

## **ARAŞTIRMA MAKALESİ / RESEARCH ARTICLE**

**Şule CAMCIOĞLU<sup>1\*</sup>, Baran ÖZYURT<sup>1</sup>, Hale HAPOĞLU<sup>1</sup>**

### **ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİYLE KAĞIT ATIK SUYU ARITIMINDA pH KONTROLÜ**

#### **ÖZ**

Yapılan çalışmada kağıt endüstrisi atık sularının elektrokoagülasyon ile arıtıldığı bir proseste çıkış değişkeni pH'nin oransal integral türevsel kontrolü gerçekleştirilmiştir. Ayarlanabilen değişkenler olarak 0.1 M HCl ve 0.1 M NaOH akış hızları seçilmiştir. Çalışmanın ilk basamağında dinamik analiz ve sistem tanımlama çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Asit ve baz akış hızlarına verilen basamak etkiler ile dinamik koşuldaki pH verileri toplanmış ve yinelemeli en küçük kareler yöntemi kullanılarak asit ve baz akış hızlarının ayrı ayrı prosesin pH değerini değiştirdiği durumların auto regressive moving average with external input (ARMAX) modelleri elde edilmiştir. Elde edilen modeller MATLAB'da kodlanan teorik oransal integral türevsel kontrol edici programında kullanılarak deneme-yanılma yöntemi ile en uygun oransal integral türevsel kontrol edici parametreleri bulunmuştur. Bu parametreler deneysel çalışmaları gerçekleştirmek amacıyla MATLAB/Simulink'te tasarlanmış gerçek zamanlı oransal integral türevsel kontrol edicide kullanılmıştır. Asit ve baz ayar değişkenlerinin prosese birlikte uygulanarak koordineli kontrol çalışmalarının gerçekleştirildiği proseste pH 5 ile 11 arasında değiştirilmiş olup en yüksek bulanıklık ve renk giderim verimleri pH 5 değerinde sırasıyla % 98.6 ve % 99.4 bulunmuştur.

**Anahtar kelimeler:** Kağıt atık suyu, Elektrokoagülasyon, pH, Proses kontrol, Oransal integral türevsel kontrol edici.

### **pH CONTROL OF PAPER WASTEWATER TREATED WITH ELECTROCOAGULATION METHOD**

#### **ABSTRACT**

In this study proportional integral derivative control of pH which is the output variable of paper mill wastewater treatment process with electrocoagulation has been performed. Flow rates of 0.1 M HCl and 0.1 M NaOH solutions have been chosen as manipulated variables. Firstly dynamic analysis and system identification studies have been carried out. pH data was collected by giving step changes to acid and base flow rates and auto regressive moving average with external input models were obtained by using recursive least squares method for each process where pH affected by acid and base flow rates respectively. Models were used in theoretical proportional integral derivative control program coded in MATLAB to determine optimum proportional integral derivative controller parameters by trial and error method. These parameters were then used in real time proportional integral derivative controller coded in MATLAB/Simulink to perform experimental studies. When coordinated control is applied to process by using acid and base flow rates as manipulated variables, pH value ranged from 5 to 11 and it is shown that the highest removal efficiency of turbidity and colour are 98.6% and 99.4%, respectively.

**Keywords:** Paper mill wastewater, Electrocoagulation, pH, Process control, Proportional integral derivative controller.

<sup>1</sup>. Ankara Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Kimya Mühendisliği Bölümü, Ankara, Türkiye.

\*E-posta: camcioglu@eng.ankara.edu.tr, bozyurt@ankara.edu.tr, hale.hapoglu@eng.ankara.edu.tr

**Gelis:** 30 Eylül 2014 **Düzeltilme:** 18 Kasım 2014 **Düzeltilme:** 02 Aralık 2014 **Kabul:** 05 Aralık 2014

## 1. GİRİŞ

Kağıt üretimi sırasında kullanılan su miktarının yüksek olması ve atık sularının biyolojik olarak ayrışması güç kirleticileri içermesi, bu endüstrileri çevresel açıdan önemli duruma getirmiştir. Bu endüstrinin ana ham maddesi olan odunun hamur haline getirilmesi sırasında, susuzlaştırma, eleme ve yıkama işlemleriyle lignin, karbonhidrat ve çeşitli tipte ayrıştırıcılar atık suya geçmektedir. Bu bileşikler ise genellikle biyolojik ayrışabilirliği oldukça düşük bileşikler olarak nitelendirilmektedir. Ayrıca, uygulanan prosesin türüne göre reçineler, doymamış yağ asitleri, inorganik klorlu bileşikler, uçucu organikler ve sülfür gibi birçok toksik bileşik de su ortamlarına verilmektedir. Özetle bu tür endüstrilerden çıkan atık sular, özellikle alıcı ortamlarda önemli kirlilik problemlerine neden olmaktadır (Ali and Sreerkrishnan, 2001).

Atık su arıtım teknolojisi temel olarak fiziksel, kimyasal, biyolojik arıtım prosesleri üzerine kurulmuştur. Ancak uygulanan bu proseslerin işletim maliyetlerinin yüksek olması, verimlerinin her atık su için yüksek olmaması ve uygulamadaki zorlukları nedeniyle yeni arıtım teknolojilerine duyulan gereksinim artmıştır. Son yıllarda kağıt atık suyunun arıtımında elektrokimyasal teknolojilerin kullanımına olan ilgi giderek artmaktadır (Kalyani et al., 2009; Terrazas et al., 2010; Katal and Pahlavanzadeh, 2011). Kağıt atık suyunun içinde barındırdığı kimyasallar atık suyu iletken hale getirmekte ve elektrokimyasal proses için uygun koşulu sağlamaktadır.

