer, M. E., Mallmann, A. S., Wolf, C. R. (2014). Química verde no tratamento de águas: uso de coagulante derivado de tanino de *Acacia mearnsii*. *Revista Virtual de Química*, 6, 1, 12-15. <https://doi.org/10.5935/1984-6835.20140002>
- Naima R., Oumam M., Hannache, Sesbou A., Charrier B., Pizzi A., Charrier-El Bouhtoury F. (2015). Comparison of the impact of different extraction methods on polyphenols yields and tannins extracted from Moroccan *Acacia mollissima* barks. *Industrial Crops and Products*, 70, 245-252. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2015.03.016>
- Ozacar M., Sengil A. (2003). Evaluation of tannin biopolymer as a coagulant aid for coagulation of colloidal particles. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 229, 85-96. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2003.07.006>
- Rhazi, N., Hannache, H., Oumam, M., Sesbou, A., Charrier, B., Pizzi, A., Charrier-El Bouhtoury, F. (2019). Green extraction process of tannins obtained from Moroccan *Acacia mollissima* barks by microwave: Modeling and optimization of the process using the response surface methodology RSM. *Arabian Journal of Chemistry*, 12, 2668-2684. <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2015.04.032>
- Shirmohammadi Y., Efhamsisi D., Pizzi A. (2018). Tannins as a sustainable raw material for green chemistry: A review. *Industrial Crops and Products*, 126, 316-332. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2018.10.034>
- Singleton V., Rossi J. (1965). Colorimetry of total phenolics with phosphomolybdic-phosphotungstic acid reagents. *American Journal of enology and viticulture*, 16, 144-158. <https://www.ajevonline.org/content/16/3/144>
- Vijayalaxmi S., Jayalakshmi SK., Sreeramulu K. (2014). Polyphenols from different agricultural residues: extraction, identification and their antioxidant properties. *Journal of Food Science and Technology*, 52, 2761-2769. <https://doi.org/10.1007/s13197-014-1295-9>
- Zaman N., Rohani R., Yusoff I., Kamsol M., Basiron S., Rashid A. (2021). Eco-Friendly coagulant versus industrially used coagulants: identification of their coagulation performance, Mechanism and optimization in water treatment process. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 18 (17), 9164. <https://doi.org/10.3390/ijerph18179164>