

## Aplikasi *Natural Deep Eutectic Solvent* (NADES) Sebagai Green Solvent pada Ekstraksi Kafein dan Katekin dari Limbah Kulit Kopi

Fitria Puspita<sup>1\*</sup>, Isna Nurhidayati<sup>1</sup>, Bella Mellisani<sup>1</sup>, Fajar Amelia Rachmawati Putri<sup>1</sup>, Anton Restu Prihadi<sup>2</sup>

<sup>1</sup>. Program Studi Analisis Kimia, Politeknik AKA Bogor, Jl. Pangeran Sogiri No.283, Tanah Baru, Bogor Utara, Kota Bogor, Jawa Barat 16154

<sup>2</sup>. Program Studi Penjaminan Mutu Industri Pangan, Politeknik AKA Bogor, Jl. Pangeran Sogiri No.283, Tanah Baru, Bogor Utara, Kota Bogor, Jawa Barat 16154

\*Corresponding author: pipitfuspita@gmail.com

Received: 13 May 2023; Accepted: 05 July 2023

**Abstract:** Various studies have been developed to support green industry by developing green solvents to replace organic solvents which are generally toxic, volatile and harmful to human health and the environment. Environmentally friendly solvents that have been successfully developed in the 21st century are eutectic solvents or known as natural deep eutectic solvents (NADES). NADES can be formed from primary metabolites such as amino acids, organic acids, sugars, or choline derivatives. NADES has a high ability to extract polar, non-polar compounds and several other secondary metabolites. The amount of waste generated from the process of separating coffee from its seeds is abundant but has not been used optimally. In fact, the coffee husk waste has the potential to be used further as a food product because it contains many active substances, especially phenolic compounds such as caffeine and catechins. In this study, the NADES solvent based on choline chloride-proline (1:1) was successfully synthesized and used to extract phenolic compounds in the form of caffeine and catechins from coffee husk waste. The results of the analysis using HPLC showed that the levels of caffeine and catechins extracted were 14.5 ppm and 61 ppm, respectively. Based on these results, the caffeine and catechins in coffee skin waste were successfully extracted using NADES based on choline chloride – proline (1:1).

**Keywords:** Caffeine, catechin, green solvent, HPLC, NADES

**Abstrak:** Berbagai riset telah dikembangkan untuk mendukung *green industry* dengan mengembangkan *green solvent* untuk menggantikan pelarut organik yang umumnya bersifat toksik, mudah menguap, dan berbahaya bagi kesehatan manusia dan lingkungan. Pelarut ramah lingkungan yang berhasil dikembangkan pada abad 21 adalah pelarut eutektik atau dikenal dengan istilah *natural deep eutectic solvent* (NADES). NADES dapat dibentuk dari metabolit primer seperti asam amino, asam organik, gula, atau turunan kolin dan NADES memiliki kemampuan yang tinggi untuk ekstraksi senyawa polar, non polar dan beberapa metabolit sekunder lainnya. Limbah yang dihasilkan dari proses pemisahan kopi dengan bijinya memiliki jumlah yang melimpah namun belum dimanfaatkan secara optimal. Padahal, kulit kopi tersebut berpotensi dimanfaatkan lebih lanjut sebagai produk pangan karena mengandung banyak zat aktif terutama senyawa fenolik seperti kafein dan katekin. Pada penelitian ini, pelarut NADES berbasis kolin klorida-prolin (1:1) telah berhasil disintesis dan digunakan untuk ekstraksi senyawa fenolik dalam bentuk kafein dan katekin dari limbah kulit kopi. Hasil analisis menggunakan HPLC menunjukkan bahwa kadar kafein dan katekin yang berhasil diekstraksi berturut-turut sebesar 14,5 ppm dan 61 ppm. Berdasarkan hasil tersebut, maka kafein dan katekin dalam limbah kulit kopi berhasil diekstraksi menggunakan NADES berbasis kolin klorida – prolin (1:1).

