

13th July 18 Received; reviewed; 15th August 18 accepted

Elektrokoagülasyon Yöntemi Kullanılarak Disperse Blue 79 ve Reactive Yellow 160 Boyarmaddelerinin Giderim Verimlerinin Karşılaştırılması

Ramazan KEYİKOĞLU¹, Orhan Taner CAN¹, Ahmet AYGÜN¹, Mehmet İŞLEYEN¹

¹ Bursa Teknik Üniversitesi, Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü
Sorumlu Yazar: ramazankeyikoglu@gmail.com (Ramazan KEYİKOĞLU)

Özet: Tekstil endüstrisi yüksek miktarda su ihtiyacı ve atık su üretimi açısından etkili su arıtım teknolojilerine ihtiyaç duyan bir endüstridir. Türkiye’de özellikle Bursa’da tekstil endüstrisi gelişmiş durumdadır. Tekstil üretiminde kumaşların veya kumaşta kullanılan liflerin boyanması sırasında çok miktarda su, sentetik boya ve çeşitli kimyasallar kullanılır ve bunun sonucunda farklı molekül yapılarında kompleks kirleticileri içeren atık su meydana gelir. Özellikle suda çözünürlüğü yüksek ve sabitlenme oranları düşük olan boyar maddeler uygulama sırasında tamamen tutunmadan hidrolize olmaları nedeniyle çok miktarda tutunmamış boya atık haline gelir. Alıcı su ortamında atık boyanın oluşturacağı renk nedeniyle ışık geçirgenliği azalarak fotosentez faaliyetleri engellenir ve oksijen tükenmesi meydana gelir. Ayrıca toksik ve mutajenik boyar maddelerin su kütlelerinde bulunmaları sucul yaşamı olumsuz etkiler. Kanalizasyon sistemine arıtılmadan bırakılmaları kentsel atık su arıtma tesislerinin biyolojik proseslerinde sorunlara yol açabilir. Bu nedenle boyar madde içeren atık suların su sistemlerine bırakılmadan önce arıtılmaları için yenilikçi, uygun maliyetli ve etkili atıksu arıtım teknolojilerine ihtiyaç vardır. Elektrokoagülasyon tekstil endüstrisi atık sularında özellikle renk gideriminde etkili bir yöntem olarak bilinmektedir. Bu çalışmada sulardan renk gideriminde etkili bir yöntem olan elektrokoagülasyonun aynı çalışma şartlarında boya banyolarında koloidal olarak bulunan dispers boyaya (Disperse Blue 79) ve boya banyosunda çözünmüş ve anyonik karakterdeki reaktif boyaya (Reactive Yellow 160) uygulandı. Çalışma sonuçlarından 0,1 Amper akım şiddeti ve 10 dakikalık deney süresi sonunda Disperse Blue 79 boyası % 92,45 oranında giderilirken Reactive Yellow 160 boyası ancak % 54,84 oranında giderildi. Bu sonuç bize elektrokoagülasyon yöntemi ile renk gideriminde boya türünün ne kadar etkili olabildiğini göstermektedir.

Anahtar Kelimeler: Elektrokimyasal arıtma, boyarmadde, elektrokoagülasyon, Reactive Blue 79, Reactive Yellow 160

Comparison of Disperse Blue 79 Dye and Reactive Yellow 160 Dye Removal Efficiency by Electrocoagulation Method

Abstract: The textile industry uses high amount of water and generates wastewater that requires effective wastewater treatment technologies. Textile industry in Turkey is an advanced industry particularly in Bursa. During the dyeing process of fabrics and the fibres a lot of water, synthetic dyes and various chemicals are used, and consequently wastewater is produced that contains complex pollutants with different chemical structure. In particular, dyes that have high water solubility and low fixation rates hydrolyse before they are fully fixed, which results in high amount of waste dye. Decreased light permeability due to the colour caused by the waste dye prevents photosynthetic activities and oxygen depletion occurs. Furthermore, the presence of toxic and mutagenic dyes in water

