

Centre Eau Terre et Environnement

**TECHNIQUES D'INTELLIGENCE ARTIFICIELLE DANS LA
MODÉLISATION DU PROCESSUS ÉLECTROCHIMIQUE POUR LE
TRAITEMENT DES EAUX RÉSIDUAIRES**

Par

Majid Gholami Shirkoohi

Thèse présentée pour l'obtention du grade de
Philosophiae Doctor (Ph.D.)
en sciences de l'eau

Jury d'évaluation

Président du jury et
examinateur interne

Erwan Gloaguen
INRS-ETE

Examinateur externe

Olivier Patrick Lefebvre
National University of Singapore

Examinateur externe

Nicolás Peleato
University of British Columbia
Okanagan

Directeur de recherche

Patrick Drogui
INRS-ETE

Codirecteur de recherche

Peter Vanrolleghem
Université Laval

ABSTRACT

Electrochemical technologies have been known and utilized for the treatment of wastewater containing recalcitrant organic pollutants because conventional treatments such as physico-chemical or biological methods are not able to completely degrade them. However, to make these technologies competitive with the conventional technologies that are in use today (e.g., coagulation or advanced oxidation processes), proper design of the processes and operating conditions through process modelling and optimization are necessary. Electrochemical processes are complicated nonlinear processes, making it difficult to describe the process behaviour using phenomenological or conventional empirical modelling methodologies. In this work, artificial intelligence techniques, including artificial neural networks (ANNs), adaptive neuro-fuzzy inference systems (ANFIS), support vector regression (SVR), genetic algorithms (GA), and particle swarm optimization (PSO) have been used as alternatives for modelling and optimization of the electrochemical processes.

In the first part of this thesis, the development of ANN models and multi-objective optimization based on a genetic algorithm was carried out for active chlorine production using the electrolysis process. In order to diagnose and prevent the over-fitting problem during the learning process of the ANN models, learning curves and the regularization factor were utilized. The results showed that the trained ANN models were able to successfully predict the active chlorine production and energy consumption of the process ($R^2=0.979$ and $MSE=3.826$ for active chlorine production and $R^2=0.985$ and $MSE=6.952$ for energy consumption). Multi-objective optimization for maximizing active chlorine production and minimizing energy consumption was carried out by a non-dominated sorting genetic algorithm (NSGA-II) using the best derived ANN models. The Pareto front obtained led to multiple non-dominated optimal points, which resulted in insights regarding the optimal operating conditions for the process.

In the second part of this study, the ANFIS modelling approach was applied as another AI technique and compared with the response surface methodology (RSM) for modelling and optimization of psychoactive pharmaceutical caffeine removal by electrochemical oxidation. Results showed that the anode type, followed by the electrolysis time are the

most important variables affecting caffeine degradation. While both RSM and ANFIS models were able to successfully predict the electrochemical process behaviour, ANFIS models performed slightly better ($R^2=0.993$, RMSE=2.694, MAPE=6.582 for caffeine removal efficiency, and $R^2=0.976$, RMSE=0.261, MAPE=9.221 for energy consumption). The optimal conditions were applied to the treatment of real municipal wastewater effluent with caffeine removal efficiency varying between $78.0\pm4.3\%$ and $92.5\pm1.0\%$ for different initial caffeine concentrations, showing the effectiveness of the process. Furthermore, it was demonstrated that toxicity generated by the electrooxidation process could be reduced by extending the electrolysis time or could be completely eliminated using granular activated carbon.

The third part of this thesis dealt with hyperparameter optimization of AI models by integrating metaheuristic algorithms such as GA and PSO to predict the removal efficiency of phosphate from wastewaters using the electrocoagulation process. To tackle the relatively low number of sample data available from an experimental electrochemical process and increase the reliability of data-driven models, the proposed hybrid models were built on repeated random sub-sampling validation (10 data subsets) instead of a single split approach. The performance comparison of models showed that the effectiveness of the data-driven models depends on how the data is distributed over the training, validation, and test sets. The ANFIS and hybrid SVR models were more sensitive than the hybrid ANN models to the distribution of data points. The hybrid ANN models showed greater accuracy than the ANFIS and hybrid SVR models when compared using different performance criteria. The hybrid ANN models showed less dispersed performance for the different test sub-datasets. Remarkably, PSO-ANN models illustrated exceptional generalization performance for the 10 data subsets examined.

Efforts made in each part of this thesis provide insight into the application and adaptation of AI techniques for modelling and optimization of electrochemical processes for water treatment. It was shown that AI models could be successfully applied to electrochemical processes despite the relatively low number of data points available, but the reliability and robustness of these models should be taken into account.

