



*Erciyes University Journal of the Institute of Science and Technology*

*Erciyes Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*

ISSN 1012-2354

Cilt (Volume): 29, Sayı (Issue): 2, Nisan/April-2013

<http://fbe.erciyes.edu.tr/>



## İndigo boyar maddesi içeren atıksu renginin elektro-fenton prosesi ile giderimi

Yusuf Saatçi\*, Özge Hanay

Fırat Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi Çevre Mühendisliği Bölümü, Elazığ

### ÖZET

**Anahtar Kelimeler:**  
Elektro-Fenton, indigo boyar madde, renk giderimi, tekstil atıksuyu.

Bu çalışmada biyolojik arıtmaya dirençli olan indigo boyaması yapan tekstil endüstrisi atıksuyunda renk giderimi için elektro-Fenton yönteminin uygulaması gerçekleştirilmiştir. Bu atıksuda en iyi renk giderimini sağlamak amacıyla sistemde elektriksel akım uygulaması ile farklı pH seviyelerinde, değişen  $Fe^{+2}$  konsantrasyonlarında ve farklı  $H_2O_2$  dozajlarında deneyler gerçekleştirilmiştir. Farklı başlangıç pH seviyelerinde çalışılan deney serilerinde pH: 4 için elde edilen renk giderimi %100 olarak bulunmuştur. Ayrıca ortama ilave edilen  $H_2O_2$  dozajı optimize edilerek ve pH:4'de çözünen  $Fe^{+2}$  konsantrasyonuna göre  $Fe^{+2}$ :  $H_2O_2$  molar oranı 1: 73 olarak belirlenmiştir.

## Color removal from indigo dye containing wastewater by electro-fenton process

### ABSTRACT

**Key Words:**  
Electro-Fenton, indigo dyes, decolorization, textile wastewater.

In this study, electro-Fenton technique was applied for the removal of color from the textile wastewater contaminated with indigo dyes. To achieve the complete decolorization, a series of experiments were carried out at different initial pH and  $Fe^{+2}$  and  $H_2O_2$  concentrations. The complete decoloration for indigo dyes was obtained at pH 4. Additionally,  $Fe^{+2}$ :  $H_2O_2$  dosage was found to be 1: 73 by optimizing the  $H_2O_2$  dosage, considering the concentration of  $Fe^{+2}$  in the reactor.

\*Sorumlu Yazar (Corresponding author) e-posta: [ysaatci@firat.edu.tr](mailto:ysaatci@firat.edu.tr)

## 1. Giriş

Sentetik boyar maddelerin toksisitesi, potansiyel mutajenitesi ve kanserojen olmasından dolayı insan sağlığı ve ekosistem için tehlike oluşturmaktadır (Chung ve diğ., 1981; Pinheiro ve diğ., 2004). Renkli atıksuların estetik problemlerinin yanı sıra boyar maddeler güneş ışığını absorblar böylece sucul bitkilerin fotosentetik aktivitesini engelleyerek tüm ekosisteme zarar verir (Solmaz ve diğ., 2006). Aynı zamanda boyar madde içeren sular klasik arıtıma dirençlidir ve yüksek renk ve KOİ içeriği ile düşük biyoparçalanabilirliğinden dolayı bu atıksuların uygun ve etkili yöntemlerle giderilmesi büyük önem taşımaktadır (Haug ve diğ., 1991). Bu suların arıtımında biyolojik arıtım, koagülasyon, adsorbsiyon, ozonlama, kimyasal oksidasyon ve köpük flotasyonu gibi farklı klasik atıksu arıtma metotları kullanılmıştır (Correia ve diğ., 1994; Garrote ve diğ., 1995; Kudlich ve diğ., 1996; Forgacs ve diğ., 2004). Oysa ki bu metotların bir çoğu verimsiz, maliyetli ve ikincil atık oluşumuna neden olmuşlardır.