**Kata kunci:** *Green solvent*, HPLC, kafein, katekin, NADES

DOI: 10.15408/pbsj.v5i1.32256

### 1. PENDAHULUAN

*Green* ekstraksi adalah salah satu cara untuk mencari pelarut baru yang aman menggantikan pelarut organik yang umumnya memiliki volatilitas tinggi. Saat ini, proses ekstraksi pelarut banyak

menggunakan pelarut organik yang umumnya bersifat toksik (Abbot et al., 2002). Metode ekstraksi untuk senyawa dari bahan alam umumnya dilakukan dengan metode maserasi menggunakan

pelarut organik seperti metanol, etanol, aseton, heksana, dan etil asetat. Proses ini membutuhkan waktu yang lama serta menggunakan pelarut dalam jumlah banyak. Selain itu, teknik ekstraksi tersebut juga membutuhkan proses penghilangan pelarut dan pemurnian untuk memperoleh ekstrak yang bebas dari pelarut. Oleh sebab itu, perkembangan pelarut yang ramah lingkungan sangatlah diperlukan sehingga didapatkan ekstrak alami dengan sisa pelarut yang aman bagi kesehatan dan lingkungan.

Metode yang dikembangkan untuk mendapatkan pelarut yang aman adalah dengan menggunakan pelarut eutektik atau dikenal dengan *natural deep eutectic solvent* (NADES) yang berasal dari bahan alami. NADES dapat dibuat dengan komposisi senyawa yang bersifat *hydrogen bond acceptor* (HBA) dan *hydrogen bond donor* (HBD). NADES yang paling umum didasarkan pada senyawa kolin klorida (ChCl), asam karboksilat dan donor ikatan hidrogen lainnya seperti gula, asam sitrat, asam suksinat, asam amino dan gliserol yang umumnya terdapat dalam sel organisme hidup (Bajkacz & Adamek, 2018). NADES memiliki kemampuan yang tinggi untuk mengekstraksi senyawa polar maupun non polar dan beberapa metabolit sekunder lainnya. NADES juga memiliki keunggulan lain seperti mudah diproduksi, tidak beracun, dan dapat terurai secara alami (Altamash *et al.*, 2017; Paiva, *et al.*, 2014). Selain itu, NADES juga dapat melarutkan senyawa makromolekul (Francisco *et al.*, 2012). Beberapa penelitian mengenai NADES berkembang untuk menentukan sifat fisiko kimia dan stabilitas pelarut.

Namun, penggunaan pelarut NADES yang diaplikasikan pada pemisahan zat aktif dari bahan alam masih terbatas penggunaannya. Beberapa penelitian yang pernah dilakukan menggunakan NADES sebagai pelarut untuk pemisahan senyawa diaplikasikan untuk ekstraksi fenolik dari *aronia melanocarpa* (Razborsek *et al.*, 2020), aktivitas

antioksidan (Pavlic *et al.*, 2022), flavonoid (Wei *et al.*, 2015) dan alkaloid (Duan *et al.*, 2016).

Pada penelitian ini akan dikembangkan pelarut NADES untuk ekstraksi zat aktif dari kulit kopi. Limbah kulit kopi dalam bentuk biomassa sangat melimpah jumlahnya namun hanya dimanfaatkan beberapa persen untuk makanan ternak, kompos dan sebagai bahan baku pembuatan bioetanol (Raudah & Ernawati, 2012). Selain itu, kulit kopi juga dapat dimanfaatkan sebagai biosorben, minuman dan kosmetik (Murthy & Naidu, 2012). Kulit buah kopi berpotensi digunakan karena mengandung zat aktif seperti kafein, tanin, polifenol dan pektin (Padmapriya, *et al.*, 2013; Silva, *et al.*, 2021; Janissen, *et al.*, 2018) yang dapat digunakan dalam produk pangan.