bodies adversely affect aquatic life. Releasing them into the sewage system without treatment can cause problems in biological processes of urban wastewater treatment plants. Therefore, there is a need for innovative, cost effective and efficient wastewater treatment technologies for the treatment of wastewater containing dyes before they are released to the water systems. Electrocoagulation is known to be an effective method especially in colour removal from textile industry wastewaters. In this study, as an effective method for colour removal from waters electrocoagulation was applied to a disperse dye (Disperse Blue 79), which is in a colloid form in a dye solution, and to a reactive dye (Reactive Yellow 160), which has an anionic character and is dissolved in water. After a 10 minutes' experiment period with 0.1 A current intensity %92.45 colour removal rate was obtained for Disperse Blue 79 whereas for the Reactive yellow 160 colour removal rate was only %54.84. Study results shows the importance of dye type in colour removal with electrocoagulation method.

Keywords: *Electrochemical Treatment, dye, electrocoagulation, Reactive Blue 79, Reactive Yellow 160*

1. Giriş

Tekstil endüstrisi yoğun su tüketimi ve atıksu oluşumu ile karakterize edilmektedir. Boyama işlemleri sonucu tekstil atıksularının en belirgin özellikleri arasında gösterilen yüksek kirlilik içeren renkli atıksu oluşumu gözlenmektedir (Sleiman vd., 2007). Oluşan atıksuyun miktarı ve bileşimi her bir tesis için farklılık gösterebilmektedir. Zira boyama işleminde kullanılan boyarmaddelerin, yardımcı kimyasalların miktarları uygulanacak life, boyama tekniğine göre değişiklik göstermektedir. Oluşan atıksu miktarı her yıl 200 bin tona ulaşmaktadır (Chequer vd., 2013). Yüksek çözünürlüğe sahip reaktif boyalar tekstil kumaşıyla tam bir kimyasal bağ oluşturan özel yapıya sahiptirler (Panda, 2013). Yapılarında boyaya renk veren kromofor grubu, reaktif grup ve kromoforu doğrudan reaktif gruba bağlayan köprü oluşturu bir grup bulunmaktadır (Broadbent, 2001). Geniş parlak renk gamı, yüksek yıkama haslığı ve uygulama kolaylıkları nedeniyle özellikle tekstil endüstrisinde yoğun olarak kullanılırlar (Khatri vd., 2015). Dispers boyalar ise suda çözünmeyen ya da az çözünen, non-iyonik karakterleri nedeniyle selüloz, naylon polyester, yapay ipek, asetat gibi sentetik hidrofobik liflere uygulanırlar (Mock, 2004). Dispers boyalar boya banyosunda bir dağıtıcı ajan (dispergator) varlığında koloidal halde bulunurlar (Broadbent, 2001).

Boyar maddeler bilinçli olarak su, sabun, deterjan, ışık ve sıcaklık gibi etmenlere karşı dayanıklı olarak üretilmeleri nedeniyle çoğu geleneksel atıksu arıtma proseslerinden etkilenmeyerek çevrede varlıklarına devam edebilirler. Modern boyaların sentetik doğaları ve aromatik yapıları nedeniyle biyolojik bozunmaya dirençlidirler (Couto, 2009). Ayrıca sudaki çözünürlüklerinin fazla olması nedeniyle atıksudan giderilmeleri daha zordur (Aygün ve Eren, 2017). Günümüzde elektrokimyasal atıksu arıtma teknolojileri, işletme ve kurulum kolaylığı, yüksek giderim verimleri ve uygun maliyetleri nedeniyle çeşitli endüstriyel atıksuların arıtımında kullanılabilir. Büyük hacimlerde havuzlar ve çok sayıda kimyasalın kullanıldığı geleneksel sofistike arıtma tesislerinin yerine geçebilecek potansiyele sahiptir (Sala ve Gutiérrez-Bouzán, 2012).