Elektrokimyasal arıtım yöntemlerinden elektrokoagülasyon prosesinde anot olarak alüminyum elektrotlar kullanıldığında  $Al^{3+}$  iyonları çözünerek sulu ortama karışmakta ve sudaki hidroksil iyonlarıyla birleşerek ortamın pH değerine göre adsorpsiyon özellikleri yüksek ve askıda katı maddeleri topaklaştırma, çözülmüş kirleticileri çöktürme özelliğine sahip olan metal hidroksitler oluşturmaktadır (Merzouk et al., 2009; Canizares et al., 2005) Oluşan alüminyum hidroksitlerin yük ve kararlılıkları sulu ortamın pH değerine bağlı olarak değişmektedir (Shankar et al., 2013; Zaied and Bellakhal, 2009; Sridhar et al., 2011). Düşük pH'larda (2-3) sulu ortamda  $Al^{3+}$  ve  $Al(OH)^{+2}$  iyonları bulunurken pH 4-9 aralığında  $Al(OH)^{+2}$ ,  $Al(OH)_2^{2+}$  gibi monomerik türler ve  $Al_6(OH)_{15}^{3+}$ ,  $Al_7(OH)_{17}^{4+}$ ,  $Al_{13}(OH)_{34}^{5+}$  gibi polimerik türler yer almakta olup bu bileşikler en son olarak çözünmeyen  $Al(OH)_{3(s)}$  bileşiğine dönüşmektedir (Bayramoglu et al., 2004). pH 10'un üstüne çıktığında ise monomerik  $Al(OH)_4^-$  iyon derişimi artmaktadır.

Yapılan çalışmada elektrokoagülasyon ile arıtım süresince pH'ın 2-3 birim yükseldiği ve buna bağlı olarak sudaki çözünürlüğü yüksek iyonik türlerin oluşmasından dolayı giderim veriminin düştüğü görülmüş ve bu sebeple pH'ın en uygun değerinde kontrol edilmesi gerektiği sonucuna varılmıştır. Bu amaçla asit ve baz akış hızları koordineli ayarlanabilen değişkenler olarak seçilmiş olup MATLAB/Simulink ortamında tasarlanmış oransal integral türevsel (PID) kontrol edici kullanılarak pH kontrolü gerçekleştirilmiş, bulanıklık ve renk giderimi açısından en uygun pH belirlenmiştir.

