

Antep Fıstığı İşleme Sanayi Atıksularının Sürekli Elektrokoagülasyon Prosesi ile Arıtımına Etki Eden Parametrelerin İncelenmesi

Alper Erdem YILMAZ¹, Zuhâl KÖKSAL¹

ÖZET: Antep fıstığı işleme sanayi atıksularının sürekli sistem elektrokoagülasyon prosesiyle arıtım verimini etkileyen parametreler incelenmiştir. Anot elektrot malzemesi olarak elektrokoagülasyon prosesinde alüminyum kullanılmıştır. Katot elektrot malzemesi olarak paslanmaz çelikten imal edilmiş elektrokimyasal reaktör kullanılmıştır. Deneysel çalışmalar sürekli moda gerçekleştirilmiştir. Kullanılan anot elektrot 5 mm et kalınlığında, 60 mm dış çaplı, 650 mm yüksekliğe sahip boru tipi elektrottur. Katot elektrot olarak 3 mm et kalınlığına, 70 mm iç çapa, 650 mm yüksekliğe sahip paslanmaz çelikten imal edilmiş reaktör kullanılmıştır. Elektrotlar arası mesafe 5 mm olarak seçilmiştir. Giderim verimine etki eden deneysel parametreler olarak, atıksu başlangıç pH değeri ve atıksu debisi seçilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesi ile yapılan deneysel çalışmaların optimum şartlarında KOİ ve toplam fenol (TF) giderim verimleri sırasıyla %70 ve %92 olarak elde edilmiştir.

Anahtar kelimeler: Alüminyum elektrot, atıksu arıtımı, elektrokoagülasyon

The Investigation of Parameters Affecting on Treatment of Pistachio Processing Industry Waste Water by Continuous Electrocoagulation Process

ABSTRACT: The parameters affecting treatment efficiency of pistachio processing industry waste waters was investigated by continuous electrocoagulation process. Aluminum is used as the anode electrode material in the electrocoagulation process. Electrochemical reactor made of stainless steel was used as a cathode electrode material. Experimental studies carried out in continuous mode. The anode electrode used is an electrode which has 5 mm thick, 60 mm outer diameter, a tubular having 650 mm height. A reactor made of stainless steel with 3 mm wall thickness, 70 mm internal diameter, 650 mm height is used as cathode electrode. Distance between the electrodes is chosen as 5 mm. The initial pH value of waste water and waste water flow rate are chosen as the experimental parameters effecting the removal efficiency. In optimum conditions of experimental studies performed by the electrocoagulation process, COD and total phenol (TF) removal efficiencies were obtained respectively 70% and 92%.

Keywords: Aluminum electrodes, electrocoagulation, wastewater treatment

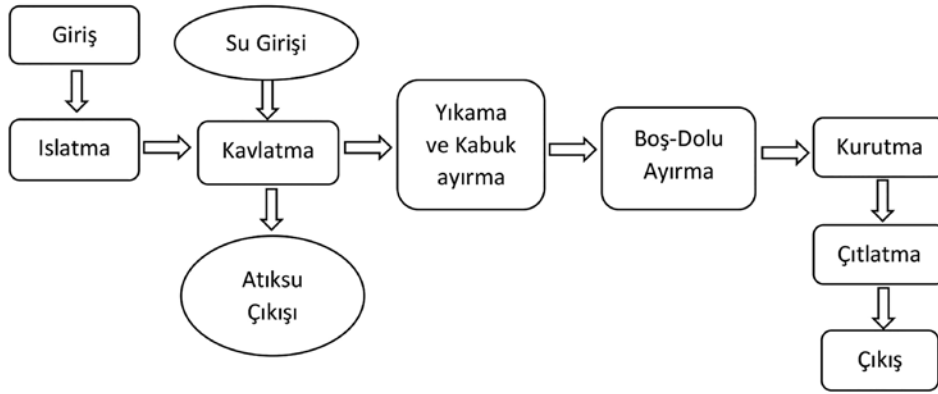
¹ Atatürk Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği, Erzurum, Türkiye
Sorumlu yazar/Corresponding Author: Alper Erdem YILMAZ, aerdemy@atauni.edu.tr

GİRİŞ

Antep fıstığı işleme endüstrisi ülkemizin güneydoğu bölgesinde ve özellikle Gaziantep'te oldukça gelişmiş bir sektördür. Türkiye 2012 yılında, Antep fıstığı üretiminde dünyada üçüncü ülke olmuştur. 2015 yılında, Türkiye'de 144 000 ton Antep fıstığı üretimi gerçekleştirilmiştir (Anonim, 2015). Türkiye'de Antep fıstığı üretimi yaş sistem ile gerçekleştirilmektedir. Antep fıstığının endüstriyel olarak işlenmesinde ton

ürün başına yaklaşık olarak 6 m³ su kullanılmaktadır. Antep fıstığı işleme endüstrisinden ortaya çıkan bu atıksu oldukça yüksek kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ), toplam organik karbon (TOK) ve toplam fenol (TF) içeriği ile karakterize edilmektedir (Bayar et.al., 2014).