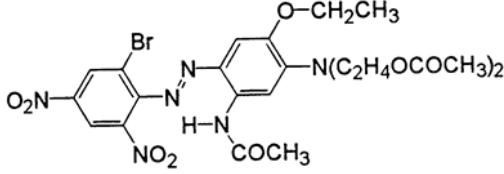
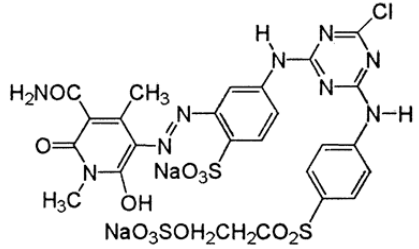
Elektrokoagülasyon prosesinde atıksuya daldırılmış elektrotlar ile uygulanan elektrik akımı sonucu anot materyali çözünerek ortamda koagulant türlerinin oluşması sağlanır. Tükendir karakterdeki anot materyalinden elektrokimyasal çözünme sonucu oluşan metal katyonları suda hidrolize olarak metal hidroksit türlerini meydana getirirler. Bu türler koagulant olarak davranarak partikülleri kararsız hale getirmede rol alırlar (Martínez-Huitle ve Brillas, 2009). Elektrotlarda meydana gelen reaksiyonlar sonucunda ortamda oluşan Al^{3+} ve OH^- iyonları birleşerek $Al(OH)^{2+}$, $Al(OH)_2$, $Al_2(OH)_4^{4+}$, $Al(OH)_4^-$ gibi monomerik türler ve $Al_6(OH)_{15}^{3+}$, $Al_7(OH)_{17}^{4+}$, $Al_8(OH)_{20}^{4+}$, $Al_{13}O_4(OH)_{24}^{7+}$, $Al_{13}(OH)_{34}^{5+}$ gibi polimerik türleri meydana getirirler (Kobyva vd., 2006). Elektrokoagülasyon yöntemi, maden ve metal işleme sanayi (Holt vd., 2002), içme suyu arıtımı (Matteson vd., 1995), nitrat giderimi (Koparal ve Öğütveren, 2002), florür giderimi (Shen vd., 2003), arsenik giderimi (Balasubramanian ve Madhavan, 2001), tekstil atıksuları arıtımı (Mehmet Kobyva vd., 2003) gibi alanlarda yüksek giderim verimleri ile uygulanabilmektedir.

Bu çalışmanın amacı boya türünün (dispers ve reaktif) elektrokoagülasyonda giderme verimine etkisini belirlemektir. Aynı deney şartlarında DB 79 boyası ile RY 160 boyasının elektrokoagülasyon yöntemi ile sulardan uzaklaştırılmasında renk giderme verimleri karşılaştırılacaktır.

2. Malzeme ve Metot

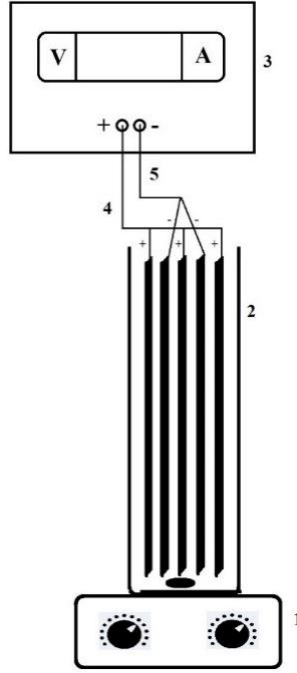
Çalışmada dispers boya olarak DB 79 boyası ve reaktif boya olarak ta RY 160 boyası kullanıldı. Kullanılan boyaların temel özellikleri Çizelge 1 de verilmiştir.