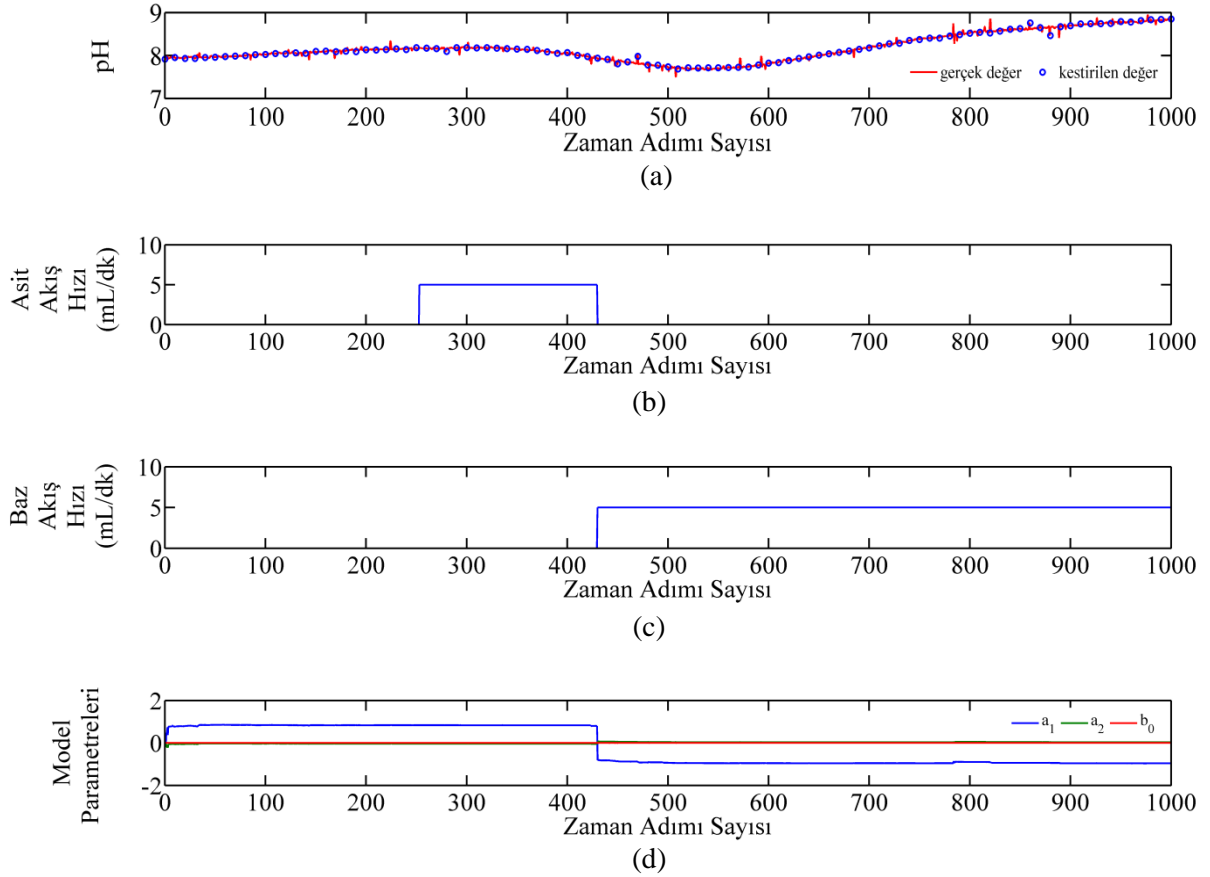
## 2. MATERYAL - YÖNTEM

Yapılan çalışmada 2 L hacimli plexiglass reaktör ve bu reaktör içine 1,5 cm aralıklarla yerleştirilmiş 60 mm x 60 mm x 3 mm boyutlarında 6 adet alüminyum elektrot monopolar paralel bağlı olarak kullanılmıştır. Destek elektrolit, asit ve baz çözeltileri peristaltik pompalar (Longer Pump Lead-2) vasıtasıyla reaktöre beslenmiştir. Arıtım esnasında ortamın pH, sıcaklık ve iletkenliği ölçülmüş ve yapılan ölçümler göstergeler (Mettler-Toledo M200 Easy) yardımıyla izlenmiştir. pH ve iletkenlik ölçerlerden alınan sinyaller proses kontrol ünitesindeki çevirici modüllerden geçirilerek bilgisayara gerçek zamanlı veri transferi sağlanmıştır. MATLAB/Simulink'te tasarlanan kontrol edicide hesaplanan sinyaller bilgisayar tarafından aynı modüller kullanılarak peristaltik pompalara iletilmiştir. Çalışmalar 1 amper sabit akım koşullarında 600 devir/dk karıştırma hızında, 20°C sıcaklık ve 2 mS/cm iletkenlik koşullarında yapılmıştır. Karıştırma işlemi mekanik karıştırıcı (MTOPS MS-3020) ile yapılmıştır. Çalışmaların sabit akım koşullarında sürdürülebilmesi için 0-2 A aralığında çalışan dijital doğru akım güç kaynağı (MAY 11-PS Constant Current Power Supply) kullanılmıştır. Çalışmalar süresince sıcaklık, soğutma suyunun sıcaklığı ayarlanabilen bir su sirkülatörü (Hoefler Rcb 20-Plus) ile reaktör ceketinde dolaştırılması ile kontrol edilmiştir.

Çalışmalarda kullanılan atık su sentetik olmayıp ülkemizdeki bir kağıt fabrikasından temin edilmiştir. Atık su 7.5 pH, 2.05 mS/cm iletkenlik ve 187 FTU bulanıklık değerine sahiptir. Atık suyun iletkenliği çalışmalar süresince ayarlanabilen değişkeni destek elektrolit (0.04 M NaCl) akış hızı olan PID kontrol edici kullanılarak başlangıç değerinde sabit tutulmuştur.

### 3. BULGULAR

Yapılan çalışmada öncelikli olarak pH'taki değişimleri modellemek için dinamik analiz gerçekleştirilmiştir. Ayar değişkenlerinden 0,1 M HCl akış hızına 0 ml/dk'dan 5 ml/dk'ya 3 dakika süresince verilen basamak etki neticesinde pH'ın 8,2 değerinden 7,7 değerine düştüğü gözlenmiştir. Daha sonra 0,1 HCl akış hızına 5 ml/dk'dan 0 ml/dk'ya negatif bir basamak etki verilerek toplam asit etkisi tamamlanmıştır. Ayar değişkenlerinden 0,1 M NaOH akış hızına 0 ml/dk'dan 5 ml/dk'ya 9,5 dakika süresince verilen basamak etki ile ise pH'ın 7,7 değerinden 8,9 değerine yükseldiği gözlenmiştir. Elde edilen veriler yinelemeli en küçük kareler (YEKK) yöntemi ile ARMAX model parametrelerinin bulunmasında kullanılmıştır. YEKK yönteminde kovaryans matrisin başlangıç değeri 1000, unutma çarpanı değeri 0,99, ARMAX model mertebeleri ( $n_a$ ,  $n_b$ ) ise sırasıyla 2 ve 1 olarak seçilmiştir. pH'ın dinamik analizi, sistem tanımlama sonuçları ve model parametrelerinin değişimleri Şekil 1'de verilmiştir.



Şekil 1. Asit ve baz akış hızlarına verilen basamak etkiler ile pH'ın değişimi ve YEKK ile model parametrelerinin belirlenmesi (Zaman adımı= 1 saniye).

Elde edilen en uygun ARMAX model parametreleri Çizelge 1'de, asit ve baz ayarlanabilen değişkenleri için bu model parametreleri ile oluşturulan model denklemleri sırasıyla Eşitlik (1) ve (2)'de verilmiştir.