Antepfıstığının hasattan sonraki işlemler birbirini izleyen 6 ayrı aşamadan oluşmaktadır. Aşağıda bu kademelerde yapılan işlemler Şekil 1'de şematik olarak gösterilmiştir.



Şekil 1. Fıstık işleme sanayisi akım şeması

Şekilden de görüldüğü gibi kavlatma prosesinde su girişi olmakta ve bu temiz su işlem sonucunda yüksek kirlilik yüküne sahip atıksu olarak açığa çıkmaktadır.

Elektrokimyasal arıtım yöntemleri, kolay kontrol edilebilmeleri, kısa sürede maksimum düzeyde kirliliği azaltmaları, işletimlerinin kolay olması, basit ve düşük maliyetli ekipmanlarla yapılması, kimyasal madde kullanımlarının sınırlı düzeyde olması, buna bağlı olarak da daha az çamur oluşması gibi özelliklerinden dolayı su ve atıksu arıtımında kullanımları da gün geçtikçe yaygınlaşmaktadır. Elektrokimyasal atıksu arıtma yöntemleri genellikle yüksek derişime sahip organik ve inorganik kirlitcilerin arıtılmasında, metal iyonların uzaklaştırılması veya geri kazanılmasında

kullanılmaktadır (Deliktaş, 2011). Elektrokogülasyon (EK), çözünebilen ve pıhtılaştırıcı özelliğe sahip metal (alüminyum ve demir gibi) bir elektrotun kullanıldığı elektrokimyasal atıksu arıtım sürecidir. EK prosesinin kirlitcileri uzaklaştırmadaki prensibi koagülasyon, adsorpsiyon, çöktürme ve flotasyon mekanizmalarının biri veya birkaçına dayanmaktadır. EK'da pıhtılaşma ve çökeltme mekanizmaları, sisteme kimyasal madde ilave etmeden, elektrokimyasal reaktördeki elektrotlar aracılığı ile gerçekleştirilmektedir. Alüminyum ve demir gibi metal anotlar, anodik çözünmeye uğrayarak hidroliz ile metal hidroksitleri oluşturmaktadır. Elektrot malzemesi olarak alüminyum kullanıldığında elektrot reaksiyonları aşağıdaki gibi özetlenebilir.

Katotta;



Anotta;



ve çözeltideki çözülmüş oksijen ile;



Katottan çıkan hidrojen gazı kabarcıkları, oluşan yumaklara yapışarak onların yüzeye iletilmelerine zorlar ve bu sonuç EK işlemine elektroflotasyonun eşlik ettiğinin bir göstergesidir (Jiang et al., 2002).

Literatürde, elektrokimyasal arıtım prosesleri ile arıtılabilecek kirletici türü yağ ve emülsiyonlardan, organik maddelere, inorganik kirleticilerden partiküler maddelere ve mikroorganizmalara kadar geniş bir aralık içerdiğinden dolayı endüstriyel atıksu arıtımı için elektrokimyasal arıtım prosesleri uygun arıtım yöntemi olarak kullanılmaktadır. Endüstriyel atıksu arıtımında kullanılan EK prosesi için literatürde belirtilen seçilmiş çalışmalar incelendiğinde aşağıdaki sonuçlar çıkarılabilir; EK prosesi KOİ (Can et al. 2006; Hernandes et al., 2010; Melhem and Smith, 2012; Hariz et al., 2013; Un and Özel, 2013), BOİ (Diaz et al., 2014), bulanıklık (Zodi et al., 2010), fosfor (Tran et al., 2012), bor (Isa et al. 2014; Yılmaz et al. 2008; Sayiner et al. 2008; Vasudevan et al. 2013), arsenik (Balasubramanian et al., 2009; Lakshminathiraj et al., 2010; Kobya et al. 2011), boya (Yıldız, 2008; Parsa et al., 2011; Pajootan et al., 2012; Zodi et al., 2013), yağ gres (Fouad, 2014), ağır metal (Aji et al., 2012) giderimleri incelenmiş ve belirtilen kirleticilerin yüksek verimlerle giderildiği görülmüştür. Belirtilen literatür çalışmaları ışığında aşağıdaki sonuçlar çıkarılabilir;

* Yapılan literatür araştırmasında fıstık sanayi atıksuları için yapılmış sürekli mod elektrokimyasal

arıtım çalışması bulunmamaktadır. Bu açıdan bakıldığında bu çalışma ilgili atıksu için yapılacak laboratuvar ölçekli ilk çalışma olacaktır.