RÉSUMÉ

Les technologies électrochimiques sont connues et utilisées pour le traitement des eaux usées contenant des polluants organiques récalcitrants car les traitements conventionnels tels que les méthodes physico-chimiques ou biologiques ne sont pas capables de les dégrader complètement. Cependant, pour rendre ces technologies compétitives par rapport aux technologies conventionnelles utilisées aujourd'hui (par exemple, la coagulation ou les procédés d'oxydation avancée), il est nécessaire de concevoir correctement les procédés et les conditions d'exploitation par le biais de la modélisation et de l'optimisation des procédés. Les processus électrochimiques sont des processus non linéaires compliqués, ce qui rend difficile la description du comportement du processus à l'aide de méthodologies de modélisation phénoménologiques ou empiriques conventionnelles. Dans ce travail, les techniques d'intelligence artificielle, incluant les réseaux de neurones artificiels (RNA), les systèmes à inférences floues à réseaux adaptatifs (SIFRA), la régression des vecteurs de support (RVS), les algorithmes génétiques (AG) et l'optimisation par essaims particulaires (OEP) ont été utilisées comme alternatives pour la modélisation et l'optimisation des procédés électrochimiques.

Dans la première partie de cette thèse, le développement des modèles RNA et l'optimisation multi-objectifs basée sur un algorithme génétique ont été réalisés pour la production de chlore actif en utilisant le procédé d'électrolyse. Afin de diagnostiquer et de prévenir le problème de sur-ajustement pendant le processus d'apprentissage des modèles RNA, des courbes d'apprentissage et le facteur de régularisation ont été utilisés. Les résultats ont montré que les modèles RNA formés étaient capables de prédire avec succès la production de chlore actif et la consommation d'énergie du processus ($R^2=0,979$ et $MSE=3,826$ pour la production de chlore actif et $R^2=0,985$ et $MSE=6,952$ pour la consommation d'énergie). L'optimisation multi-objectifs pour maximiser la production de chlore actif et minimiser la consommation d'énergie a été réalisée par un algorithme génétique de tri non dominé (NSGA-II) en utilisant les meilleurs modèles RNA dérivés. Le front de Pareto obtenu a conduit à de multiples points optimaux non dominés, qui donnent des indications sur les conditions de fonctionnement optimales du processus.

Dans la deuxième partie de cette étude, l'approche de modélisation SIFRA, une autre technique d'intelligence artificielle, a été appliquée et comparée à la méthodologie de surfaces de réponses (MSR) pour modéliser et optimiser le processus électrochimique de dégradation de la caféine. La caféine est un produit pharmaceutique psychoactif souvent présent dans les eaux résiduaires. Les résultats ont montré que le type d'anode, suivi du temps d'électrolyse sont les variables les plus importantes affectant la dégradation de la caféine. Les modèles MSR et SIFRA ont permis de prédire avec succès le comportement du processus électrochimique, mais les modèles SIFRA sont légèrement plus performants ($R^2=0,993$, RMSE=2,694, MAPE=6,582 pour l'efficacité de dégradation de la caféine, et $R^2=0,976$, RMSE=0,261, MAPE=9,221 pour la consommation d'énergie). Les conditions optimales ont été appliquées sur des effluents d'eaux usées municipales réelles, dans lesquelles l'efficacité de dégradation de la caféine a varié entre $78,0\pm4,3\%$ et $92,5\pm1,0\%$ pour différentes concentrations initiales de caféine, ce qui montre l'efficacité du processus. La toxicité générée par le procédé d'électro-oxydation pouvait être réduite en prolongeant le temps d'électrolyse ou encore en utilisant du charbon actif en grains suite à l'application du traitement électrolytique.

La troisième partie de cette thèse traitait de l'optimisation des hyperparamètres des modèles d'IA en intégrant des algorithmes métaheuristiques tels que l'AG et l'OEP pour prédire l'efficacité de l'élimination du phosphate des eaux usées en utilisant le processus d'électrocoagulation. Pour faire face au nombre relativement faible de données d'échantillons disponibles dans le processus électrochimique et augmenter la fiabilité des modèles basés sur les données, les modèles hybrides proposés ont été construits sur une 'repeated random sub-sampling validation' (10 sous-ensembles de données) au lieu d'une approche à répartition unique. La comparaison des performances des modèles a montré que l'efficacité des modèles pilotés par les données dépend de la manière dont les données sont distribuées parmi les ensembles de formation, de validation et des tests. Les modèles SIFRA et RVS hybrides étaient plus sensibles que les modèles RNA hybrides à la distribution des points de données. Les modèles RNA hybrides ont montré une plus grande précision que les modèles SIFRA et RVS hybrides auxquels ils ont été comparés en utilisant différents critères de performance. Ces modèles indiquent une performance moins dispersée pour les ensembles de tests pour les différents sous-

ensembles de données. De manière remarquable, les modèles OEP-RNA ont illustré une performance de généralisation exceptionnelle pour les 10 sous-ensembles de données examinées.

Les efforts réalisés dans chaque volet de cette thèse donnent un aperçu de l'application et de l'adaptation des techniques d'IA pour la modélisation et l'optimisation des processus électrochimiques pour le traitement de l'eau et des eaux usées. Il a été démontré que les modèles d'IA pouvaient être appliqués avec succès aux processus électrochimiques malgré le nombre relativement faible de points de données disponibles, mais la fiabilité et la robustesse de ces modèles doivent être prises en compte.