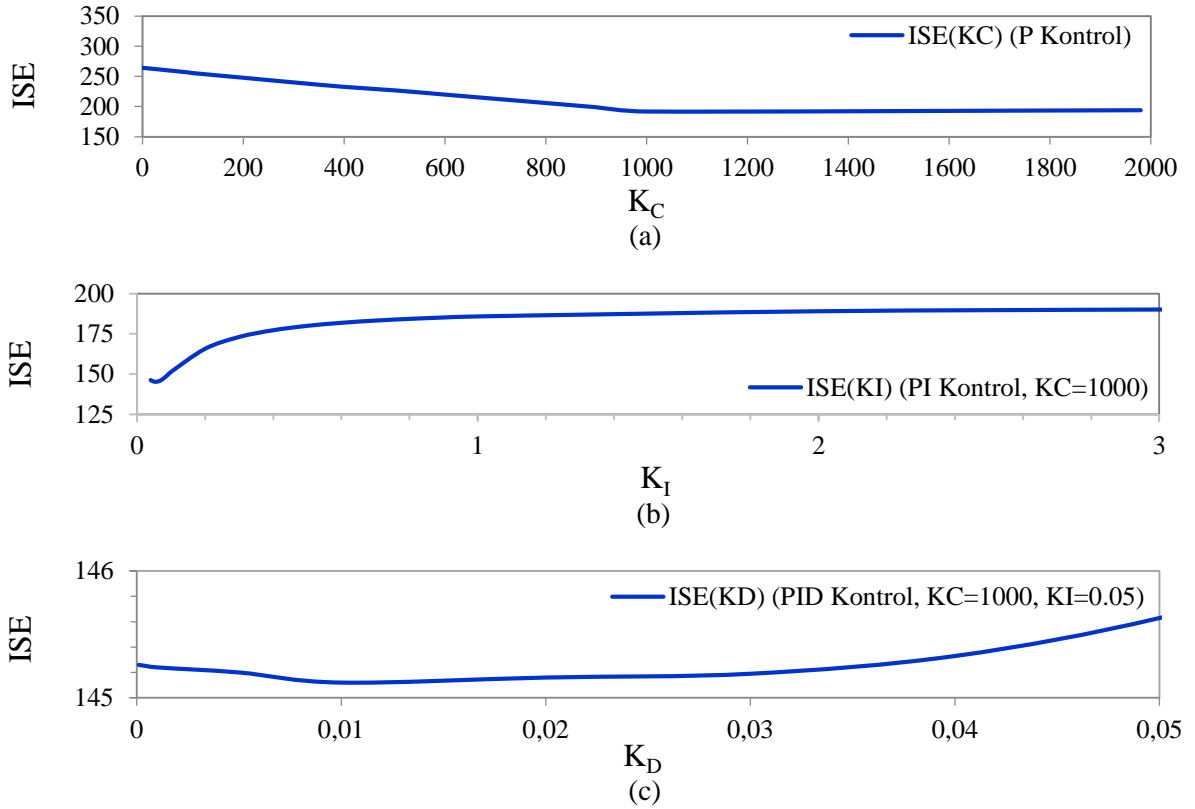
$$y(t) + 0,8297 y(t-1) - 0,03538 y(t-2) = 0,0000293u(t-1) + e(t-1) \quad (1)$$

$$y(t) - 0,9367 y(t-1) + 0,0367 y(t-2) = 0,0002312u(t-1) + e(t-1) \quad (2)$$

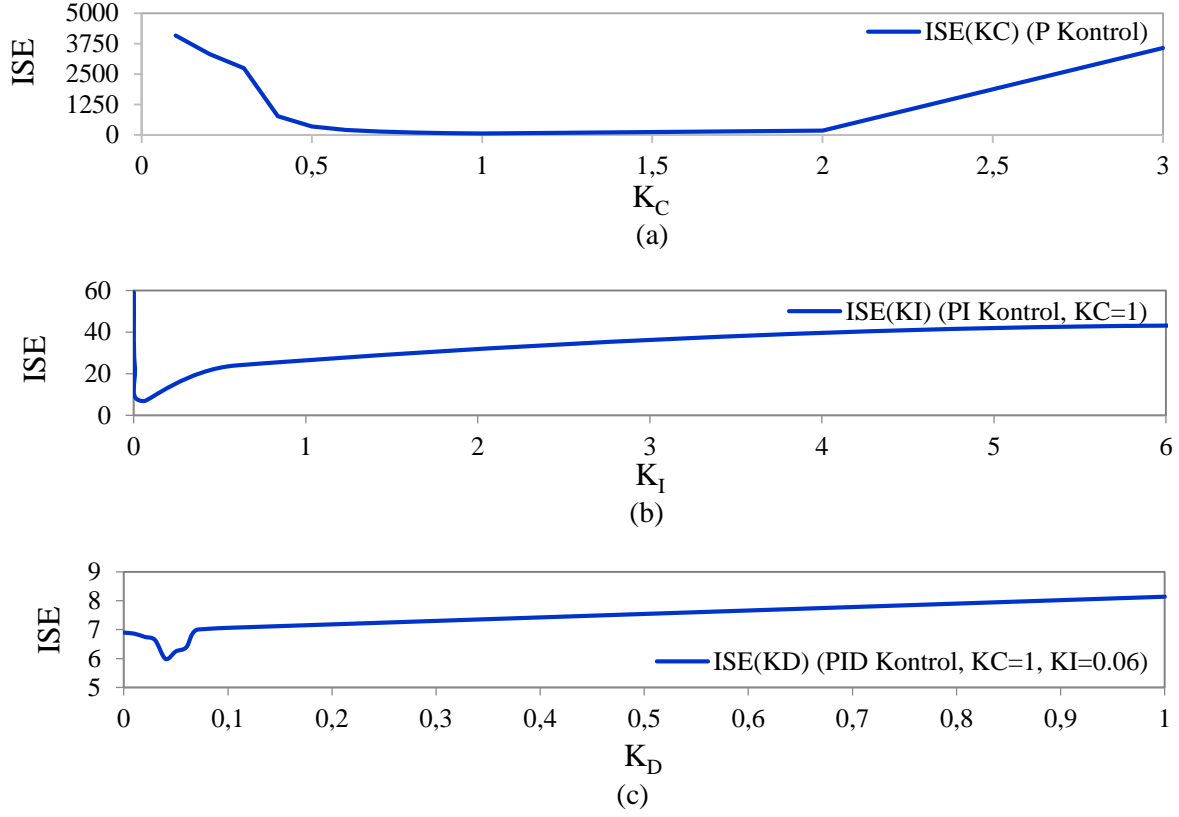
|                |      | $a_1$   | $a_2$    | $b_0$     |
|----------------|------|---------|----------|-----------|
| Ayar değişkeni | Asit | 0,8297  | -0,03538 | 0,0000293 |
|                | Baz  | -0,9367 | 0,0367   | 0,0002312 |