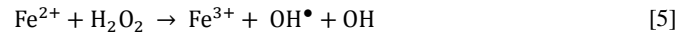
Klasik atıksu arıtma metotlarının sınırlamaları ileri oksidasyon proseslerinin uygulanmasıyla üstesinden gelinebilir. Bu metotlar çözeltide hidroksil radikalleri gibi oldukça reaktif, seçici olmayan güçlü oksitleyici kimyasalın oluşumuna bağlıdır. Hidroksil radikalleri güçlü bir oksidatif potansiyele ( $E^0$ : 2.80 V) sahiptir (Ghoneim ve diğ., 2011). Asidik şartlar altında  $Fe^{+3}$  tuzlarının elektro-indirgenmesiyle  $Fe^{+2}$  ve çözülmüş oksijenin indirgenmesiyle  $H_2O_2$  oluşabildiğinden, klasik Fenton oksidasyonlarıyla karşılaştırıldığında elektro-Fenton daha ilgi çekmektedir (Brillas ve diğ., 1998; Brillas ve diğ., 2009; Martinez-Huitle ve Brillas, 2009; Oturan ve diğ., 2009).  $H_2O_2$  organik bileşiklerin sentezi ya da parçalanması için fenton kimyasalını sürekli oluşturmak için  $Fe^{+2}$  ile birleşebilmektedir (Do ve Chen, 1993). Bunun yanı sıra elektro-Fenton prosesleri konsantrasyonun taşınımı ve muamelesiyle ilgili tehlikeleri ve maliyetleri azaltır (Brillas ve diğ., 1998). Aynı zamanda daha verimli bir şekilde  $Fe^{+2}$ 'i oluşturur (Anotai ve diğ., 2006; Yuan ve diğ., 2006). Fenol, anilin ve azo boyar maddeleri gibi farklı bileşiklerin gideriminde elektro-Fenton proses uygulamaları çalışılmıştır (Fockedey ve van Lierde, 2002; Brillas ve Casado, 2002; Lahkimi ve diğ., 2007; Zhou ve diğ., 2007). Bu elektrokimyasal proseslerde ağ şeklinde camı karbon, grafit veya  $O_2$  difüzyonlu katotlar gibi yüksek yüzey alanlı karbonlu elektrotlar kullanılmıştır (Lei ve diğ., 2010). Son çalışmalarda ise boron kaplı mücevher elektrotlar kullanılarak farklı elektrotların kullanımında yeni bir yaklaşım araştırılmıştır (Cruz-Gonzalez ve diğ., 2010; Edgar ve diğ., 2011).

Tekstil imalatı Türkiye'deki başlıca endüstriyel aktivitelerden birisidir. Pamuklu kumaş boyamada azo boyalar ve vat boyalar yaygın olarak kullanılan boyalardandır. Vat boyaları arasında indigo boyaları pamuklu tekstil fabrikalarında özellikle kot imalatında çok yaygın bir şekilde kullanılır. Bu nedenle indigo boyar maddeler çok büyük miktarlarda ve sıklıkla çevresel ortama deşarj edilir. Ülkemizde indigo boyalarını kullanan tekstil endüstrilerinde atıksular aerobik tam karışimli aktif çamur sistemleri ile arıtılmaktadır. Bu arıtma tipinde renk giderilememekte ve indigo boyalarının aerobik mikroorganizmalara toksik etki yapması sonucunda arıtma veriminde düşüşler kaydedilmektedir.

Bu çalışmada biyolojik arıtıma dirençli olan indigo boyaması yapan tekstil endüstrisi atıksuyunda elektro-fenton uygulaması gerçekleştirilmiştir. Bu atıksuda en iyi renk giderimini sağlamak amacıyla sistemde elektriksel akım uygulaması ile farklı pH seviyelerinde, değişen  $Fe^{+2}$  konsantrasyonlarında ve farklı  $H_2O_2$  dozajlarında deneyler gerçekleştirilmiştir.

## Elektro-Fenton sisteminde gerçekleşen reaksiyonlar

### Katotta gerçekleşen reaksiyonlar



Yine katotta meydana gelebilen iki tepkime ise şöyledir:

- Katot-çözelti ara yüzeyinde  $H_2O_2$  birikimine bağlı olarak  $H_2O_2$ 'in suya indirgenmesi



- Hidrojen gazı çıkışı



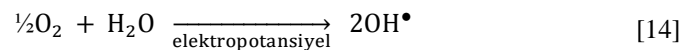
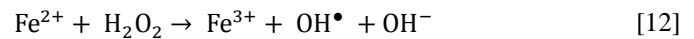
### Anotta gerçekleşen reaksiyonlar

Anot bölümünde sadece suyun oksidasyonu sonucu moleküler oksijen üretilir.



Sistemde kullanılan oksijenin %75'i bu reaksiyon sonucu oluşan oksijenden sağlanır.