Çizelge 1. Çalışmada kullanılan boyarmadde özellikleri

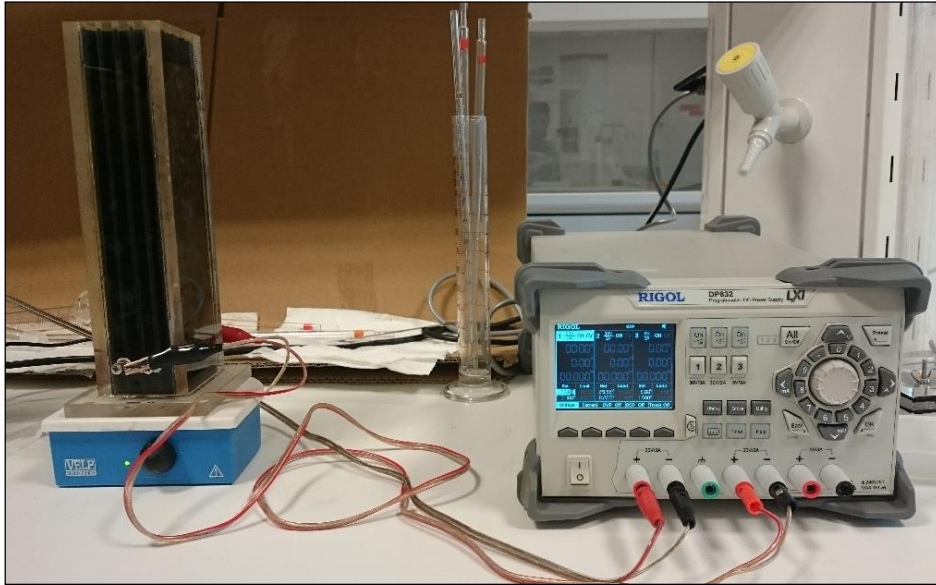
Parametre	Disperse Blue 79 (DB 79)	Reactive Yellow 160 (RY 160)
Molekül yapısı		
Eş anlamlıları	Disperse Navy Blue HGL, Disperse Navy Blue S-3BG	Remazol Brilliant Yellow 4GL
CAS numarası	12239-34-8	129898-77-7
Molekül formülü	$C_{24}H_{27}BrN_6O_{10}$	$C_{25}H_{22}ClN_9Na_2O_{12}S_3$
Molekül ağırlığı (g/mol)	639,41	818,13
λ_{max} (nm)	534	429
Fiziksel hali	Kristal toz (gri-mavi)	Kristal toz (sarı)

Deneyler şekil 1'de gösterilen plexiglasdan üretilmiş 29 x 7,5 cm boyutlarında reaktörlerde yapıldı. Elektrot olarak 200 x 60 mm boyutlarında 120 cm² yüzey alanına sahip alüminyum elektrotlar kullanıldı. Reaktör içerisine 3 adet anot ve 2 adet katot elektrot monopolar düzeninde paralel bağlantılı yerleştirildi. Aktif yüzey alanı sayısı 4 olan anot elektrotların toplam aktif yüzey alanı (4 x 120) 480 cm² dir. Elektrotlar arası mesafe 10 mm dir. Akım ve voltaj, Rigol DP832 marka güç kaynağı kullanılarak kontrol edildi. Reaktör içerisindeki karışım manyetik karıştırıcı kullanılarak sağlandı.

Elektrokoagülasyon prosesinde laboratuvar ölçekli reaktörler kesikli sistemde çalıştırıldı (Şekil 2). Çalışmalarda kullanılmak üzere 50 mg/L sentetik boya atıksuyu hazırlandı. Her deney setinde reaktör içerisine konulan boya çözeltisi hacmi 500 ml dir. Reaktör içerisinde iletkenliği arttırmak için 1000 mg/l NaCl çözeltisi eklendi. Elektrolit çözeltisine tamamen batmış haldeki elektrotlar anot ve katot olarak güç kaynağındaki (+) ve (-) kutuplara bağlandıktan sonra istenilen akım ve voltaj ayarlamaları yapıldı. Deney süresince reaktör içerisinde karışımı sağlamak için 100 rpm hızında çalışan manyetik karıştırıcı kullanıldı. Toplam 15 dk'lık deney süresi boyunca 2,5 dk'lık aralıklarla reaktör üzerindeki musluk yardımı ile alınan numuneler kaba filtreden geçirilerek UV-Spektrofotometrede her bir boyanın maximum pik verdiği kendi dalga boyunda analiz edildi. Deneyler 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,2 Amper olmak üzere farklı akım değerlerinde tekrar edildi ve elektrotların akım yoğunlukları sırasıyla; 0,052; 0,104; 0,156; 0,208; 0,417 mA/cm² dir.