Berbagai teknik ekstraksi pernah dilakukan untuk memisahkan senyawa aktif dari limbah kulit kopi seperti ekstraksi fenolik menggunakan air, metanol (Silva *et al.*, 2021), etanol (Prihadi *et al.*, 2020) dan teknik ekstraksi fluida superkritis menggunakan CO<sub>2</sub> (Andrade *et al.*, 2012). Limbah yang dihasilkan oleh suatu proses industri apabila dikelola dengan baik dan berkelanjutan dapat meningkatkan nilai tambah dari limbah tersebut sehingga dapat mengembangkan produk baru yang inovatif. Eksplorasi untuk penambahan nilai dari sisi produk yang dihasilkan oleh limbah kulit kopi dapat dikelola dan diaplikasikan pada produk industri pangan (Machado *et al.*, 2012; Maimulyanti, *et al.*, 2023). Potensi yang terdapat pada kulit kopi dapat dikelola dengan ekstraksi bahan aktif menggunakan NADES. NADES yang digunakan lebih aman dan mudah didegradasi oleh lingkungan serta dapat diaplikasikan ke produk pangan secara aman. Penelitian ini dilakukan untuk menerapkan pelarut yang aman untuk mengekstrak kafein dan katekin dari kulit kopi.

## 2. BAHAN DAN METODE

### 2.1 Alat dan Bahan Penelitian

Bahan-bahan yang digunakan antara lain kulit kopi yang diambil dari perkebunan di Jawa Barat, Indonesia, kolin klorida (Merck), prolin (Merck), asam asetat (Merck), asam fosfat (Merck), asetonitril (Merck), aquabides dan kertas saring whatman, sementara instrumen yang digunakan adalah HPLC (Agilent, 1200).

### 2.2 Prosedur Penelitian

#### a. Preparasi Sampel

Sampel yang digunakan adalah kulit kopi *husk* yang telah dikeringkan di udara terbuka (<1%) dan dihaluskan pada ukuran 20 mesh. Sampel disimpan dalam kontainer plastik untuk menghindari kontak dengan udara dan cahaya matahari.

#### b. Preparasi NADES

NADES dipreparasi dengan perbandingan komposisi mol tertentu sesuai antara HBA dan HBD. Pada penelitian ini digunakan senyawa HBA yang bersumber dari kolin klorida (ChCl) dan senyawa HBA yang digunakan adalah prolin dengan perbandingan mol HBA dan HBD adalah 1:1 (Dai *et al.*, 2019). NADES tersebut dipreparasi dengan pemanasan yang terdiri dari campuran solid-solid campuran pada suhu 100°C dengan pengadukan yang konstan. Pengadukan dilakukan dengan rentang 120 menit sampai terbentuk larutan jernih (Dai *et al.*, 2013).

#### c. Ekstraksi Zat Aktif dari Kulit Kopi menggunakan NADES

Ekstraksi senyawa zat aktif dalam kulit kopi dilakukan dengan cara mencampurkan 0,5 g sampel kulit kopi kering yang telah dihaluskan dengan 10 mL NADES lalu diaduk menggunakan shaker dengan kecepatan 120 rpm pada suhu ruang selama

30 menit. Campuran selanjutnya disaring dan dianalisis menggunakan spektrofotometri UV-Vis dengan metode Folin-Ciocalteu untuk mengukur total polifenol yang terekstrak (Maimulyanti *et al.*, 2023)

#### d. Penentuan Kafein Menggunakan HPLC

Larutan ekstrak kulit kopi sebanyak 10 mg/mL dianalisis dengan menggunakan kolom HPLC (Zorbax SB-C18, 4.6 x 250 mm x 5 micron) fasa terbalik. Fasa gerak yang digunakan terdiri dari pelarut A (50 mM asam asetat dalam akuabides) dan pelarut B (50 mM asam asetat dalam asetonitril) dengan menggunakan metode elusi gradien sebagai berikut : menit ke 0–30, 0–20% (v/v) pelarut B; menit ke 30 – 45, 20–35% (v/v) pelarut B; menit ke 45–50, 35–80% (v/v) pelarut B; menit ke 50–50,1, 80–5% (v/v) pelarut B; dan menit ke 50,1–60, 0% (v/v) pelarut B. Volume injeksi sampel ekstrak kulit kopi adalah 10 µL dan laju alir 1.0 mL/min. Kafein dideteksi pada panjang gelombang absorpsi 270 nm (Maimulyanti, *et al.*, 2023; Narita & Inouye, 2011).