### $OH^{\bullet}$ Radikalinin Oluşumuna İlişkin Reaksiyonlar



Elektro-Fenton prosesine ait kimyasal net bağıntı bu dört reaksiyonun toplanmasıyla elde edilir (Oturan, 1995). Yine bu yöntemde  $OH^{\bullet}$  radikali, kullanılan elektrik akımı ile doğru orantılı olarak kontrollü bir şekilde üretilebilmektedir. Bu özelliğe dayanarak diğer maddelerin tepkimelerinin  $OH^{\bullet}$

derişimi ile ilişkilendirilmesi, kullanılan elektrik akımının miktarı ile kolaylıkla mümkün olabilmektedir. Bu yöntemdeki tüm işlemler aynı anda ve bir kısmı çevrimsel olarak üretilirken, reaktöre kimyasal madde olarak sadece bir miktar  $Fe^{+2}$  ve  $O_2$  gazı verilir. İşlenen atık suyun alıcı ortama verilmeden asitliğinin nötralize edilmesi, çok az bir  $H_2O_2$  fazlalığının bulunması halinde bunun bozundurulması ve yine çok az (katalitik) miktarda kullanılan demir iyonlarının tekrar sisteme döndürülmesi için gerekli işlem koşullarının ve sistem dizaynının rahatlıkla oluşturulabileceği görülmüştür (Şekil 1). Bu durumda diğer arıtma sistemlerinin parçalayamadığı kimyasalların bile alıcı sucul ortama girmesi durumu düşünüldüğünde, bu yöntemin gerçekten tam anlamıyla çevre dostu bir teknoloji doğurduğu sonucuna varılmıştır (Oturan ve Pinson, 1995).

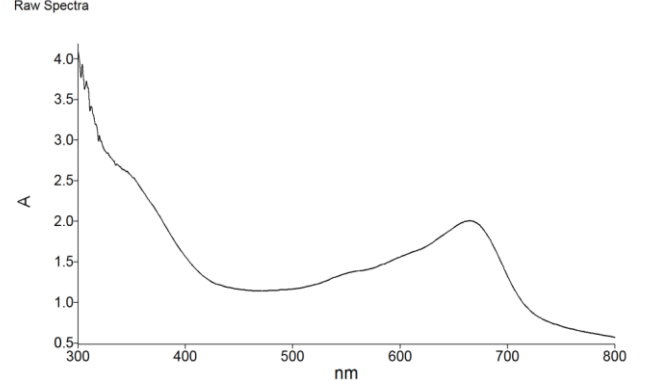
## 2. Materyal ve Metot

Sadece indigo boyar maddenin kullanıldığı kot boyama endüstrisinden alınan suların bazı fizikokimyasal özellikleri Tablo 1'deki gibidir. Numuneler analiz süresine kadar düşük sıcaklıkta ( $+4^{\circ}C$ ) ve karanlık ortamda muhafaza edilmiştir. İletkenlik değeri WTF-LF 330, pH değerleri ise Orion-SA 420A cihazlarıyla ölçülmüştür. Atıksudaki KOİ konsantrasyonları Standart Metotlara göre analiz edilmiştir (APHA, 1995).

Atıksuyun ve arıtılmış numunelerin renk ölçümü absorpsiyon yöntemiyle UV/VIS (Perkin Elmer Lambda 25) Spektrofotometresi ile belirlenmiştir. Spektrofotometrede 300–800 nm aralığında tarama yapılmış ve en uygun absorpsiyon değerinin 665 nm olduğu tespit edilmiştir (Şekil 1). 20 ml hacmindeki numuneler filtrelenmiş olarak 4 ml lik spektrofotometre küvetlerine doldurularak 665 nm dalga boyunda absorpsiyon değerleri okunmuştur. Renk giderim verimi Denklem 1'de gösterildiği şekilde hesaplanmıştır.

$$\text{Renk giderim verimi} = \frac{(1 - A_t/A_0) * 100}{\text{Denklem 1}}$$

$A_0$ : reaksiyondan önceki absorpsiyon değerini,  $A_t$  ise reaksiyon süresince belirlenen absorpsiyon değerini göstermektedir.