* Endüstriyel atıksu arıtımında EK prosesinde sık kullanılan elektrot türü Al ve Fe'dir.

* EK prosesi birçok endüstriyel atıksu arıtımı için uygun bir prosestir.

* EK ile atıksu özelliğine bağlı olarak eş zamanlı flotasyon işlemi gerçekleştirilebilir.

* EK prosesi ile farklı atıksu özellikleri için yüksek giderme verimlerine ulaşılabilir.

Bu çalışmanın amacı, yüksek konsantrasyonlarda organik kirlilik içeren fıstık işleme sanayi atıksularından EK prosesi ile KOİ ve Toplam Fenol (TF) giderimi verimine etki eden atıksu başlangıç pH'sı ve atıksu debisi parametrelerinin belirlenmesidir.

MATERYAL VE YÖNTEM

Atıksuyun Temini ve Özelliklerinin Belirlenmesi

Çalışmalarda kullanılan atıksu, Gaziantep ilinde fıstık işleyen bir sanayi tesisinden temin edilmiştir. Bu tesiste oluşan atıksu tesiste herhangi bir fiziksel, biyolojik ve kimyasal arıtım uygulanmadan kanalizasyona deşarj edilmektedir. Numune kavlatma prosesinde oluşan atıksudan alınmıştır. Çizelge 1'de atıksuyun karakterizasyonu verilmiştir.

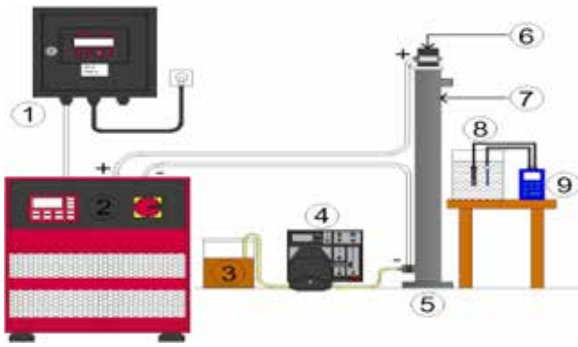
Çizelge 1. Antep fıstığı işleme atıksuyunun özellikleri

PARAMETRELER	DEĞERLER
İletkenlik, ($\mu\text{s cm}^{-1}$)	5.200
Bulanıklık, (NTU)	176.6
pH	5.2
KOİ, (mg L^{-1})	16.500
TOK, (mg L^{-1})	5.300
TF, (mg L^{-1})	4.000
Cl, (mg L^{-1})	602

Elektrokoagülasyon Denemelerinin Yapıldığı Düzenek

EK denemelerinde 500 mL'lik ST 316 paslanmaz çelikten yapılmış bir reaktör kullanılmıştır. Denemeler için gerekli olan elektrik akımı bir adet dijital kontrollü doğru akım güç kaynağı kullanılmıştır. Reaksiyon başlangıcında atıksuyun pH, iletkenlik ve sıcaklık değerlerini ayarlayabilmek ve reaksiyon süresince bu değerleri okuyabilmek

için bir adet WTW marka multimetre sisteme monte edilmiştir. Bu denemelerde arıtma parametreleri olarak, atıksu debisi ve başlangıç pH değerinin etkisi incelenmiştir. Deneysel düzenek Şekil 2'de verilmiştir. KOİ analizleri standart metotlarda belirtilen kapalı sistem (reflux) spektrofotometrik yöntemle yapılmıştır. TF madde tayini Folin-Ciocalteu spektrofotometrik yöntemi kullanılarak (Obanda and Owuor, 1997) gerçekleştirilmiştir.