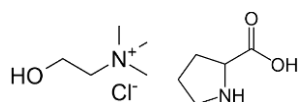
#### e. Penentuan Katekin Menggunakan HPLC

Sebanyak 50 mg ekstrak kulit kopi dilarutkan dalam 50 mL labu ukur lalu ditandabatkan menggunakan asam fosfat 0,1% lalu disaring menggunakan kertas Whatman 42. Sebanyak 20 µL larutan tersebut dianalisis menggunakan kolom HPLC (Zorbax SB-C18, 4.6 x 250 mm x 5 micron) fasa terbalik. Fasa gerak yang digunakan terdiri dari pelarut A (0,1% asam fosfat dalam akuabides) dan pelarut B (0,1 % asam fosfat dalam asetonitril) dengan menggunakan metode elusi gradien sebagai berikut : menit ke 0–35 menit, 92% (v/v) pelarut A; menit ke 35–36, 78% (v/v) pelarut A dan menit ke 36–45, 92% (v/v) pelarut A. Volume injeksi sampel ekstrak kulit kopi adalah 20 µL dan laju alir 1.0 mL/min. Katekin dideteksi pada panjang gelombang absorpsi 280 nm.

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

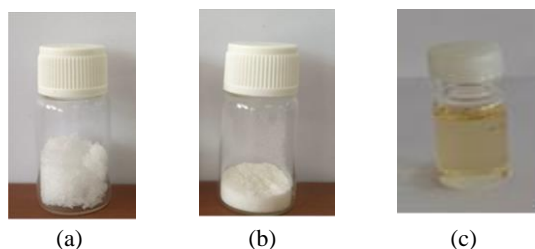
#### 3.1 Preparasi NADES

NADES dapat dibuat dengan komposisi tertentu dari senyawa yang bersifat *hydrogen bond acceptor* (HBA) dan *hydrogen bond donor* (HBD). Pada penelitian ini, NADES disintesis dengan menggabungkan senyawa HBA dari kolin klorida dan senyawa HBD dari prolin. Struktur kolin klorida dan prolin dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Struktur (a) kolin klorida dan (b) prolin

Kolin klorida dan prolin dicampurkan dengan perbandingan mol 1:1. NADES dibuat dengan memanaskan campuran pada suhu 100°C dengan pengadukan konstan sampai kristal meleleh dan terbentuk cairan. Penambahan akuabides sebanyak 20% dilakukan untuk menghasilkan pelarut NADES yang jernih, tidak berwarna, dan memiliki viskositas yang rendah suhu kamar. Ali, et al., 2019, juga menyebutkan bahwa penambahan air ke NADES berbasis asam amino dapat menghasilkan peningkatan polaritas, mengurangi viskositas dan mempertahankan efisiensi ekstraksi. Namun, jumlah air yang terlalu tinggi juga dapat menghancurkan struktur molekul NADES dan mengganggu ikatan hidrogen. Jadi perlu dibatasi interaksi ikatan hidrogen antara senyawa bioaktif dengan komponen NADES (Ali, et al., 2019). Pelarut NADES yang disintesis dapat dilihat pada Gambar 2(c).



Gambar 2. (a) kolin klorida, (b) prolin, (c) NADES hasil sintesis

NADES yang berhasil sintesis selanjutnya dikarakterisasi menggunakan metode FT-IR. Hasil karakterisasi NADES tersebut telah dilaporkan oleh Maimulyanti, et al., (2023). Senyawa kolin klorida dan prolin yang dicampurkan berhasil membentuk ikatan hidrogen yang ditunjukkan dengan adanya puncak gugus OH yang melebar pada bilangan gelombang 3500  $\text{cm}^{-1}$ . Ikatan hidrogen tersebut terbentuk karena adanya interaksi antar molekul hidrogen dengan atom yang memiliki keelektronegatifan yang tinggi pada senyawa HBD. Keberadaan gugus hidroksil tersebut menunjukkan bahwa pelarut NADES yang disintesis dapat membentuk ikatan hidrogen dengan suatu senyawa lain sehingga dapat mengekstraksi zat aktif dari suatu bahan alam (Maimulyanti, et al., 2023).