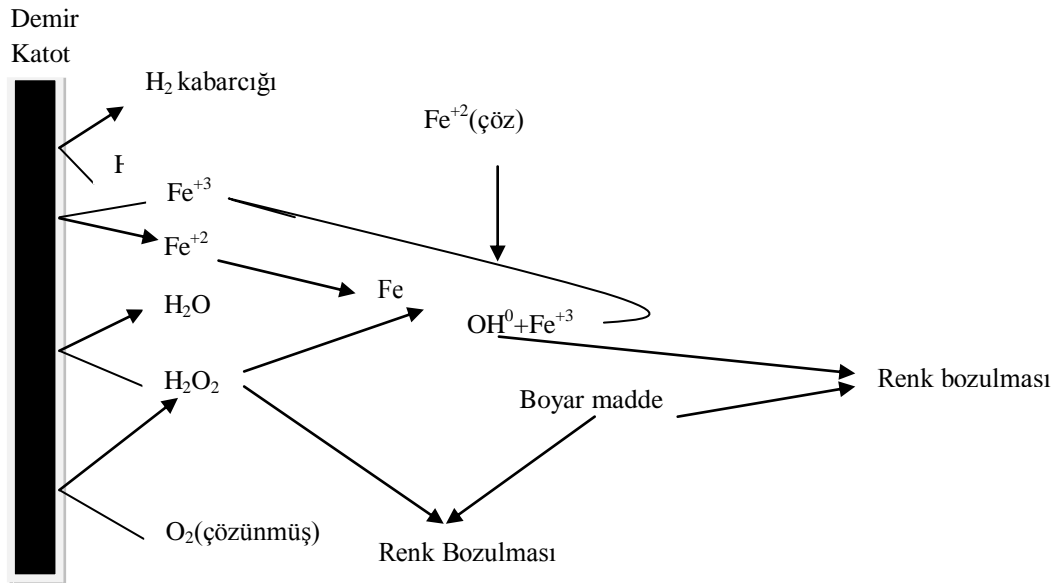
Şekil 1. Numunenin farklı dalga boylarında belirlenen absorpsiyon değerleri.

### Parametre

KOİ, mg/L	980–1860
TOK, mg/L	580–735
Renk, absorpsiyon	1.778–1.921
pH	9,9–12,28
İletkenlik, mS/cm	0,78 –0,82

Tablo 1. Atıksuyun bazı fizikokimyasal özellikleri.

Şekil 1. Elektro-Fenton sisteminde gerçekleşen reaksiyonlar.

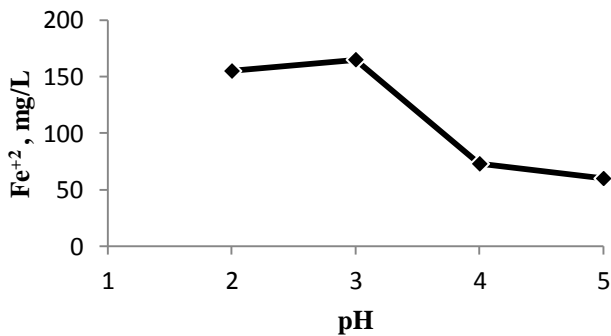


### 2.1. Elektro-Fenton Sistemi

Elektro-Fenton reaksiyonları için 9 cm x 9 cm x 12 cm ebatlarında cam bir reaktör kullanılmıştır. Çözelti derinliği 9,3 cm olacak şekilde toplam hacim 750 ml'e ayarlanarak deneysel çalışmalar sürdürülmüştür. Çalışmalarda boyutları 4 cm x 8 cm ve et kalınlığı 1 mm olan 4 adet demir elektrot kullanılmıştır. Elektrotlar arasındaki mesafe 7,5 mm olacak şekilde ayarlanmıştır. Elektrotlar iki anot ve iki katottan ibaret olup, çapraz şekilde bağlanmıştır. Her deneysel çalışmadan sonra elektrik akımını uygulanması sonucu elektrotta çözünmüş demir konsantrasyonu atomik absorpsiyon spektrofotometresi (UNICAM 929) ile analiz edilmiştir. Deney serilerinde uygulanan akım doğru akım güç kaynağı (Konstar KS803) ile 1,98–2,0 amper aralığında tutulmuştur. Çıkış suları 0,45 µm gözenek genişliğindeki filtre kâğıdından süzülükten sonra renk tayini yapılmıştır.

