

Nom et Prénom : ADDAR FATIMA ZAHRA

Date de soutenance : 24/02/2024

Directeur de Thèse : TAHAIKT Mustapha

Sujet de thèse:

Réduction des ions fluorures dans les eaux souterraines par nanofiltration : faisabilité, prédiction statistique et identification du mécanisme de transfert

Résumé :

La contamination des eaux souterraines par les ions fluorure constitue un problème mondial en constante augmentation, touchant même le Maroc et engendrant des risques pour la santé, notamment la fluorose dentaire, la fluorose squelettique, et potentiellement l'ostéosarcome. De plus, elle exerce un impact significatif sur les ressources en eau. Conformément aux directives de l'Organisation mondiale de la santé (OMS), la concentration admissible de fluorure dans l'eau potable est de 1,5 mg/L. Dans ce contexte, les objectifs essentiels de cette thèse sont triples. Tout d'abord, elle vise à évaluer la faisabilité de la nanofiltration (NF) dans la réduction des ions fluorure en utilisant différentes membranes couvrant l'intégralité de la gamme de seuil de nanofiltration (TR60, NF270 et NF90), tout en prenant en compte une plage de concentrations en fluorure dans l'eau souterraine variant de 5 à 20 mg/L. Ensuite, elle examine la capacité prédictive de deux méthodes statistiques, à savoir la Réponse de Surface (RSM) et les Réseaux de Neurones Artificiels (ANN), pour anticiper le taux de rejet des ions fluorure des membranes testées. Enfin, afin de mieux comprendre le mécanisme de transfert des ions fluorure à travers ces membranes de NF, différents modèles tels que le modèle de Kedem et Katchalsky (KK), le modèle de Spiegler-Kedem (SK), le modèle de Nernst-Planck couplé à la théorie des films (NP-FT), et le modèle de pore d'encombrement stérique (SHP), sont utilisés. Les résultats révèlent que la membrane NF90 est la plus efficace pour traiter les concentrations élevées de fluorures, bien que l'eau produite soit fortement déminéralisée, nécessitant ainsi une étape ultérieure de reminéralisation. En revanche, l'eau obtenue par les deux autres membranes présente une qualité satisfaisante en termes de contenu minéral. Toutefois, les niveaux de fluorures dépassent les normes admises lorsque la concentration initiale dépasse 7 ppm. Les deux modèles statistiques (RSM et ANN) se sont révélés fiables pour prédire le taux de rejet d'ions fluorure, avec des coefficients de détermination dépassant 0,83 pour RSM et atteignant 0,99 pour ANN. Le modèle ANN a démontré une précision supérieure par rapport au modèle RSM. Néanmoins, le modèle RSM présente l'avantage de générer des équations de régression, nous permettant ainsi d'anticiper les résultats et de mettre en évidence de manière explicite l'influence des facteurs expérimentaux et de leurs interactions. L'application de quatre modèles mathématiques (KK, SK, NP-TF et SHP) a révélé la contribution simultanée de la diffusion et de la convection dans le mécanisme de transfert des ions fluorure dans les membranes TR60 et NF270, la diffusion étant prédominante. En revanche, pour les membranes NF90, les modèles confirment la similitude avec le mécanisme de transfert observé dans les membranes d'osmose inverse.

Mots clés: Nanofiltration ; Élimination des fluorures ; RSM ; ANN ; Optimisation ; Modélisation.

Abstract:

The contamination of groundwater by fluoride ions constitutes a global issue on the rise, extending even to Morocco and posing health risks, including dental fluorosis, skeletal fluorosis, and potentially osteosarcoma. Additionally, it exerts a significant impact on water resources. In accordance with the guidelines of the World Health Organization (WHO), the permissible concentration of fluoride in drinking water is 1.5 mg/L. In this context, the fundamental objectives of this thesis are threefold. Firstly, it aims to assess the feasibility of nanofiltration (NF) in reducing fluoride ions using various membranes covering the entire range of nanofiltration thresholds (TR60, NF270, and NF90), while considering a range of fluoride concentrations in groundwater varying from 5 to 20 mg/L. Subsequently, it examines the predictive capacity of two statistical methods, namely Response Surface Methodology (RSM) and Artificial Neural Networks (ANN), to anticipate the fluoride ion rejection rate of the tested membranes. Finally, to gain a better understanding of the fluoride ion transfer mechanism across these NF membranes, various models such as the Kedem and Katchalsky model (KK), the Spiegler-Kedem model (SK), the Nernst-Planck model coupled with the film theory (NP-FT), and the steric hindrance pore model (SHP) are employed. The results reveal that the NF90 membrane is the most effective in treating elevated fluoride concentrations, although the produced water is heavily demineralized, necessitating a subsequent remineralization step. Conversely, the water obtained by the other two membranes exhibits satisfactory mineral content. However, fluoride levels exceed accepted standards when the initial concentration surpasses 7 ppm. Both statistical models (RSM and ANN) proved reliable in predicting the fluoride ion rejection rate, with determination coefficients exceeding 0.83 for RSM and reaching 0.99 for ANN. The ANN model demonstrated superior accuracy compared to the RSM model. Nevertheless, the RSM model has the advantage of generating regression equations, allowing us to anticipate results and explicitly highlight the influence of experimental factors and their interactions. The application of four mathematical models (KK, SK, NP-TF, and SHP) revealed the simultaneous contribution of diffusion and convection in the fluoride ion transfer mechanism in TR60 and NF270 membranes, with diffusion predominating. In contrast, for NF90 membranes, the models confirm a similarity with the transfer mechanism observed in reverse osmosis membranes.

Keywords: Nanofiltration; Fluoride Removal; RSM; ANN; Optimization; Modeling.