



**HAL**  
open science

# Photobioréacteur de type colonne à bulles confinée : hydrodynamique, transfert gaz-liquide, influence des bulles sur le cisaillement pariétal et performances de production

Abdallah Haydar

► **To cite this version:**

Abdallah Haydar. Photobioréacteur de type colonne à bulles confinée: hydrodynamique, transfert gaz-liquide, influence des bulles sur le cisaillement pariétal et performances de production. Génie des procédés. Nantes Université, 2023. Français. NNT : 2023NANU4075 . tel-04734764

**HAL Id: tel-04734764**

**<https://theses.hal.science/tel-04734764v1>**

Submitted on 14 Oct 2024

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THESE DE DOCTORAT DE

NANTES UNIVERSITÉ

ÉCOLE DOCTORALE N°602  
SCIENCES DE L'INGENIERIE ET DES SYSTEMES  
SPECIALITE : GENIE DES PROCEDES ET BIOPROCEDES

Par

**Abdallah HAYDAR**

## **Photobioréacteur de type colonne à bulles confinée : hydrodynamique, transfert gaz-liquide, influence des bulles sur le cisaillement pariétal et performances de production**

Thèse présentée et soutenue à « Saint-Nazaire », le « 14 décembre 2023 »  
Unité de recherche : Laboratoire GEPEA UMR-CNRS 6144

### **Rapporteurs avant soutenance**

Frédéric AUGIER Chargé de recherche HDR, IFP Energies Nouvelles, Solaize, France  
Victor POZZOBON Ingénieur de recherche HDR, CentraleSupélec, Pomacle, France

### **Composition du Jury**

<b>Président</b>	Anne-Marie BILLET	Professeur des universités, Toulouse INP, Toulouse, France
<b>Examineurs</b>	Anne-Marie BILLET Ridha MOSRATI	Professeur des universités, Toulouse INP, Toulouse, France Professeur des universités, Université de Caen Normandie, Caen, France
<b>Dir. de thèse Co-encadrant</b>	Caroline GENTRIC Walid BLEL	Professeur des universités, Nantes Université, Saint-Nazaire, France Maitre de Conférences, Nantes Université, Saint-Nazaire, France
<b>Invité</b>	Jack LEGRAND	Professeur émérite, Nantes Université, Saint-Nazaire, France



---

---

## Remerciements

---

---

*Tout d'abord, je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de cette thèse. Leur soutien, leur expertise et leur encouragement ont été essentiels à la réussite de ce projet de recherche.*

*Je tiens dans un premier temps à adresser mes remerciements à l'ANR (Agence Nationale de la Recherche) pour avoir financé cette thèse.*

*Je souhaite remercier Pr. Jérémy PRUVOST, le directeur du laboratoire GEPEA, de m'avoir permis de réaliser cette thèse au sein de GEPEA.*

*Mes vifs remerciements vont aux membres du jury, Dr. Frédéric AUGIER (IFP Energies Nouvelles), Dr. Victor POZZOBON (CentraleSupélec), Pr. Anne-Marie BILLET (Toulouse INP), Pr. Ridha MOSRATI (Université de Caen Normandie) et Pr. Jack LEGRAND (Nantes Université) pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette thèse en acceptant d'examiner mon travail et de l'enrichir par leurs propositions.*

*Avec beaucoup de respect, j'adresse de chaleureux remerciements à mes encadrants de thèse, Pr. Caroline GENTRIC et Dr. Walid BLEL. Ce travail n'aurait pu prendre cette forme sans vos précieux conseils et votre soutien. Merci pour toutes les questions et toutes les discussions que nous avons eues pour faire avancer ce travail et améliorer la qualité de cette thèse. Merci Caroline pour ta guidance, ta patience et ton dévouement tout au long de ces années. Tes conseils éclairés ont été une source d'inspiration et de motivation pour moi. Merci Walid pour ta disponibilité, ainsi que pour tes précieux conseils techniques qui ont grandement contribué à l'enrichissement de mon expérience dans le domaine du génie des procédés et des bioprocédés. Merci à vous deux pour la confiance que vous m'avez accordée et pour vos nombreuses, minutieuses et précieuses relectures.*

*Je remercie également les membres du CSI et nos partenaires du projet ALLIGATOR, Pr. Filipa LOPES (LGPM) et Pr. Véronique ROIG (IMFT) pour leur accompagnement et leurs remarques.*

*Je tiens à remercier ma stagiaire, Margaux MOUNIER, pour son aide et son travail dans la partie culture.*