- (1: kumanda paneli
- 2: güç paynağı
- 3: atıksu giriş haznesi
- 4: peristaltik pompa
- 5: reaktör
- 6: alüminyum anot elektrot
- 7: paslanmaz çelik katot elektrot
- 8: atıksu çıkış haznesi
- 9: pH kontrol hücresi)

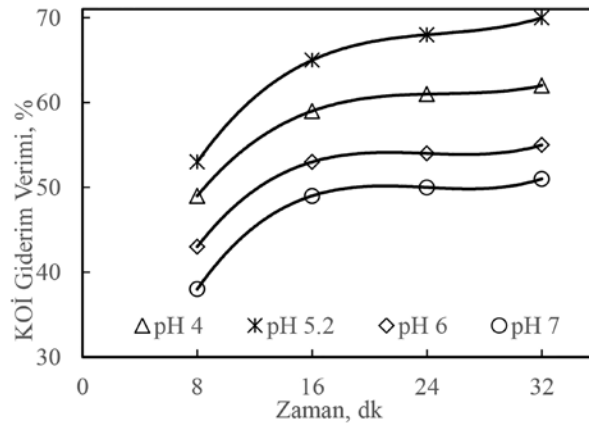
Şekil 2. Deneysel düzenek şematik görünümü

BULGULAR VE TARTIŞMA

Atıksu başlangıç pH değerinin giderim verimine etkisi

EK prosesinde ortamın pH değeri, elektrokimyasal olarak çözünen anot elektrot materyalinin ortamda bulunduğu formu etkilediğinden dolayı fıstık işleme sanayi atıksularının arıtılmasını etkileyen önemli bir parametredir. Atıksu başlangıç pH değerinin atıksudan KOİ ve TF giderim verimi üzerine etkisi alüminyum anot için incelenmiştir. Bunun için atıksuyun başlangıç pH değerleri 4, 5.2, 6 ve 7 olarak ayarlanmış ve reaksiyon gerçekleştirilmiştir. Atıksuyun başlangıç pH

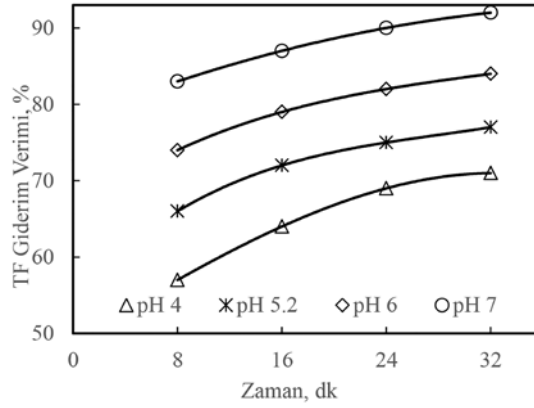
değerinin giderim verimine etkisi incelenirken, 25 ml dk⁻¹'lık akış hızı değerlerinde, farklı akım şiddetlerinde ve destek elektrolitsiz ortamda 500 mL'lik reaktör hacminde araştırmalar gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlar Şekil 3-4'de grafiksel olarak gösterilmiştir. KOİ ve TF değerlerinin bütün pH aralıklarındaki giderim verimleri incelendiğinde ortalama olarak en yüksek giderim veriminin KOİ giderim verimi için atıksuyun doğal pH değerinde olduğu söylenebilir. Atıksuyun başlangıç pH değeri 4'den kendi doğal pH değeri olan 5.2'ye çıkarıldığında KOİ ve TF giderim verimleri sırasıyla %60 ve %71'den %70 ve %77'e yükselmiştir.



*Atıksu debisi: 25 ml dk⁻¹, akım şiddeti: 25 A, Destek elektrolit: yok

Şekil 3. KOİ giderim verimi üzerine atıksu başlangıç pH değerinin etkisi

Ancak atıksuyun başlangıç pH değeri doğal pH değerinden 7'ye yükseltildiğinde KOI giderme verimi %50'ye kadar azalırken, TF giderim verimi %92'ye kadar artmıştır.



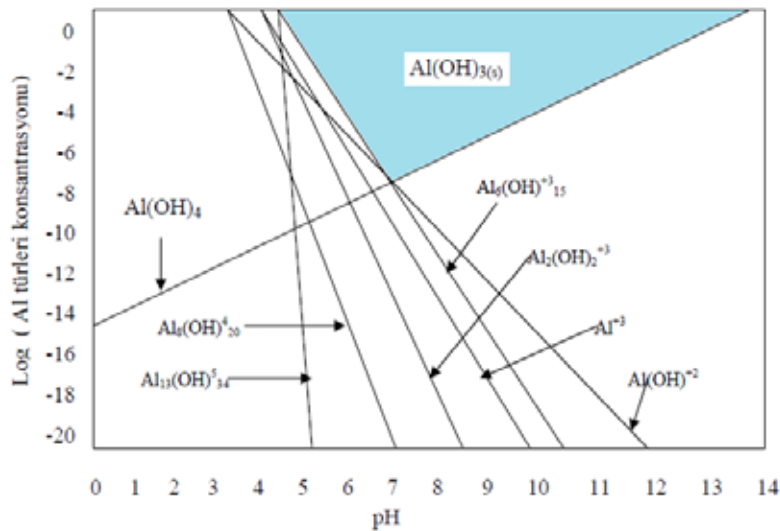
* Atıksu debisi: 25 ml dk⁻¹, akım şiddeti: 25 A, Destek elektrolit: yok