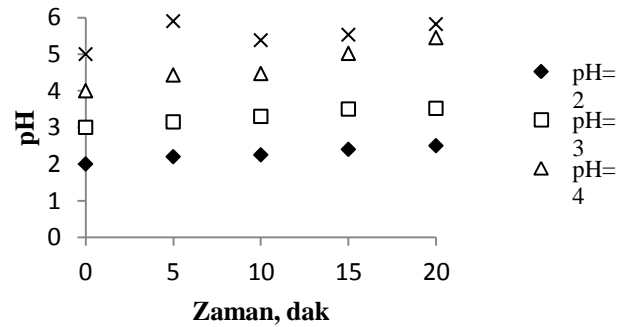
### 3. Bulgular

Boyar madde içeren renkli atıksulardan renk giderimi için uygulanan elektro-Fenton çalışmalarında sistem performansını etkileyen önemli parametreler yer almaktadır. Bu parametreler; ortamın pH'ı, reaksiyon süresi,  $Fe^{+2}$  ve  $H_2O_2$  konsantrasyon değerleri, kullanılan elektrot tipleri, ortamın sıcaklığı ve boyar madde konsantrasyonudur. Elektro-Fenton ile renk giderimi üzerine yapılan çalışmalarda ortamın pH'ı 2-5 değerlerinde olduğu zaman en iyi renk giderim verimleri elde edilmiştir (Ghoneim ve diğ., 2011; Lei ve diğ., 2010). Bu nedenle önceki araştırmalar dikkate alınarak bu çalışmadaki başlangıç pH seviyesi 2 ile 5 arasındaki değerlerde tutularak deney serileri yürütülmüştür. Yaklaşık 2 Amperlik elektriksel akımda elektrot materyali olan demir, çözünmüş ve farklı başlangıç pH değerlerinde çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyon değerleri belirlenmiştir. Şekil 2'de gösterildiği gibi, daha düşük pH değerlerinde çözünmüş  $Fe^{+2}$  miktarı artmıştır. pH 2, 3, 4 ve 5 değerlerinde  $Fe^{+2}$  sırasıyla 155, 165, 73 ve 60 mg/L olarak bulunmuştur. Fenton ve elektro-Fenton sistemlerinde ortamdaki  $Fe^{+2}$  iyonlarının etkisi önemlidir. Çünkü  $OH^\bullet$  radikallerini oluşturmak için  $H_2O_2$ 'i katalitik olarak parçalar (Reaksiyon 5). Buna ilaveten  $Fe^{+2}$  iyonlarının yokluğunda  $OH^\bullet$  radikalleri oluşmadığından sadece  $H_2O_2$ 'nin oksitleyici gücü büyük boyar moleküllerini parçalamak için yeterli olmaz (Lei ve diğ., 2010). Tam tersi olarak reaksiyon ortamında çok yüksek  $Fe^{+2}$  iyonları da  $OH^\bullet$  radikallerini hızla tüketebilir. Bu durum da atıksuda daha düşük renk giderimine neden olur.



Şekil 2. Elektro-Fenton sisteminde pH'a bağlı olarak elektrotlardan çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyonu.

Farklı pH değerleri için elde edilen çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyonlarına bağlı olarak ortamın pH şartları ve  $H_2O_2$  ilavesine göre atıksudaki indigo boyar maddesinin giderimi bir sonraki deney serilerinde araştırılmıştır. Şekil 2'de gösterildiği gibi başlangıç pH değerleri 2-5 aralıklarında yapılan çalışmalarda deney süresince pH değerlerinde az da olsa değişimler gözlenmiştir. Bu durum anot ve katotta oluşan redoks reaksiyonlarından dolayıdır. Tüm başlangıç pH değerleri deney sonunda artmıştır.



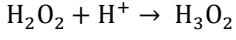
Şekil 2. Elektro-Fenton sisteminde zamana bağlı olarak pH değişimi.

Elektro-Fenton sistemlerde renk giderim verimini etkileyen başlıca parametrelerden biri ortamın pH değeridir. Bu nedenle farklı başlangıç pH aralıklarında deneyler yürütülmüştür. pH:2-5 aralığında ve 116 mM  $H_2O_2$  ilavesiyle yapılan deney serilerinde elde edilen renk giderim verimi Şekil 3'de gösterilmiştir. Renk giderim verimleri pH 2 ve 3 hariç hemen hemen tüm pH değerlerinde reaksiyon süresince arttığı gözlenmiştir ve 20.dak'da bu oran yaklaşık %100'e ulaştığından reaksiyon süresi tüm deney serilerinde 20 dak. olarak belirlenmiştir. Şekil 3'te gösterildiği gibi en iyi renk giderimi pH:4 olan reaksiyon ortamında elde edilmiştir. Aynı şekilde pH:5 de yürütülen deney serisi için renk gideriminde iyi sonuçlar elde edilmiştir. 20. dakika sonunda elde edilen renk giderim verimleri pH: 4 için %100 iken pH: 5 için bu oran %92 olarak bulunmuştur. pH: 2 ve 3 gibi daha düşük başlangıç pH değerlerinde tespit edilen renk giderim verimi daha düşüktü. pH: 2 için bu oran %31 ile %75 arasında iken pH: 3 için %27 ile %73 arasında idi. Sistemde 3 ün altındaki pH değerlerinde oluşan aşırı asidik şartlardan dolayı  $Fe^{+2}$ 'nin çözünürlüğü atıksudadır. Bu durumda renk giderim veriminin düşüğü sanılmaktadır. pH: 5'in üzerindeki değerlerde  $H_2O_2$  parçalanması ve buna bağlı olarak oksidasyon gücünü kaybetmesinden dolayı oksidasyon verimi düşmektedir.  $H_2O_2$  bazik bir çözeltide stabil değildir ve nötrden yüksek pH değerlerine doğru oksijen ve suya hızlıca kendi kendine parçalanır. Aynı zamanda pH 5'in üzerinde olduğu zaman  $Fe^{+3}$  hidroksitlerin oluşumundan dolayı  $Fe^{+2}$ 'nin katalitik aktivitesinin azalmasından dolayı  $OH^\bullet$  radikallerinin oluşumu engellenir. Bu çalışmada pH:5'in üzerinde de denemeler yapılmış ve elektrotlarda çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyon değerleri çok düşük olduğundan bu değerler dikkate alınmamıştır. Başka bir yönden ise pH 2'nin altında olduğu zaman  $H_2O_2$  stabil olur ve Reaksiyon 15' de gösterildiği gibi oluşan  $H_3O_2$