*Je tiens particulièrement à exprimer ma profonde gratitude envers toute l'équipe du GEPEA, que ce soit du côté administratif (Carole, Laurence D., Marie-Pierre) ou du côté technique (Raphaëlle, Guillaume, Laurence L., Delphine, Franck et Manu), qui a contribué de près ou de loin à cette expérience. Je tiens à exprimer une reconnaissance particulière à Hélène pour avoir répondu à l'ensemble de mes besoins logiciels, pratiques et techniques, notamment pour l'installation de LabVIEW. Un grand merci à Laurette pour son accueil chaleureux tout au long de ces années.*

*Cette thèse n'aurait pas été possible sans le soutien de tous mes collègues du GEPEA. Merci à Sikandar, Ilia, Kashif, Hugo, Joris, Julien, Nesrine, Flora, Julie, Elodie, Jack, Fernando, Samy, Solène, Nourhène, Putty, Alexia, Hengsim, Shuli, Vladimir, Meriem et Charlène. Je vous remercie pour les moments inoubliables passés aussi bien au bureau, dans les laboratoires qu'à l'extérieur.*

*Mes sincères remerciements s'adressent aussi à l'ensemble de mes amis libanais que j'ai rencontrés à Saint-Nazaire : Habib, Alâa, Antoinette, Abdulkader, Rami, Carla, Christelle, Mira, Gaëlle, Wassim, Mohammad N., Ali E., Sara, Bachar et Khodor. Merci pour les agréables moments que nous avons passés ensemble. Un sincère remerciement à Jacqueline pour ses précieux conseils et son soutien constant.*

*Merci à mes parents, mes frères, mes sœurs, mes nièces et mes neveux pour être toujours là, disponibles tout le temps. Vos soutiens inconditionnels et votre compréhension ont été ma principale source de force tout au long de cette aventure, et je n'oublierai jamais.*

*Enfin, un immense merci à toi Khadija pour ta présence, ton soutien, ta patience, ta confiance, ta capacité à me supporter et à me faire rire aux moments opportuns. Rien n'aurait été possible sans ton encouragement et ton aide.*

*Merci à toutes et à tous !*

*Abdallah*

---

---

## *Liste des communications*

---

---

### ❖ Publication

Haydar, A., Blel, W., Marec, H. and Gentric, C. (2023), Gas Holdup and Flow Regimes in a Thin-Gap Bubble Column with Newtonian and Non-Newtonian Liquid Phase. Chem. Eng. Technol., 46: 1218-1227. <https://doi.org/10.1002/ceat.202200561>

### ❖ Conférences internationales

Haydar, A., Blel, W., Marec, H. and Gentric, C. “Experimental study of global hydrodynamics and gas-liquid mass transfer with Newtonian and non-Newtonian liquid phases in a thin gap bubble column”. 26<sup>th</sup> International Congress of Chemical and Process Engineering (CHISA 2022), Prague Czech Republic, 21-25 August 2022. (**Présentation orale**)

Haydar, A., Blel, W., Pruvost, J., Thobie, C., Almani, S., Gentric, C. “Application of thin-gap bubble columns at high volumetric productivity in microalgae cultivation: study of the influence of confinement on hydrodynamics and gas-liquid mass transfer”. MELiSSA Conference, Toulouse, 8-10 Novembre 2022. (**Poster**)

### ❖ Conférence nationale

Haydar, A., Blel, W., Marec, H. and Gentric, C. “Caractérisation de l’hydrodynamique et du transfert gaz-liquide d’un essaim de bulles en phase liquide Newtonienne et non Newtonienne dans une colonne à bulles confinée”. Société Française de Génie des Procédés SFGP, Toulouse, 7-10 Novembre 2022. (**Présentation orale**)

### ❖ Articles à soumettre

Haydar, A., Blel, W. and Gentric, C. (**en cours**), *Global and local characterization of hydrodynamics and gas-liquid mass transfer in a thin-gap bubble column photobioreactor.*

Haydar, A., Blel, W. and Gentric, C. (**en cours**), *Experimental analysis of wall shear phenomena in a thin-gap bubble column using Newtonian and non-Newtonian liquid phases.*

Haydar, A., Blel, W. and Gentric, C. (**en cours**), *Experimental assessment of maximum biomass productivities for the microalgae *Chlorella vulgaris* in an intensified photobioreactor.*