#### 3.2 Ekstraksi Zat Aktif dari Kulit Kopi Menggunakan NADES

Hasil ekstraksi zat aktif dari kopi dapat dilihat pada Gambar 3. Dari Gambar 3, terlihat adanya perubahan warna NADES dari kekuningan menjadi coklat jernih dengan viskositas yang rendah pada suhu kamar (dibandingkan dengan Gambar 2(c)). Hal ini menunjukkan bahwa zat-zat tertentu dalam limbah kulit kopi berhasil terekstrak dalam pelarut NADES.



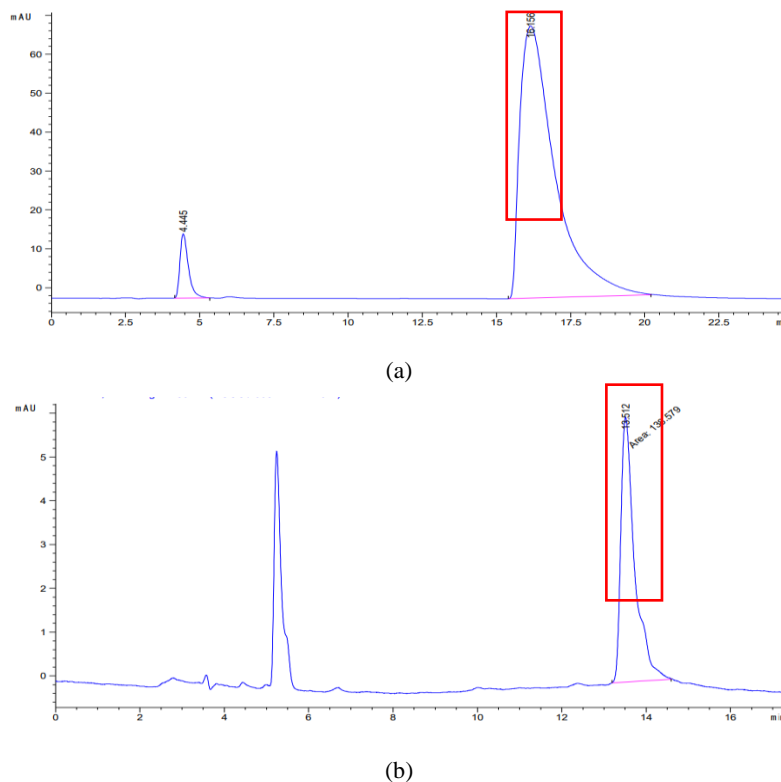
Gambar 3. Hasil ekstraksi zat aktif dari limbah kulit kopi

Kadar senyawa fenolik dalam ekstrak tersebut selanjutnya dianalisis menggunakan standar asam galat dan hasilnya telah dilaporkan oleh Maimulyanti, et al., (2023). Senyawa fenolik yang terekstrak adalah sebesar 5,88 mg/g dengan kadar fenol total sebesar 294,02 ppm.

### 3.3 Penentuan Kafein dan Katekin Menggunakan HPLC

Kafein dan katekin masing-masing dianalisis menggunakan HPLC dengan metode yang berbeda. Puncak masing-masing analit diidentifikasi dengan

membandingkan waktu retensinya dengan kafein dan katekin standar. Selanjutnya, puncak tersebut diidentifikasi menggunakan metode standar eksternal. Kromatogram kafein dan katekin standar yang diperoleh ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Kromatogram Kafein (a) dan Katekin (b) Standar