Şekil 1. Elektrokoagülasyon deney düzeneğinin şematik gösterimi (1: manyetik karıştırıcı, 2: elektrokoagülasyon reaktörü, 3: DC güç kaynağı, 4: anot elektrotları bağlantısı, 5: katot elektrotları bağlantısı)



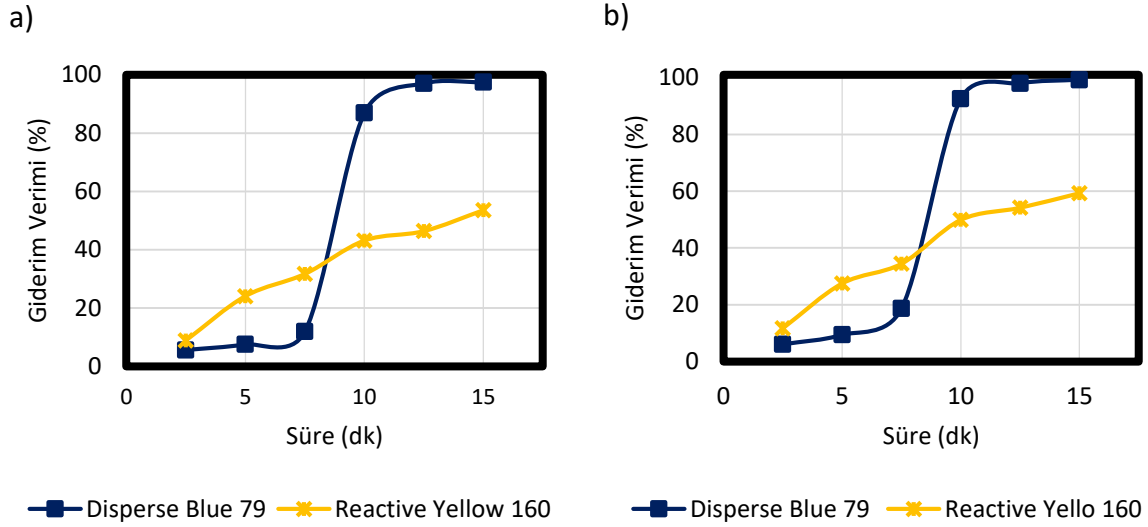
Şekil 2. Elektrokoagülasyon deney düzeneği

Çalışmalarda öncelikle boyar maddelerin spektrofotometrede dalga boyu taraması yapılarak λ max değerleri bulundu. Absorbans değerleri Thermo Scientific Evolution 201 UV-Visible Spectrophotometer cihazı kullanılarak belirlendi.

3. Sonuç ve Değerlendirme

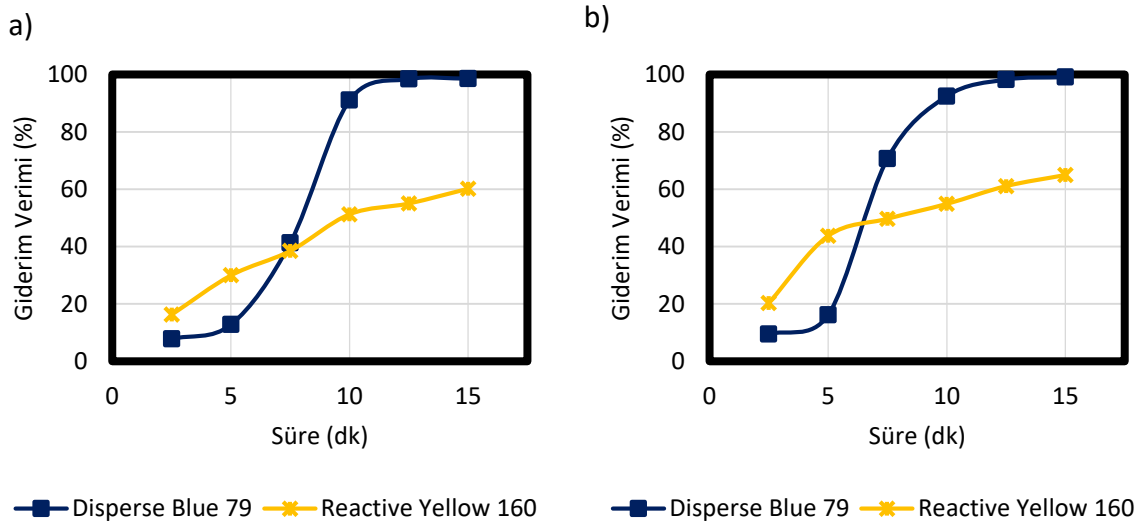
Tüm elektrokimyasal proseslerde, akım yoğunluğu elektrokimyasal reaktör içerisindeki reaksiyonları etkileyen en önemli kontrol parametresidir. Akım yoğunluğu koagulant türlerinin oluşum hızını ve miktarını ve dolayısıyla flok oluşumunu etkiler (Ballal vd., 2010). Her iki boya solüsyonundan renk giderim verimlerinin karşılaştırılması için 0,052; 0,104; 0,156; 0,208; 0,417 mA/cm² olmak üzere 5 farklı akım yoğunluğunda deneyler yapıldı. Şekilde 3’de 0,052 cm²/A ve 0,104 cm²/A akım yoğunluklarında