---

---

# *Table des matières*

---

---

<i>Remerciements</i> .....	<i>i</i>
<i>Liste des communications</i> .....	<i>iii</i>
<i>Table des matières</i> .....	<i>iv</i>
<i>Liste des figures</i> .....	<i>xi</i>
<i>Liste des tableaux</i> .....	<i>xvi</i>
<i>Introduction générale</i> .....	<i>1</i>
<i>Chapitre I : Revue bibliographique</i> .....	<i>7</i>
<b>PARTIE A : Microalgues et ingénierie des photobioréacteurs (PBRs)</b> .....	<b>7</b>
1. Généralités sur les microalgues .....	7
2. Réactions biochimiques des microalgues .....	7
2.1. La photosynthèse .....	7
2.2. La respiration.....	9
3. Valorisation des microorganismes photosynthétiques.....	9
4. Systèmes et modes de culture des microalgues .....	10
4.1. Systèmes de culture ouverts .....	10
4.2. Systèmes de culture fermés .....	11
4.2.1. Géométries des photobioréacteurs.....	12
4.2.2. Photobioréacteurs intensifiés.....	16
5. Comportement rhéologique des cultures de microalgues à haute concentration cellulaire.....	19
5.1. Effet de la concentration et de la souche de microalgues.....	19
5.2. Fluides modèles pour mimer le comportement rhéologique d'une haute concentration de microalgues .....	21
6. Production de biomasse en photobioréacteur .....	23
6.1. Paramètres influençant la croissance des microorganismes photosynthétiques dans un PBR	23
6.1.1. La lumière.....	23
6.1.2. Effet de la température .....	27
6.1.3. Effet du pH .....	27

6.1.4.	Concentration en oxygène dissous .....	28
6.1.5.	Milieu de culture.....	28
6.1.6.	Hydrodynamique dans les PBRs .....	30
6.2.	Modes de culture dans les PBRs.....	31
6.2.1.	Mode batch (ou discontinu).....	31
6.2.2.	Mode semi-continu.....	31
6.2.3.	Mode fed-batch.....	32
6.2.4.	Mode continu.....	32
7.	Conclusion de l'étude bibliographique sur les microalgues et les photobioréacteurs .....	34

**PARTIE B : Hydrodynamique et transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles conventionnelles et confinées .....34**

1.	Définition et présentation de colonnes à bulles .....	34
2.	Applications des colonnes à bulles .....	35
3.	Photobioréacteurs de type colonne à bulles .....	36
4.	Hydrodynamique dans les colonnes à bulles conventionnelles .....	36
4.1.	Taux de vide .....	37
4.2.	Les régimes d'écoulement et leurs transitions.....	37
4.2.1.	Régime homogène .....	38
4.2.2.	Régime hétérogène .....	38
4.2.3.	Régime transitoire .....	38
4.3.	Temps de mélange.....	39
4.4.	Transfert de matière gaz-liquide.....	40
4.4.1.	Les théories du transfert de matière gaz-liquide.....	40
4.4.2.	Surface spécifique d'échange « a » .....	43
5.	Colonne à bulles « confinée » .....	44
5.1.	Hydrodynamique dans les colonnes à bulles confinées.....	44
5.2.	Transfert de matière dans les colonnes à bulles confinées .....	47
6.	Conclusion sur la partie hydrodynamique et transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles conventionnelles et confinées.....	49

**PARTIE C : Biofilm photosynthétique .....50**

1.	Généralités sur le biofilm.....	50
2.	Définition et composition du biofilm.....	50
3.	Formation de biofilm et adhésion de microalgues .....	51
4.	Gestion du développement de biofilm dans les photobioréacteurs.....	52

5. Conclusion sur la partie biofilm photosynthétique .....	54
<b>Chapitre II : Matériel et méthodes .....</b>	<b>56</b>
<b>PARTIE A : Dispositif expérimental : Colonne à bulles confinée (<math>e = 2</math> mm).....</b>	<b>56</b>
<b>PARTIE B : Caractérisation physico-chimique des fluides modèles .....</b>	<b>57</b>
1. Mesure de la tension superficielle.....	57
2. Mesure de la masse volumique .....	59
3. Caractérisation rhéologique des fluides modèles.....	59
<b>PARTIE C : Méthodes de mesures.....</b>	<b>61</b>
1. Détermination du taux de vide .....	61
1.1. Méthode par mesure de hauteur.....	61
1.2. Méthode par mesure de pression différentielle.....	61
2. Identification des régimes d'écoulement et leurs transitions.....	62
2.1. Evolution du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz .....	63
2.2. Méthode de Wallis ou « drift flux method » .....	64
2.3. Méthode de « Zuber et Findley ».....	64
3. Détermination du temps de mélange.....	65
3.1. Injection sur la largeur de la colonne.....	65
3.2. Injection locale .....	65
4. Détermination de coefficient de transfert gaz-liquide $k_{La}$ .....	67
4.1. Estimation de $k_{La}$ suivant l'hypothèse d'un liquide parfaitement mélangé.....	67
4.2. Estimation de $k_{La}$ suivant le modèle de dispersion axiale .....	72
4.2.1. Coefficient de dispersion axiale $D_{ax}$ .....	72
4.2.2. Détermination de $k_{La}$ avec le modèle de dispersion axiale .....	74
5. Détermination de la forme, de la taille et de la vitesse des bulles par ombroscopie	75
5.1. Présentation et principe de la méthode .....	75
5.2. Dispositif expérimental .....	76
5.3. Méthodes de calcul : taille, vitesse, trajectoire des bulles et surface spécifique	
d'échange	77
6. Mesure des composantes du cisaillement pariétal par la méthode électrochimique	80
6.1. Introduction .....	80
6.2. Principe de la méthode électrochimique.....	80
6.3. Préparation des solutions électrochimiques.....	81