Şekil 4. TF giderim verimi üzerine atıksu başlangıç pH değerinin etkisi

Şekil 3 ve 4 incelendiğinde KOI ve TF giderim verimlerinin aynı eğilimde olmadıkları görülür. Sabit akım şiddeti altında gerçekleştirilen denemelerde, başlangıç pH değerinin KOI ve TF giderim verimlerine farklı şekilde etki etmesinin temel sebebinin, elektrooksidasyon prosesinin doğası gereği organik maddeyi tam olarak nihai ürünlere çeviremeye bile ara organik ürünlerin oluşmasına yol açması olduğu düşünülmektedir. Atıksuda bulunan fenol elektrooksidasyon mekanizması ile nihai ürünlere değil

ara ürünlere dönüştüğü için aynı deneysel şartlarda, TF giderim verimi KOI giderim veriminden daha yüksek değerlere ulaşmaktadır.

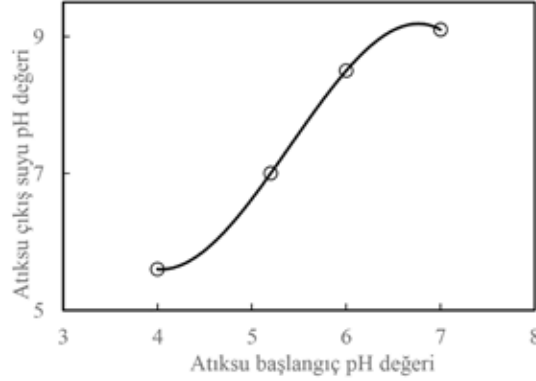
Atıksuyun doğal pH değerinin en iyi sonucu vermesinin sebebi, Şekil 5'te verilen ortam pH değerine bağlı olarak alüminyumun çözünme diyagramı ve Şekil 6'da verilen sabit akım şiddeti ve sabit atıksu debisinde farklı başlangıç pH değerlerine sahip atıksuların reaktör çıkışı pH değerlerini gösteren grafiksel sonuçlar incelendiğinde daha iyi anlaşılacaktır.



Şekil 5. Alüminyumun ortam pH'sına bağlı olarak çözünme diyagramı (Jiang et al. 2002)

$Al(OH)_3$ 'ün çözünürlüğünün en düşük olduğu pH aralığı Şekil 5'ten 5.5-7.5 olarak görülmektedir. Şekil 6'da ise bu değer aralığında olan atıksu

başlangıç değerinin atıksuyun doğal pH değerleri ile gerçekleştirilen deneme sonuçları olduğu görülmektedir.



*Atıksu debisi: 25 ml dk⁻¹, Akım şiddeti: 15 A, Destek elektrolit: yok

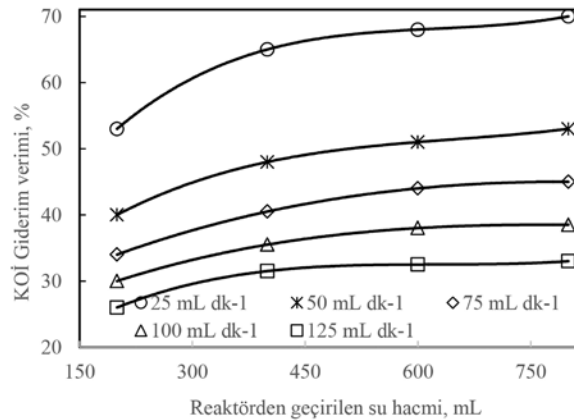
Şekil 6. Atıksu başlangıç pH değerinin reaksiyon boyunca değişimi

Yukarıdaki değerler dikkate alındığında daha sonra incelenecek parametreler için gerçekleştirilecek denemelerde atıksu başlangıç pH değeri olarak atıksuyun kendi doğal pH değerinin kullanılmasına karar verilmiştir.