Çizelge 1. ARMAX model parametreleri

Bu modeller MATLAB’da yazılan teorik PID kontrol edici programına uygulanarak deneme yanılma yöntemi kullanılmış ve en uygun PID parametreleri ( $K_C$ ,  $K_I$ ,  $K_D$ ) performans kriteri olarak kullanılan hata karelerinin toplamı (ISE) değerlerinin kıyaslanması ile bulunmuştur. Pek çok PID parametre hesaplama yöntemi (Cohen Coon, Yuwana Seborg, Jutan Rodriguez, vb.) kriter olarak hata kareleri toplamı veya benzeri bir kriter ile kıyaslama yaparak sonuç parametre değerlerini bulmaktadır. Bu nedenle ISE kriteri seçim için uygun bir kriter olarak düşünülmüştür. Deneysel kontrol çalışmaları kriter seçiminin uygunluğunu kanıtlamıştır (Şekil 5). Şekil 2’de ayar değişkeni asit olan sistemde PID parametreleri ile ISE değerlerinin değişimi Şekil 3’te ayar değişkeni baz olan sistemde PID parametreleri ile ISE değerlerinin değişimi gösterilmiştir



Şekil 2. Ayar değişkeni asit olan sistemde PID parametreleri  $K_C$  (a)  $K_I$  (b)  $K_D$  (c) ile kontrol performansının değişimi.



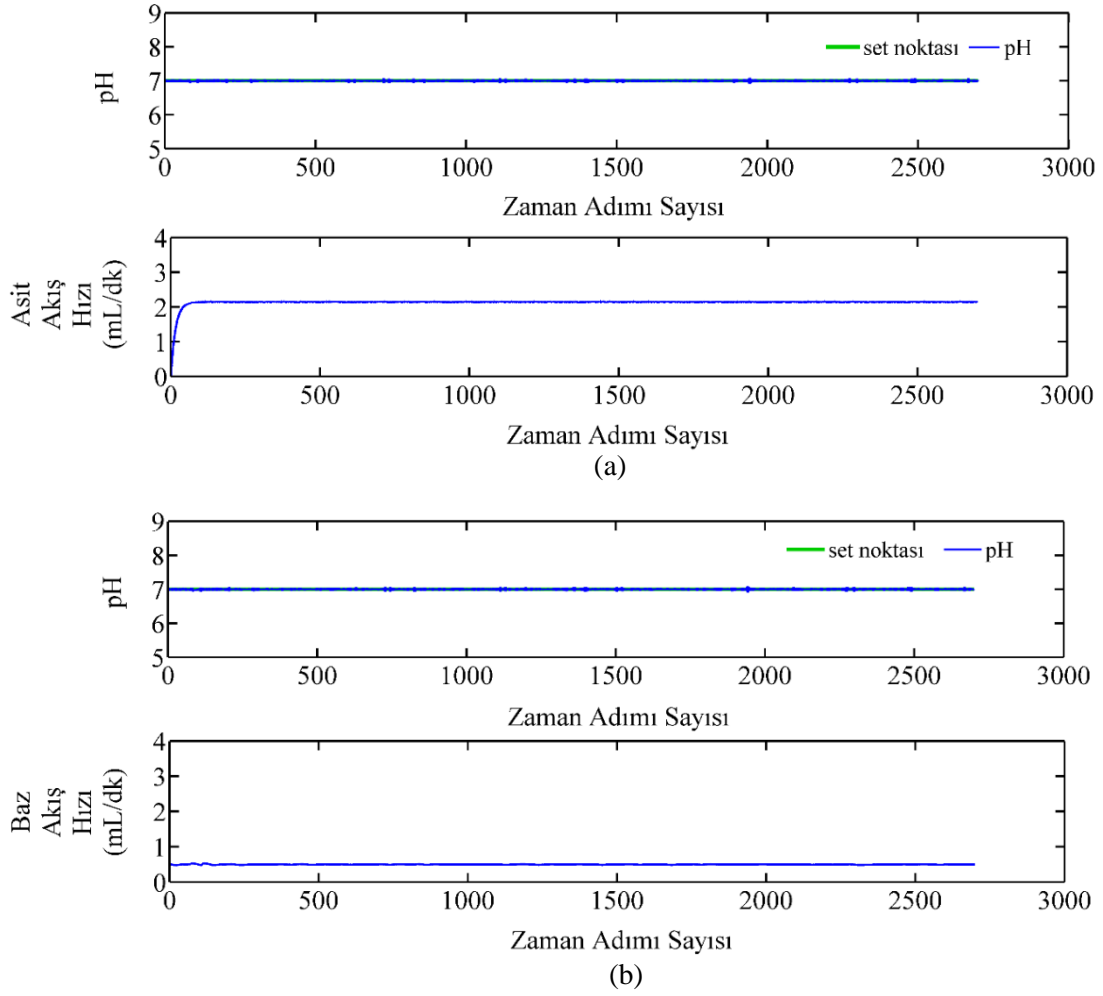
Şekil 3. Ayar değişkeni baz olan sistemde PID parametreleri  $K_C$  (a)  $K_I$  (b)  $K_D$  (c) ile kontrol performansının değişimi.