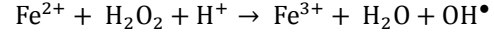


(peroxonium iyonları)  $H_2O_2$ 'nin elektrofilik stabilitesini artırarak  $Fe^{+2}$  iyonları ile reaktivitesini giderek azaltır (Rosales ve diğ., 2009; Lei ve diğ., 2010; Ghoneim ve diğ., 2011). Elde edilen bu sonuçlar literatürdeki sonuçlara paraleldir.

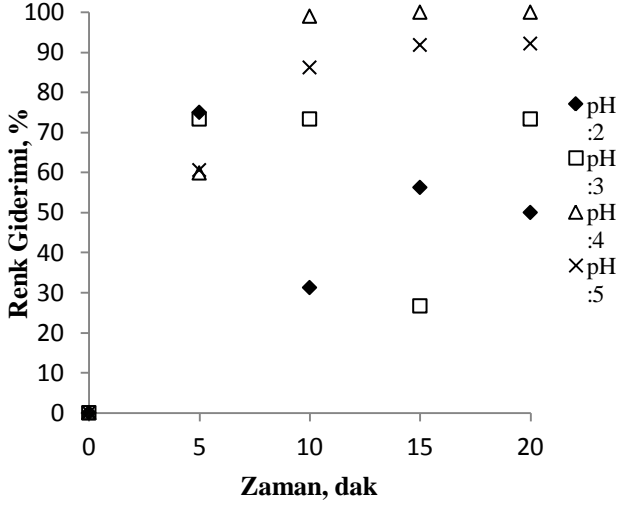
sudan renk giderim verimleri yüksek bulunmuştur. Örneğin, Gonzalez ve diğ. (2010); asit yeşil 36 boyar maddesi için %98, Ghoneim ve diğ. (2011); Sunset Sarı FCF azo boyar maddesi için yaklaşık %100 ve El Desoky ve diğ. (2010); Ponceau S azo boyar maddesi için bu oranı %98 olarak bulmuşlardır.



[15]



[16]

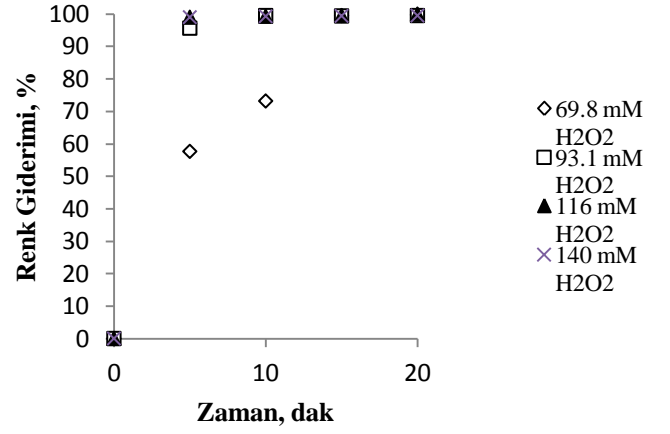


Şekil 3. Elektro-Fenton sisteminde pH'a bağlı olarak renk giderimi.