Atıksu debisinin giderim verimine etkisi

Atıksu debisinin KOİ ve TF giderim verimi üzerine etkisinin incelendiği denemelerde debi 25, 50, 75, 100 ve 125 ml dk⁻¹ aralıklarında seçilmiştir. Atıksuyun reaktöre besleme debisinin giderim verimine etkisi incelenirken, atıksu doğal pH değerinde incelenmiş, elektrokimyasal

reaktöre 20 Amper akım şiddeti uygulanmış ve destek elektrolitsiz ortamda 500 mL'lik reaktör hacminde araştırmalar gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlar Şekil 7-8'de grafiksel olarak gösterilmiştir. Şekil 7-8 incelendiğinde, atıksu debisinin artması KOİ giderim veriminin azalmasına sebep olmuştur. Atıksu debisinin artması, reaktör içerisinde atıksuyun hidrolik kalış süresini azaltacağından dolayı sabit akım şiddeti altında elektrokimyasal olarak çözünen alüminyum iyonlarının organik madde ile reaksiyon hızını azaltmakta ve bunun sonucu olarak çıkış suyunda daha yüksek miktarlarda organik madde bulunmaktadır.



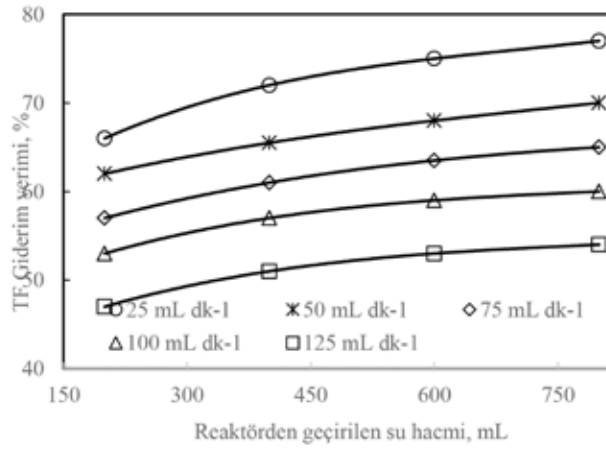
*Atıksu pH_i: 5.2, akım şiddeti: 20 A, Destek elektrolit: yok

Şekil 7. KOİ giderim verimi üzerine atıksu debisinin etkisi

Fıstık sanayi atıksularının elektrokoagülasyon prosesi ile arıtımına akış hızının etkisi incelenirken eş zamanlı olarak alınan çıkış suyu numunelerinde toplam fenol (TF) analizi yapılmış ve TF gideriminin de KOI giderimine benzer eğilim gösterdiği anlaşılmıştır. Artan atıksu debisi TF giderim veriminin azalmasına sebep olmuştur. Bu durumun KOI giderim veriminin azalmasına sebep olan etkenlerden kaynaklandığı sonucuna varılmıştır.

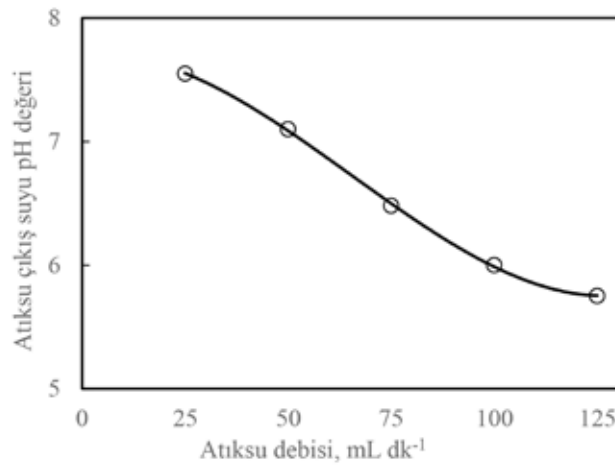
Atıksu debisinin artırılması Şekil 9'dan da görüldüğü gibi çıkış suyu pH değerlerinin değişmesine

sebeptir. Artan akış hızı atıksuyun reaktördeki hidrolik kalış süresini azalttığından dolayı, aynı akım şiddeti altında reaktör içerisinde daha az alüminyum iyonlarının çözünmesine ve dolayısıyla daha az $Al(OH)_3$ oluşmasına sebep olmaktadır. Bu sebeptendir ki EK prosesinin doğası gereği genellikle reaksiyon sonrası artan pH değeri yüksek akış hızlarında veya düşük hidrolik kalış süresinde baskı altına alınmaktadır. Bu durum da atıksuyun reaktör içerisindeki hidrolik kalış süresinin azalması ile açıklanabilir.