Yapılan benzetim çalışmaları sonucunda ayar değişkeninin asit olduğu durumda en düşük ISE değeri 145,12 olarak bulunmuştur. Ayar değişkeninin baz olduğu durum için tekrarlanan benzetim çalışmaları sonucunda en uygun ISE değeri yaklaşık 6,0 olarak elde edilmiştir. Benzetim sonucunda elde edilen en uygun PID parametreleri Çizelge 2’de verilmiştir.

|                |      | $K_C$  | $K_I$ | $K_D$  |
|----------------|------|--------|-------|--------|
| Ayar değişkeni | Asit | 1000   | 0,05  | 0,01   |
|                | ISE  | 191,63 | 145,2 | 145,12 |
|                | Baz  | 1      | 0,06  | 0,04   |
|                | ISE  | 53,69  | 6,89  | 5,98   |

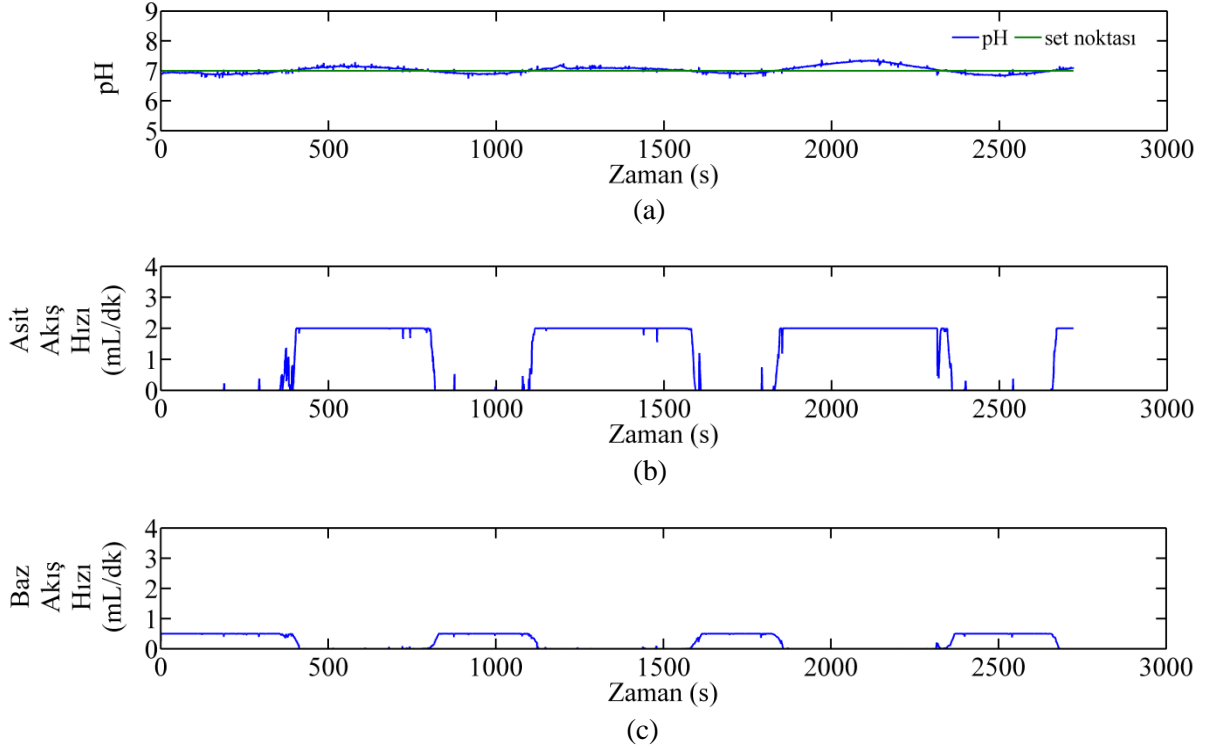
Çizelge 2. PID kontrol edici parametreleri

Ayar değişkenlerinin asit ve baz olduğu iki ayrı durum için ayrı ayrı gerçekleştirilen ve en uygun PID parametrelerinin kullanıldığı benzetim çalışmalarının sonuçları Şekil 4’te gösterilmiştir. Ayar değişkeninin asit olduğu durumda akış hızı 2 mL/dk, baz olduğu durumda ise 0,5 mL/dk olarak elde edilmiştir. Bu programda asit akış hızı için kullanılan eşitlikteki  $e(t-1)$  değeri 13 büyüklüğü civarında olduğundan başlangıç zaman değişim hassasiyeti yorum yapmak için uygun değildir. Son değer hassasiyeti üzerinden karar verilerek asit akış hızı tayini yapılmıştır. Baz akış hızı için kullanılan eşitlikteki  $e(t-1)$  değeri 0,7 büyüklüğü civarında olduğundan son değer hassasiyeti üzerinden karar verilmesi uygun bulunmuştur. Benzetim çalışmaları sonucunda elde edilen PID parametreleri ve ayar değişkeni akış hızları MATLAB/Simulink’te tasarlanan gerçek zamanlı kontrol ediciye uygulanmıştır.