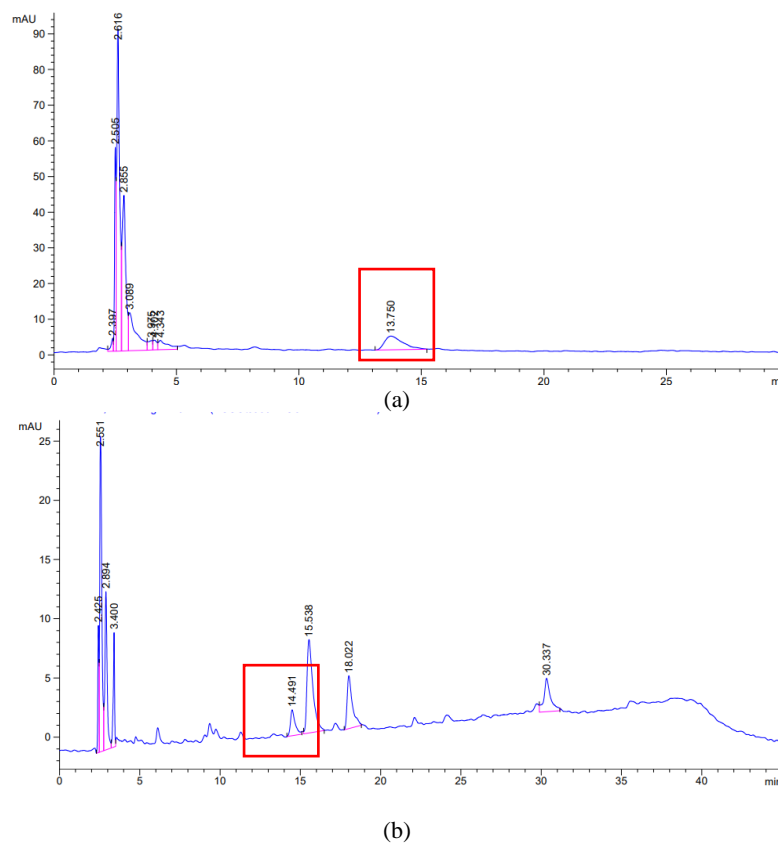
Kromatogram penentuan kafein dan katekin dalam ekstrak kulit kopi dapat dilihat pada Gambar 5. Melalui perbandingan waktu retensi pada kromatogram standar dan sampel, diketahui bahwa puncak untuk senyawa kafein dan katekin dalam sampel berturut-turut ditunjukkan pada waktu retensi 13,750 menit dan 14,491 menit. Luas area puncak sampel yang terukur selanjutnya dianalisis menggunakan metode standar eksternal dan diperoleh kadar kafein sebesar 14,5 ppm dan kadar total katekin sebesar 61 ppm. Berdasarkan hasil tersebut, maka kafein dan katekin dalam limbah kulit kopi berhasil diekstraksi menggunakan NADES berbasis kolin klorida–prolin (1:1). Amini *et al.*, (2022) sebelumnya juga berhasil mengesktrak kafein dari limbah kulit kopi yang ditanam di

Bondowoso, Jawa Timur, menggunakan pelarut etil asetat dan diperoleh kadar kafein sebesar 36,33 ppm. Namun, ekstraksi menggunakan pelarut ini membutuhkan pelarut dan sampel dalam jumlah besar serta tidak ramah lingkungan.

Penggunaan pelarut NADES sejenis berbasis kolin klorida-sorbitol (4:1) untuk ekstraksi kafein dari *Coffea canephora* juga telah berhasil dilakukan oleh Yuniarti, *et al.*, (2019) dan diperoleh persen hasil sebesar 4,49 mg/g. Pelarut NADES dari kolin klorida-etilen glikol (1:5) juga berhasil mengekstrak katekin dari teh hijau dengan persen hasil sebesar 2,302 mg/g (Zhang *et al.*, 2014). Dengan demikian ekstraksi menggunakan NADES yang berbasis *green solvent* bisa digunakan untuk menangani limbah

yang dapat menghasilkan senyawa aktif sebagai nilai tambah untuk suatu produk. Proses ekstraksi dilakukan tanpa menggunakan pelarut organik yang dapat menimbulkan masalah baru pada pencemaran

lingkungan dan mudah didegradasi oleh lingkungan serta dapat diaplikasikan ke produk pangan secara aman.