*Atıksu pH_i: 5.2, akım şiddeti: 20 A, Destek elektrolit: yok

Şekil 8. TF giderim verimi üzerine atıksu debisinin etkisi



*Atıksu pH_i: 5.2, Destek elektrolit: yok

Şekil 9. Atıksu debisinin reaktör çıkış suyu pH değişimine etkisi

SONUÇ

Bu çalışmada, Gaziantep ilinde bulunan ulusal bir fıstık işleme tesisinden temin edilen atıksudan organik kirleticilerin elektrokoagülasyon prosesleri ile arıtımına etki eden parametreler incelenmiş ve sistem parametrelerinin giderim verimleri üzerindeki etkileri belirlenmiştir. Sistem performansı KOİ ve TF parametreleri ölçülerek belirlenmiştir. Bütün denemeler, sürekli modda gerçekleştirilmiştir. EK prosesinde KOİ ve TF giderim verimlerini etkileyebileceği düşünülen; atıksuyun başlangıç pH'sı ve atıksu debisi değişken parametre olarak seçilmiştir.

Fıstık işleme sanayi atıksularının elektrokoagülasyon prosesi ile arıtımına etki eden önemli parametrelerden biri atıksuyun başlangıç pH değeridir. Bu parametre atıksuyun doğal pH değeri olan 5.2 değerinin altında ve üstünde seçilen değerler ile incelenmiştir. Atıksuyun doğal pH değeri ile gerçekleştirilen denemelerde elde edilen KOİ ve TF giderim verimi sonuçları, bu pH değerinin altında ve üstündeki pH değerleri ile gerçekleştirilen denemelerden elde edilen sonuçlardan çok daha yüksektir. Bu durumun anot elektrot olarak kullanılan alüminyumun elektrokimyasal olarak çözünmesi sonucu oluşturacağı alüminyum hidroksit/oksidhidroksit türleri için en uygun pH aralığının olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. Reaksiyon boyunca düşük başlangıç pH değerlerinde (pH:4) $Al(OH)_3$ 'ün çözünürlüğünün en düşük olduğu pH aralığının altında kaldığı ve yüksek başlangıç pH değerlerinde ise bu aralığın üzerinde olduğu görülmüştür. Belirtilen sebeplerden dolayı elektrokoagülasyon ile alüminyum anot elektrot kullanılarak gerçekleştirilen denemelerde atıksuyun başlangıç pH değerinin doğal pH değeri olan 5.2 olması gerektiği anlaşılmıştır.

Atıksuyun elektrokimyasal reaktöre besleme hızı, reaktörde hidrolik kalış süresini dolayısı ile atıksuyun elektrokimyasal reaksiyonlara maruz kalma süresini tespit ettiği için kirleticilerin giderimini etkileyen önemli bir parametredir. Fıstık işleme sanayi atıksularının arıtımının incelendiği çalışmalarda EK prosesi için atıksu debisinin etkilerinin incelendiği denemelerde, destek elektrolit kullanılmadan, atıksuyun reaksiyon süresince sıcaklığına müdahale edilmeden, atıksuyun doğal pH değerinde ve 20 A'lık akım şiddeti değerlerinde farklı debilerde incelemeler

yapılmıştır. Atıksu debisinin artması, hem KOİ giderim veriminin hem de TF giderim veriminin azalmasına sebep olmuştur. Atıksu debisinin artması, kirleticilerin reaktörde kalış sürelerini azalttığından EK prosesinde sabit akım şiddeti altında oluşan $Al(OH)_3$ flokları ile yeterli süre temas etmelerini engellemiştir.