Bu çalışmada indigo boyar maddesini içeren atıksuda renk giderimi için araştırılan optimum pH değeri 4 olarak belirlenmiştir. pH 2 ve 3 değerlerinde reaksiyon süresine bağlı olarak, renk gideriminde salınımlar görülmüştür. Bu durum şük pH şartlarında elektrottaki demirin zamanla aşırı miktarlarda çözünmesi ve reaksiyonlar sonucunda oluşan OH iyonuna pararel olarak sistem pH değerinin kısmen yükselmesiyle  $H_2O_2$  stabilizasyonunun bozulurak reaksiyonların tekrar gerçekleşmesiyle açıklanabilir. Yine de ilave edilen  $H_2O_2$  molar konsantrasyon değerleri optimize edilerek,  $H_2O_2$ 'nin  $Fe^{+2}$  molar konsantrasyon oranına göre optimum pH değeri tespit edilmelidir. Bu amaçla 69,8, 93,1, 116 ve 140 mM gibi dört farklı konsantrasyon değerlerinde ve reaksiyon ortamının başlangıç pH değeri 4 olacak şekilde çalışmalar yürütülmüştür.

Şekil 4'de gösterildiği gibi reaksiyon süresine bağlı olarak ilave edilen  $H_2O_2$  konsantrasyonuna göre renk giderimi araştırılmıştır. 69,8 mM  $H_2O_2$  'den daha yüksek konsantrasyonlarda renk giderim verimi yaklaşık %100 olarak bulunmuştur. Bu nedenle 116 ve 140 mM gibi daha yüksek  $H_2O_2$  ilavesinin gerekli olmadığı düşünülerek 93,1 mM değeri optimum  $H_2O_2$  dozajı olarak belirlenmiştir.

$H_2O_2$ , organik kirlenmeleri  $CO_2$ 'e oksitleyen popüler seçici olmayan oksitleyici bir ajandır (Gonzalez ve diğ., 2010). Aynı zamanda  $H_2O_2$ 'nin oksitleyici gücü orta asidik bir çözeltide  $Fe^{+2}$ 'nin iyonlarının mevcudiyetinde artar. Reaksiyon 16'da gösterildiği gibi  $H_2O_2$ 'den oluşan  $OH^{\bullet}$  radikalleri organik kirlenmelerle reaksiyona girer ve boyar maddeleri oksitleyerek atıksuda renk giderimine neden olur (El Desoky, 2010; Huang ve diğ., 2008). Önceki yapılan çalışmalarda da elektro-Fenton sistemi kullanılarak farklı boyar maddeleri içeren sentetik



Şekil 4. Elektro-fenton sisteminde  $H_2O_2$  konsantrasyonuna bağlı olarak renk giderimi.

pH: 4 için gerçekleştirilen çalışmada çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyonu 73 mg/L olarak belirlenmişti (Şekil 1). Şekil 4'de gösterildiği gibi renk gideriminde 93,1 mM  $H_2O_2$  ilavesi yeterli düşünülerek  $Fe^{+2}$ :  $H_2O_2$  molar oranı 1: 72 olarak hesaplanmıştır.

#### 4. Sonuçlar

Elektro-Fenton prosesi ile indigo boyar maddesini içeren tekstil atıksuyunda yüksek renk giderim verimlerine ulaşmak için farklı pH şartlarında, farklı  $H_2O_2$  dozajlarında ve elektrotlarda çözünmüş farklı  $Fe^{+2}$  miktarlarında çalışılmıştır. Farklı başlangıç pH seviyelerinde çalışılan deney serilerinde pH: 4 için elde edilen renk giderimi %100 olarak bulunmuştur. Ayrıca 93,1 mM  $H_2O_2$  dozajının indigo boyar maddesinin gideriminde yeterli olduğu tespit edilmiştir. pH:4 'de çözünmüş  $Fe^{+2}$  konsantrasyonuna göre  $Fe^{+2}$ :  $H_2O_2$  molar oranı 1:73 olarak belirlenmiştir.

#### Kaynaklar

1. Anotai, J., et al., Kinetics of aniline degradation by Fenton and electro-Fenton processes, Water Res. 40 (9), 1841–1847, 2006.
2. APHA, Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, American Public Health Association, Washington DC, 1995.
3. Brillas, E., et al., Aniline mineralization by AOP's: anodic oxidation, photocatalysis, electro-Fenton and