giderim verimleri gösterilmiştir. İlk dakikalarda Reactive yellow 160 (RY 160) boyasının giderimi daha yüksek olsa da yaklaşık 7,5 dakikadan sonra Disperse blue 79 (DB 79) boyasının giderim verimi keskin bir şekilde artış göstermiştir. 15 dk'lık deney süresi sonunda $0,052 \text{ cm}^2/\text{A}$ ve $0,104 \text{ cm}^2/\text{A}$ akım yoğunluklarında DB 79 boyasının giderim verimi sırasıyla yaklaşık %97 ve %99 iken RY 160 boyasının giderim verimi sırasıyla %53,58 ve %59,28 olmuştur.



Şekil 3. DB 79 ve RY 160 boyaalarının giderim verimleri a) $0,052 \text{ cm}^2/\text{A}$ b) $0,104 \text{ cm}^2/\text{A}$

Akım yoğunluğunun $0,156 \text{ cm}^2/\text{A}$ ve $0,208 \text{ cm}^2/\text{A}$ çıkartılması ile giderim verimleri benzer eğilim göstermiştir (Şekil 4). İlk dakikalarda RB 160 boyasının giderimi daha iyiyken 5. dakikan sonra DB79 giderim verimi keskin bir şekilde artmıştır. 15 dk'lık deney süresi sonunda $0,156 \text{ cm}^2/\text{A}$ ve $0,208 \text{ cm}^2/\text{A}$ akım yoğunluğunda DB 79 boyasının giderim verimi sırasıyla yaklaşık %98 ve %99 iken RY 160 boyasının giderim verimi sırasıyla %60,14 ve %64,92 olmuştur.

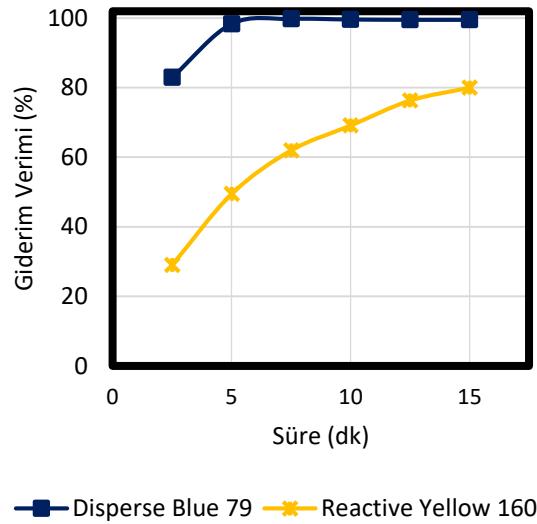


Şekil 4. DB 79 ve RY 160 boyaalarının giderim verimleri a) $0,156 \text{ cm}^2/\text{A}$ b) $0,208 \text{ cm}^2/\text{A}$

Akım yoğunluğu $0,417 \text{ cm}^2/\text{A}$ çıkarıldığında ise DB79 boyası giderim verimi deney süresi boyunca RY 160 boyasından üstün olmuştur. 15 dk'lık deney süresi sonunda $0,417 \text{ cm}^2/\text{A}$ yoğunluğunda DB 79 boyasının giderim verimi yaklaşık %99 olurken RY 160 boyasının giderim verimi %79,95 olmuştur (Şekil 5).