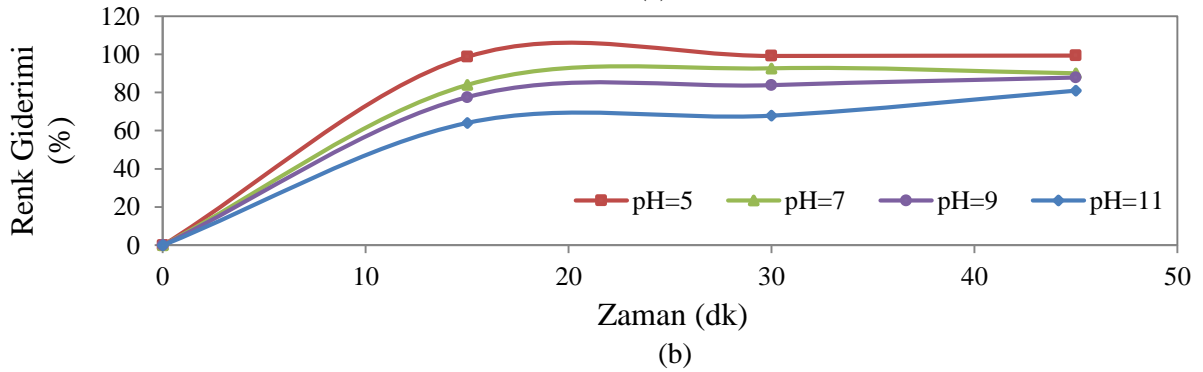
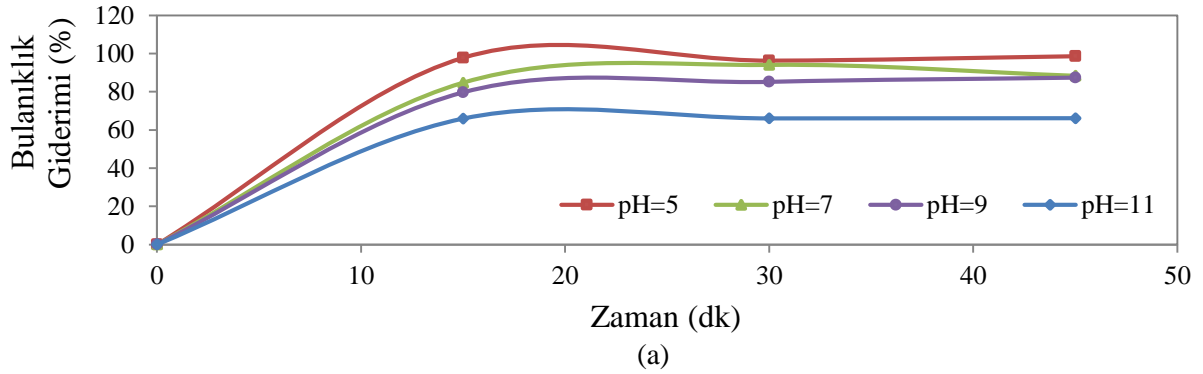
Şekil 4. PID parametrelerinin kullanıldığı benzetim çalışmaları (a) ayar değişkeninin asit olduğu çalışma (b) ayar değişkeninin baz olduğu çalışma (Zaman adımı= 1 saniye).

Çalışmanın bir sonraki basamağında pH kontrollü arıtım çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Şekil 5'te pH'ın 7 değerinde kontrol edildiği çalışmanın sonuçları verilmiştir. Yapılan çalışmada ISE değeri 84,1 olarak hesaplanmıştır. Arıtım sonunda yapılan spektrofotometrik ölçümler sonucunda bulanıklık ve renk giderimleri sırasıyla % 88,31 ve % 90,02 olarak bulunmuştur.



Şekil 5. pH (a), asit (b) ve baz (c) akış hızlarının zamanla değişimi.

Çalışmanın son basamağında elektrokoagülasyon ile kağıt endüstrisi atık sularının arıtımı için en uygun pH değerinin belirlenmesi amacıyla farklı pH değerlerinde kontrol çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlar Şekil 6'da verilmiştir.



#### Şekil 6. Bulanıklık (a) ve renk (b) giderimlerinin artım süresince değişimi.

Sonuçlardan görüleceği üzere 2 mS/cm iletkenlik, 20 °C sabit sıcaklık ve 1 amper sabit akım koşullarında 45 dakika süreyle gerçekleştirilen elektrokoagülasyon çalışmaları sonucunda % 98,6 bulanıklık ve % 99,4 renk giderimi ile en uygun pH değeri 5 olarak bulunmuştur. pH'ın bu değeri için 15. dakikada yaklaşık olarak 45 dakika süreyle yapılan çalışmada elde edilen giderim verimleri sağlanmakta olduğundan maliyet açısından düşünüldüğünde en uygun işletim süresi olarak 15 dakika seçilmiştir.

#### 4. TARTIŞMA

Kağıt atık suyunun elektrokoagülasyon yöntemi ile kontrolsüz olarak gerçekleştiren arıtımında başlangıç pH'ının 0,1 M HCl ve 0,1 M NaOH kullanılarak 5 değerine ayarlanması sonucunda akım yoğunluğunun 9 mA/cm ile 25 mA/cm<sup>2</sup> arasında, sıcaklığın ise 25°C ile 50°C arasında değişim gösterdiği farklı koşullarda % bulanıklık gideriminin % 10,07 ile % 57,96 aralığında değiştiği deneysel verilerle ortaya konmuştur (Camcıoğlu et al., 2014). Bu çalışmada ise pH değeri elektrokoagülasyon boyunca 5'te kontrol altında tutularak bulanıklık gideriminde % 98,6 değerine ulaşılmıştır. Yapılan kontrol çalışmasında ayarlanabilen değişken olarak 0,1 M HCl ve 0,1 NaOH çözeltileri kullanılmıştır. Bu şekilde elektrokoagülasyon süresince pH'ın 5 değerinde kontrol altında tutulması, pH'ın başlangıç değerinin ayarlanması ve daha sonra kontrol edilmemesi durumuna göre bulanıklık gideriminde kayda değer bir iyileşme göstermiştir.