- photoelectro-Fenton processes. *Appl. Catal. B: Environ.* 16 (1), 31–42, 1998.
4. Brillas, E., Casado, J., Aniline degradation by Electro-Fenton and peroxicoagulation processes using a flow reactor for wastewater treatment, *Chemosphere* 47, 241–248, 2002.
  5. Brillas, E., et al., Electro-Fenton process and related electrochemical technologies based on Fenton's reaction chemistry. *Chem. Rev.* 109 (12), 6570–6631, 2009.
  6. Chung, K.T., et al., Mutagenicity testing of some commonly used dyes, *Appl. Environ. Microbiol.* 42, 641–648, 1981.
  7. Correia, V.M., et al., Characterization of textile wastewaters-a review, *Environ. Technol.* 15, 917–929, 1994.
  8. Do, J.S., Chen, C.P., In situ oxidative degradation of formaldehyde with electrogenerated hydrogen peroxide. *J. Electrochem. Soc.* 140 (6), 1632–1637, 1993.
  9. Edgar J., et al., Mineralization of Acid Yellow 36 azo dye by electro-Fenton and solar photoelectro-Fenton processes with a boron-doped diamond anode, *Chemosphere* 82, 495–501, 2011.
  10. El-Desoky, H.S., et al., Decolorization and degradation of Ponceau S azo-dye in aqueous solutions by the electrochemical advanced Fenton oxidation, *Desalination* 264, 143-150, 2010.
  11. Forgacs, E., et al., Decolorization of wastewaters: a review, *Environ. Int.* 30 953–971, 2004.
  12. Fockedey, E., Van Lierde, A., Coupling of anodic and cathodic reactions for phenol electro-oxidation using three-dimensional electrodes, *Water Res.* 36, 4169–4175, 2002.
  13. Garrote, J.I., et al., Treatment of tannery effluent by a two step coagulation/flocculation processe, *Water Res.* 29 2605–2608, 1995.
  14. Ghoneim, M., et al., Electro-Fenton oxidation of Sunset Yellow FCF azo-dye in aqueous solutions, *Desalination*, 274, 22-30, 2011.
  15. González, K. C., et al., Determination of optimum operating parameters for Acid Yellow 36 decolorization by electro-Fenton process using BDD cathode, *Chemical Engineering Journal* 160, 199–206, 2010.
  16. Haug, W., et al., Mineralization of the sulfonated azo dye Mordant Yellow 3 by a 6-aminonaphthalene- 2-sulfonate-degrading bacterial consortium, *Appl. Environ. Microbiol.* 57, 3144–3149, 1991.
  17. Huang, Y-H., et al., Comparative study of oxidation of dye-Reactive Black B by different advanced oxidation processes: Fenton, electro-fenton and photo-fenton, *J.Hazard. Mater.* 154, 655-662, 2008.
  18. Kudlich, M., Simultaneous anaerobic and aerobic degradation of the sulfonated azo dye Mordant Yellow 3 by immobilized cells from a naphthalenesulfonate-degrading mixed culture, *Appl.Microbiol. Biotechnol.* 46, 597–603, 1996.
  19. Lahkimi, A. et al., Removal of textile dyes from water by the electro-Fenton process, *Environ. Chem. Lett.* 5, 35–39, 2007.
  20. Lei, H., et al., Electro-Fenton degradation of cationic red X-GRL using an activated carbon fiber cathode, *Process Safety and Environmental Protection* 88, 431–438, 2010.
  21. Martínez-Huitle, C.A., Brillas, E., Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods: a general review. *Appl. Catal. B: Environ.* 87 (3–4), 105–145, 2009.
  22. Oturan, M.A., et al., Hydroxylation of aromatic drugs by the electro-Fenton method. Formation and identification of the metabolites of Riluzole. *New J. Chem.* 23 (8), 793–794, 2009.
  23. Oturan, M.A., Pinson, J., Hydroxylation by Electrochemically Generated Hydroxyl Radicals Mono and Polyhydroxylation of Benzoic Acid: Products And Isomers' distribution. *J. Phys. Chem.*, 99: 13948-13954, 1995.
  24. Pinheiro, H.M., et al., Aromatic amines from azo dye reduction: status review with emphasis on direct UV spectrophotometric detection in textile industry wastewaters, *Dyes Pigment* 61, 121–139, 2004.
  25. Rosales, E., et al., Electro-fenton decoloration of dyes in a continuous reactor: A promising technology in colored wastewater treatment, *Chemical Eng. J.*, 155, 62-67, 2009.
  26. Solmaz, S.K.A., et al., Colour and COD removal from textile effluent by coagulation and advanced oxidation processes, *Soc. Dyers Colorists Color. Technol.* 122, 102–109, 2006.
  27. Yuan, S., et al., Treatment of nitrophenols by cathode reduction and electro-Fenton methods. *J. Hazard. Mater.* 137 (1), 573–580, 2006.
  28. Zhou, M., et al., Electro-Fenton method for the removal of methyl red in an efficient electrochemical system, *Sep. Purif. Technol.* 57, 380–387, 2007.