Akım yoğunluğunun artırılması ile her iki boya türünün giderim verimi de artmıştır. En yüksek akım yoğunluğunda en hızlı ve en çok boya giderimi gerçekleşmiştir. Faraday kanuna göre aliminyum ve hidroksil iyonlarının oluşum miktarı akım yoğunluğunun artması ile birlikte artacağından daha hızlı ve etkili giderim sağlanmıştır (Adhoum vd., 2004). Ayrıca katotta ortaya çıkan gaz kabarcıklarının boyutu ve hızı artan akım yoğunluğu ile birlikte artarak boya giderimine katkı sağlamıştır (Khosla vd., 1991). Ancak akım miktarının artırılması arıtma maliyetini de doğrudan arttıracığı için optimum akım yoğunluğunun belirlenmesi gereklidir. DB79 boyasının farklı akım yoğunluklarındaki giderimine bakıldığında en düşük akım yoğunluğunda yaklaşık %97 giderim sağlanmış ve akım yoğunluğunun daha fazla artırılması giderim verimini çok etkilemeyerek sadece maliyet artışına sebep olacaktır.

Çalışılan tüm akım yoğunluklarında dispers yapıya sahip DB 79 boyası renk giderim verimi reaktif yapıya sahip RY 160 boyası renk gideriminden yüksek olmuştur. Elektrokoagülasyon yöntemi ile boya giderimi boyaların çözünürlüğü, flok oluşumu ve çökebilirliğe bağlıdır (Kim vd., 2002). Reaktif boyalar anyonik karakterde ve suda çözünürlükleri yüksektir. Ancak Dispers boyalar sıvı dispersiyondan uygulanırlar, iyonik olmayan karakterde ve neredeyse suda hiç çözünmezler (Kiernan, 2001). Dispers boyalar gibi düşük çözünürlüğe sahip boyalar sulu solüsyonlarda kolloid halde bulunarak adsorpsiyon ve flokülasyona elverişli durumdadırlar. Diğer taraftan reaktif boyalar gibi suda çözünürlüğü yüksek olan boyalar koagüle olsalar da daha zayıf flok oluşturma ve çökeltme eğilimi göstermeleri nedeniyle sudan giderim verimleri dispers boyalara göre daha düşük olmuştur.



Şekil 5. 0,417 cm²/A akım yoğunluğunda DB 79 ve RY 160 boyaalarının giderim verimleri

4. Sonuçlar

Dispers ve Reaktif olmak üzere iki farklı karakterdeki DB 79 ve RY 160 boyaalarının elektrokoagülasyon prosesi ile sulardan uzaklaştırılmalarının karşılaştırılması için farklı akım yoğunluklarında elektrokoagülasyon deneyleri yapılmıştır. Çalışmada elektrokoagülasyon metodunun boyarmadde gideriminde başarı ile uygulanmıştır. Deney sonuçlarında akım yoğunluğunun artırılması ile her iki boyarmaddenin giderim verimleri artmıştır. Akım yoğunluğunun artırılması RY160 boyasının giderim verimini daha fazla etkilemiş, ancak zaten en düşük akım yoğunluğunda bile çok yüksek (%~97) oranda giderilen DB79 boyası için akım yoğunluğunun artırılması sadece boya giderim hızını arttırmıştır. Uygulanan akım miktarı elektrik tüketimini etkilediği için arıtım maliyetini etkileyen en önemli parametrelerdendir.

Ayrıca deney sonuçları farklı türlerdeki boyarmaddelerin giderim kinetiklerinin aynı olmadığını doğrulamıştır. Dispers boya sınıfında yer alan DB 79 boyası renk giderim verimi reaktif boya sınıfında

yer alan RY 160 boyası renk giderim veriminden daha yüksek olmuştur. 0,1 Amper akım şiddeti ve 10 dakikalık deney süresi sonunda DB 79 boyası %92,45 oranında giderilirken RY 160 boyası ancak %54,84 oranında giderildi. Çalışma sonuçları elektrokoagülasyon yöntemi ile boya gideriminde boya türünün ne kadar etkili olduğunu göstermektedir.