Bu çalışmada bulanıklık giderimi yönünden en düşük değer % 66,1 ile set noktası 11 seçilen pH kontrol uygulamasında görülmüştür. Daha önceki araştırmacıların rapor ettikleri, kağıt atık suyunun kontrolsüz gerçekleştirilen elektrokoagülasyonla arıtımından elde edilen deneysel veriler kullanılarak merkezi bileşik deney tasarımı yöntemi ile bulanıklık giderim yüzdesi için elde edilen ikinci derece polinom tipi eşitlik (Camcıoğlu et al., 2014) bu çalışmada karşılaştırma maksadı ile kullanılmıştır. Bu eşitlikte başlangıç pH'ı 11'de sabit tutulmuş, akım yoğunluğu 9 mA/cm ile 25 mA/cm<sup>2</sup> arasında, sıcaklık 25°C ile 50°C arasında değiştirilerek bulanıklık giderimleri hesaplanmıştır. Hesaplanan bu değerlerin yaklaşık % 29 ile % 52 arasında olduğu anlaşılmıştır. Bu hesaplamada en yüksek olarak elde edilen % 52 bulanıklık giderimi pH değerinin 11'de tutulduğu kontrol çalışmasından elde edilen en düşük bulanıklık giderimi olan % 66,1 değerinden daha düşük bulunmuştur. Karşılaştırmalı olarak verilen bu sonuçlar pH kontrollü çalışmalarda bulanıklık giderimlerinin aynı pH'ı başlangıç koşulu olarak ayarlamak suretiyle yapılan kontrolsüz çalışmalara göre daha iyi olduğunu göstermektedir.

#### 6. SONUÇ

Elektrokoagülasyon yöntemiyle kağıt atık suyu arıtımında atık su içine yerleştirilmiş alüminyum elektrotlara akım uygulandığında elektrotlarda çözünme gerçekleşmektedir. Elektrotların kimyasal çözünmeleri atık suyun pH'ından çok etkilenmektedir. Çözünen alüminyum iyonları uygun pH'larda adsorpsiyon özellikleri yüksek alüminyum hidroksitler oluşturmaktadırlar.

Yapılan çalışmada elektrokoagülasyon ile endüstriyel kağıt atık suyu arıtımı süresince pH'ın 2-3 birim yükseldiği ve buna bağlı olarak sudaki çözünürlüğü yüksek iyonik türlerin oluşmasından dolayı giderim veriminin düştüğü görülmüştür. Konu ile ilgili önceden yapılmış olan çalışmalar atık su arıtımında başlangıç pH'ının etkisi üzerine yoğunlaşmış olup söz konusu çalışmada kağıt endüstrisi atık sularının elektrokoagülasyon yöntemi ile arıtıldığı bir proseste çıkış değişkeni olan pH'ın PID kontrolü gerçekleştirilmiş ve çalışma süresince pH'ın istenen değerinde sabit kalması sağlanmıştır. Asit ve baz ayar değişkenlerinin birlikte uygulanarak koordineli kontrol çalışmalarının gerçekleştirildiği proseste farklı ve sabit pH değerlerinde çalışılmış, bulanıklık ve renk giderimi açısından en uygun pH değeri 5 olarak bulunmuştur.

#### TEŞEKKÜR

Bu araştırma Ankara Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi Koordinatörlüğü'nce desteklenmiştir. Proje No: 14L0443001, 2014 ve 14L0443005, 2014.



## KAYNAKLAR

- Ali, M. and Sreekrishnan, T.R. (2001). Aquatic Toxicity from Pulp and Paper Mill Effluents: a Review, *Advances in Environmental Research*, 5, 175-196.
- Bayramoglu, M., Kobya, M., Can, O.T. and Sozbir, M. (2004). Operating Cost Analysis of Electrocoagulation of Textile Dye Wastewater, *Separation and Purification Technology*, 37, 117–125.
- Camcıoğlu, S., Pekel, L., Polat, K. and Hapoglu, H. (2014). Experimental Design of Wastewater Treatment with Electro-coagulation, *Management of Environmental Quality: An International Journal*, 25, 1, 86-95.
- Canizares, P., Carmona, M., Lobato, J., Marinez F. and Rodrigo, M.A. (2005). Electrodisolution of Aluminum Electrodes in Electrocoagulation Processes, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 44, 4178-4185.
- Kalyani, K.P.S., Balasubramanian N. and Srinivasakannan C. (2009). Decolorization and COD Reduction of Paper Industrial Effluent using Electro-Coagulation, *Chemical Engineering Journal*, 151, 97–104.
- Katal, R. and Pahlavanzadeh, H. (2011). Influence of Different Combinations of Aluminum and Iron Electrode on Electrocoagulation Efficiency: Application to The Treatment of Paper Mill Wastewater, *Desalination*, 265, 199-205.
- Merzouk, B., Gourich, B., Sekki, A., Madani, K., Vial C. and Barkaoui, M. (2009). Studies on The Decolorization of Textile Dye Wastewater by Continuous Electrocoagulation Process, *Chemical Engineering Journal*, 149, 207-214.
- Shankar, R., Singh, L., Mondal, P. and Chand, S. (2013). Removal of COD, TOC, and Color from Pulp and Paper Industry Through Electrocoagulation, *Desalination and Water Treatment*, 1-12.
- Sridhar, R., Sivakumar, V., Prince, V.I. and Maran, J.P. (2011). Treatment of Pulp and Paper Industry Bleaching Effluent by Electrocoagulant Process, *Journal of Hazardous Materials*, 186, 1495–1502.
- Terrazas, E., Vázquez, A., Briones, R., Lázaro, I. and Rodríguez, I. (2010). EC Treatment for Reuse of Tissue Paper Wastewater: Aspects that Affect Energy Consumption, *Journal of Hazardous Materials*, 181, 809–816.
- Zaied, M. and Bellakhal, N. (2009). Electrocoagulation Treatment of Black Liquor from Paper Industry, *Journal of Hazardous Materials*, 163, 995-1000.