Gambar 5. Kromatogram Penentuan Kafein (a) dan Katekin (b) dalam Ekstrak Kulit Kopi menggunakan HPLC

#### 4. KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, senyawa fenolik dalam bentuk kafein dan katekin telah berhasil diekstrak dari limbah kulit kopi menggunakan pelarut NADES berbasis kolin klorida-prolin dengan perbandingan mol 1:1. Hasil analisis menggunakan HPLC menunjukkan adanya puncak kafein untuk senyawa kafein dan katekin berturut-turut pada waktu retensi 13,750 menit dan 14,491 menit. Hasil identifikasi dilakukan menggunakan standar kafein dan katekin dan diperoleh kadar kafein sebesar 14,5 ppm dan kadar total katekin sebesar 61 ppm. Dengan demikian, pelarut NADES berbasis kolin klorida-prolin dapat digunakan sebagai green solvent untuk menggantikan pelarut organik yang biasa digunakan

untuk mengekstrak zat aktif dalam limbah kulit kopi seperti metanol dan etanol.

#### 5. UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih kepada Program Studi Analisis Kimia dan Program Studi Penjaminan Mutu Industri Pangan, Politeknik AKA Bogor atas sarana dan prasarana yang disediakan sehingga penelitian ini dapat terlaksana.

#### 6. DAFTAR PUSTAKA

Abbot, A.P., Capper, G., Davies, D.L., Rasheed, R.K. & Tambyrajah, V., 2002, 'Novel Solvent Properties of Choline Chloride/Urea Mixtures', *The Royal Society of Chemistry*, (1), 70–71.