5. Kaynakça

- Adhoum, N., Monser, L., Bellakhal, N., & Belgaied, J. E., (2004), Treatment of electroplating wastewater containing Cu²⁺, Zn²⁺ and Cr(VI) by electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, 112(3), 207–213.
- Aygün, A., & Eren, B., (2017), Elektrokoagülasyon Yöntemiyle Reaktif Yellow 160 Boyar Maddesinin Giderimi, *Academic Platform-Journal of Engineering and Science*, 3, 10–18.
- Balasubramanian, N., & Madhavan, K., (2001), Arsenic removal from industrial effluent through electrocoagulation, *Chemical Engineering and Technology*, 24(5), 519–521.
- Balla, W., Essadki, A. H., Gourich, B., Dassaa, A., Chenik, H., & Azzi, M., (2010), Electrocoagulation/electroflotation of reactive, disperse and mixture dyes in an external-loop airlift reactor, *Journal of Hazardous Materials*, 184(1–3), 710–716.
- Broadbent, A. D., (2001), *Basic Principles of Textile Coloration*, Society of Dyers and Colourists, Bradford,UK, ss: 371.
- Chequer, F. M. D., Oliveira, G. A. R. de, Ferraz, E. R. A., Cardoso, J. C., Zanoni, M. V. B., & Oliveira, D. P. de., (2013), *Textile Dyes: Dyeing Process and Environmental Impact*, InTech.
- Couto, S. R., (2009), Dye removal by immobilised fungi, *Biotechnology Advances*, 27(3), 227–235.
- Holt, P. K., Barton, G. W., Wark, M., & Mitchell, C. A., (2002), A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 211(2–3), 233–248.
- Khatri, A., Peerzada, M. H., Mohsin, M., & White, M., (2015), A review on developments in dyeing cotton fabrics with reactive dyes for reducing effluent pollution, *Journal of Cleaner Production*, 87(1), 50–57.
- Khosla, N. K., Venkatachalam, S., & Somasundaran, P., (1991), Pulsed electrogeneration of bubbles for electroflotation, *Journal of Applied Electrochemistry*, 21(11), 986–990.
- Kiernan, J., (2001), Classification and naming of dyes, stains and fluorochromes, *Biotechnic & Histochemistry*, 76(5–6), 261–278.
- Kim, T. H., Park, C., Shin, E. B., & Kim, S., (2002), Decolorization of disperse and reactive dyes by continuous electrocoagulation process, *Desalination*, 150(2), 165–175.
- Kobyas, M., Can, O. T., & Bayramoglu, M., (2003), Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, 100(1–3), 163–178.
- Kobyas, M., Demirbas, E., Can, O. T., & Bayramoglu, M., (2006), Treatment of levafix orange textile dye solution by electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, 132(2–3), 183–188.
- Koparal, A. S., & Ögütveren, Ü. B., (2002), Removal of nitrate from water by electroreduction and electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, 89(1), 83–94.
- Martínez-Huitle, C. A., & Brillas, E., (2009), Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods: A general review, *Applied Catalysis B: Environmental*, 87(3–4), 105–145.
- Matteson, M. J., Dobson, R. L., Glenn, R. W., Kukunoor, N. S., Waits, W. H., & Clayfield, E. J., (1995), Electrocoagulation and separation of aqueous suspensions of ultrafine particles, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 104(1), 101–109.
- Mock, G. (2004), *Synthetic Fibre Dyeing*, Society of Dyers and Colorists, Bradford,UK, ss:293.
- Panda, H., (2013), *A Concise Guide on Textile Dyes, Pigments and Dye Intermediates with Textile Printing Technology*, NIIR Project Consultancy Services, India, ss: 512.
- Sala, M., & Gutiérrez-Bouzán, M. C., (2012), Electrochemical techniques in textile processes and wastewater treatment, *International Journal of Photoenergy*, 2012, 12.

Shen, F., Chen, X., Gao, P., & Chen, G., (2003), Electrochemical removal of fluoride ions from industrial wastewater, *Chemical Engineering Science*, 58(3-6), 987-993.

Sleiman, M., Vildoza, D., Ferronato, C., & Chovelon, J.-M., (2007), Photocatalytic degradation of azo dye Metanil Yellow: Optimization and kinetic modeling using a chemometric approach, *Applied Catalysis B: Environmental*, 77(1), 1-11.