KAYNAKLAR

- Aji, B A, Yavuz, Y, Koparal, A S, 2012. Electrocoagulation of heavy metals containing model wastewater using monopolar iron electrodes. *Separation and Purification Technology*, 86: 248–254.
- Anonim, 2015. Türkiye İstatistik Kurumu, Bitkisel Üretim İstatistikleri Veri Tabanı. www.tuik.gov.tr/PrelstatistikTablo.
- Balasubramanian, N, Kojima, T, Basha, C A, Srinivasakannan, C, 2009. Removal of arsenic from aqueous solution using electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*, 167: 966–969.
- Bayar, S, Boncukcuoğlu, R, Yılmaz, A E, Fil, B A, 2014. Pre-Treatment of Pistachio Processing Industry Wastewaters (PPIW) by Electrocoagulation using Al Plate Electrode. *Separation Science and Technology*, 49: 1008–1018.
- Can, O, Kobyas, M, Demirbas, E, Bayramoglu, M, 2006. Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation. *Chemosphere*, 62: 181–187.
- Deliktaş, E, 2011. Kağıt Endüstrisi Atıksularının Elektro-Fenton Prosesi İle Arıtılması. Yüksek Lisans Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Selçuk Üniversitesi.
- Diaz, C B, Uribe, B F, Bilyeu, B, 2014. Removal of organic pollutants in industrial wastewater with an integrated system of copper electrocoagulation and electrogenerated H_2O_2 . *Chemosphere*, 105: 160–164.
- Fouad, Y O, 2014. Separation of cottonseed oil from oil–water emulsions using electrocoagulation technique. *Alexandria Engineering Journal* (2014) 53: 199–204.
- Hariz, I B, Halleb, A, Adhoum, N, Monser, L, 2013. Treatment of petroleum refinery sulfidic spent caustic wastes by electrocoagulation. *Separation and Purification Technology*, 107: 150–157.
- Hernandez, I L, Díaz, C B, Bilyeub, B, Rojas, P J G, Medinac, E. C., 2010. A combined electrocoagulation–electrooxidation treatment for industrial wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 175: 688–694.
- Isa, M H, Ezechi, E H, Ahmed, Z, Magram, S F, Kutty, S R M, 2014. Boron removal by electrocoagulation and recovery. *Water Research*, 51: 113–123.
- Jiang, J Q, Graham, N, André, C, Kelsall, G H, Brandon, N, 2002. Laboratory Study Of Electro-Coagulation–Flotation For Water Treatment. *Water Research*, 36(16): 4064–4078.
- Kobyas, M, Gebologlu, U, Ulu, F, Oncel, S, Demirbas, E., 2011. Removal of arsenic from drinking water by the electrocoagulation using Fe and Al electrodes. *Electrochimica Acta*, 56: 5060–5070.

- Lakshminathiraj, P, Prabhakar, S, Raju, G B, 2010. Studies on the electrochemical decontamination of wastewater containing arsenic. *Separation and Purification Technology*, 73: 114–121.
- Melhem, H B Smith, E, 2012. Grey water treatment by a continuous process of an electrocoagulation unit and a submerged membrane bioreactor system. *Chemical Engineering Journal*, 198–199: 201–210.
- Obanda, M Owuor P O, 1997. Flavanol composition and caffeine content of green leaf as quality potential indicators of kenyan black teas. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 74: 209–215.
- Pajootan, E, Arami, M Mahmoodi, N M, 2012. Binary system dye removal by electrocoagulation from synthetic and real colored wastewaters. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 43: 282–290.
- Parsa, J B, Vahidian, H R, Soleymani, A R, Abbasi, M, 2011. Removal of Acid Brown 14 in aqueous media by electrocoagulation: Optimization parameters and minimizing of energy consumption. *Desalination*, 278: 295–302.
- Sayiner, G, Kandemirli, F, Dimoglo, A, 2008. Evaluation of boron removal by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes, *Desalination*, 230: 205–212.
- Tran, N, Drogui, P, Blais, J F, Mercier, G, 2012. Phosphorus removal from spiked municipal wastewater using either electrochemical coagulation or chemical coagulation as tertiary treatment, *Separation and Purification Technology*, 95: 16–25.
- Un, U T Ozel, E, 2013. Electrocoagulation of yogurt industry wastewater and the production of ceramic pigments from the sludge, *Separation and Purification Technology*, 120: 386–391.
- Vasudevan, S, Lakshmi, J, Sozhan, G, 2013. Electrochemically assisted coagulation for the removal of boron from water using zinc anode, *Desalination*, 310: 122–129.
- Yıldız, Y Ş, 2008. Optimization of Bomaplex Red CR-L dye removal from aqueous solution by electrocoagulation using aluminum electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, 153: 194–200.
- Yılmaz, A E, Boncukcuoğlu, R, Kocakerim, M M, Kocadağistan, E, 2008. An empirical model for kinetics of boron removal from boron containing wastewaters by the electrocoagulation method in a batch reactor, *Desalination*, 230: 288–297.
- Zodi, S, Potier, O, Lopicque, F, Leclerc, J P, 2010. Treatment of the industrial wastewaters by electrocoagulation: Optimization of coupled electrochemical and sedimentation processes. *Desalination*, 261: 186–190.
- Zodi, S, Merzouk, B, Potier, O, Lopicque, F, Leclerc, J P, 2013. Direct red 81 dye removal by a continuous flow electrocoagulation/flotation reactor. *Separation and Purification Technology*, 108: 215–222.