- Altamash, T., Nasser, M.S., Elhamarnah, Y., Magzoub, M., Ullah, R., Anaya, B., Aparicio, S. & Atilhan, M., 2017, 'Gas Solubility and Rheological Behavior of Natural Deep Eutectic Solvents (NADES) via Combined Experimental and Molecular Simulation Techniques', *ChemistrySelect*, 2(24), 7278–7295.
- Amini, H.W., Pratiwi, W., Hartanto, G.P.P., Palupi, B., Fachri, B.A., Rizkiana, M.F. & Rahmawati, I., 2022, 'Ekstraksi Limbah Kulit Kopi Robusta Dari Desa Tanah Wulan Kecamatan Maesan Kabupaten Bondowoso Dengan Etil Asetat Serta Analisa Aktivitas Antioksidannya', *e - Prosiding Kolokium Hasil Penelitian dan Pengabdian Kepada Masyarakat*, 87–92.
- Andrade, K.S., Goncalvez, R.T., Maraschin, M., Ribeiro-Do-Valle, R.M., Martínez, J. & Ferreira, S.R.S., 2012, 'Supercritical fluid extraction from spent coffee grounds and coffee husks: Antioxidant activity and effect of operational variables on extract composition', *Talanta*, 88, 544–552.
- Bajkacz, S. & Adamek, J., 2018, 'Development of a Method Based on Natural Deep Eutectic Solvents for Extraction of Flavonoids from Food Samples', *Food Analytical Methods*, 11(5), 1330–1344.
- Dai, Y. & Row, K.H., 2019, 'Application of natural deep eutectic solvents in the extraction of quercetin from vegetables', *Molecules*, 24(12).
- Duan, L., Dou, L.-L., Guo, L., Li, P. & Liu, E.-H., 2016, 'Comprehensive Evaluation of Deep Eutectic Solvents in Extraction of Bioactive Natural Products', *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 4(4), 2405–2411.
- Francisco, M., Bruinhorst, A. Van Den & Kroon, M.C., 2012, 'New natural and renewable low transition temperature mixtures (LTTMs): Screening as solvents for lignocellulosic biomass processing', *Green Chemistry*, 14(8), 2153–2157.
- Janissen, B. & Huynh, T., 2018, 'Chemical composition and value-adding applications of coffee industry by-products: A review', *Resources, Conservation and Recycling*, 128(September 2017), 110–117.
- Machado, E.M.S., Rodriguez-Jasso, R.M., Teixeira, J.A. & Mussatto, S.I., 2012, 'Growth of Fungal Strains on Coffee Industry Residues with Removal of Polyphenolic Compounds', *Biochemical Engineering Journal*, 60, 87–90.
- Maimulyanti, A., Nurhidayati, I., Mellisani, B., Putri, F.A.R., Puspita, F. & Prihadi, A.R., 2023, 'Development of Natural Deep Eutectic Solvent (NADES) based on Choline Chloride as a Green Solvent to Extract Phenolic Compound from Coffee Husk Waste', *Arabian Journal of Chemistry*, 16(4).
- Murthy, P.S. & Madhava Naidu, M., 2012, 'Sustainable management of coffee industry by-products and value addition - A review', *Resources, Conservation and Recycling*, 66, 45–58.
- Narita, Y. & Inouye, K., 2012, 'High antioxidant activity of coffee silverskin extracts obtained by the treatment of coffee silverskin with subcritical water', *Food Chemistry*, 135(3), 943–949.
- Padmapriya, R., Tharian, J.A. & Thirunalasundari, T., 2019, 'Coffee waste management-An overview', *International Journal of Current Research*, 3(1) 9-16.
- Paiva, A., Craveiro, R., Aroso, I., Martins, M., Reis, R.L. & Duarte, A.R.C., 2014, 'Natural deep eutectic solvents - Solvents for the 21st century', *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, 2(5), 1063–1071.
- Pavlič, B., Mrkonjić, Ž., Teslić, N., Kljakić, A.C., Pojić, M., Mandić, A., Stupar, A., Santos, F., Duarte, A.R.C. & Mišan, A., 2022, 'Natural Deep Eutectic Solvent (NADES) Extraction Improves Polyphenol Yield and Antioxidant Activity of Wild Thyme (*Thymus serpyllum* L.) Extracts', *Molecules*, 27(5).
- Prihadi, A.R., Maimulyanti, A., Mellisani, B. & Nurhasanah, 2020, 'Antioxidant activity, tannin content and dietary fiber from coffee husk extract and potential for nutraceutical', *Rasayan Journal of Chemistry*, 13(2), 955–959.
- Raudah & Ernawati, 2016, 'Pemanfaatan Kulit Kopi Arabika dari Proses Pulping untuk Pembuatan Bioetanol', *Jurnal Sains dan Teknologi Reaksi*, 10(1).
- Razborsek, M., Ivanovic, M., Krajnc, P. & Kolar, M., 2020, 'Choline Chloride Based Natural Deep Eutectic Solvents as Extraction Media for Extracting Phenolic', *Molecules*, 25, 1–14.
- Silva, M. de O., Honfoga, J.N.B., Medeiros, L.L. de, Madruga, M.S. & Bezerra, T.K.A., 2021, 'Obtaining Bioactive Compounds from the Coffee Husk (*Coffea arabica* L.) Using Different Extraction Methods', *Molecules*, 26(1).
- Wei, Z., Qi, X., Li, T., Luo, M., Wang, W., Zu, Y. & Fu, Y., 2015, 'Application of natural deep eutectic solvents for extraction and determination of phenolics in *Cajanus cajan* leaves by ultra performance liquid chromatography', *Separation and Purification Technology*, 149, 237–244.

Yuniarti, E., Saputri, F.C. & Mun'im, A., 2019, 'Application of the natural deep eutectic solvent choline chloridesorbitol to extract chlorogenic acid and caffeine from green coffee beans (*Coffea canephora*)', *Journal of Applied Pharmaceutical Science*, 82–90.

Zhang, H., Tang, B. & Row, K., 2014, 'Extraction of catechin compounds from green tea with a new green solvent', *Chemical Research in Chinese Universities*, 30(1), 37–41.