6.4.	Dispositif expérimental .....	82
6.5.	Courant limite de diffusion et détermination de la tension de polarisation .....	83
6.6.	Détermination du gradient pariétal de vitesse .....	85
6.6.1.	Solution stationnaire de Lévêque (1928).....	85
6.6.2.	Approche de Sobolík et al. (1987).....	86
6.7.	Détermination du coefficient de diffusion moléculaire $D_{ox}$ .....	87
6.8.	Détermination de la surface active de l'électrode « $A_{\text{électrode}}$ » par la méthode de « Cottrell » .....	89
6.9.	Acquisition des données et méthode d'analyse spectrale .....	91
7.	Culture de la microalgue <i>Chlorella vulgaris</i> dans des PBRs intensifiés .....	93
7.1.	Photobioréacteurs utilisés .....	93
7.2.	Souche de microalgue étudiée et milieu de culture utilisé .....	95
7.3.	Suivi de la culture et du flux lumineux.....	96
7.3.1.	Mesure de la matière sèche.....	96
7.3.2.	Mesure de la teneur en pigments et de l'indice de stress.....	96
7.3.3.	Dosage des éléments nutritifs par chromatographie ionique .....	97
7.3.4.	Dosage des exopolysaccharides (EPS).....	99
7.3.5.	Méthode d'adaptation de la lumière avec la croissance .....	100
7.4.	Présentation de la stratégie de culture pour avoir des concentrations élevées.....	101
7.5.	Suivi de biofilm .....	104

***Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une  
colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de  
mélange.....105***

Introduction .....

**PART A: Gas holdup and flow regimes in a thin-gap bubble column with  
Newtonian and non-Newtonian liquid phase.....106**

Abstract .....

1. Introduction.....

2. Materials and Methods.....

2.1. Experimental setup .....

2.2. Fluid characteristics.....

2.3. Gas holdup determination.....

2.4. Identification of flow regimes .....

3. Results and discussion .....

3.1. Gas holdup.....	112
3.1.1. Influence of fluid rheology on gas holdup.....	112
3.1.2. Comparison of gas holdup results in the thin-gap bubble column with literature results in classical 3D columns or columns with larger gaps .....	113
3.2. Identification of flow regimes and their transitions.....	117
3.2.1. Visual observation.....	117
3.2.2. Determination of regime transitions by three methods.....	121
4. Conclusion and perspectives.....	123
Acknowledgment .....	124
Symbols used .....	124
References .....	125
<b>PART B: Determination of the mixing time .....</b>	<b>126</b>
1. Influence of the liquid phase rheology on the mixing time (local injection).....	127
2. Influence of liquid phase rheology on the mixing time (width injection) .....	129
3. Influence of confinement on the mixing time (local and width injection) .....	130
Conclusion and perspectives .....	134
 <i>Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide .....</i>	 <i>136</i>
Introduction .....	136
<b>PART A: Characterization of the gaseous phase by shadowgraphy measurements .....</b>	<b>137</b>
1. Trajectory of bubbles in 2D confined column .....	137
2. Characterization of the bubble size distribution (in number) in Newtonian and non-Newtonian liquid phases.....	139
2.1. Bubbles rising in Newtonian fluids .....	139
2.2. Bubbles rising in non-Newtonian fluids.....	143
3. Identification of bubble classes by the velocity components ( $u$ and $v$ ) .....	146
4. Determination of the specific interfacial area ' $a$ ' .....	154
<b>PART B: Determination of gas-liquid mass transfer coefficient <math>k_{LA}</math> .....</b>	<b>155</b>
1. Determination of $k_{LA}$ according to the perfect mixing model.....	155
2. Determination of $k_{LA}$ according to axial dispersion model.....	156

2.1. Estimation of axial dispersion coefficients ( $D_{ax}$ ) and gas-liquid mass transfer coefficient $k_{La}$ .....	157
2.2. Effect of the rheological properties of the liquid phase on $k_{La}$ .....	158
2.3. Effect of the confinement on $k_{La}$ .....	160
Conclusion and perspectives .....	165

**Chapitre V : Caractérisation des phénomènes pariétaux en fonction de l'injection de gaz ..... 168**

1. Introduction.....	168
2. Evolution temporelle du nombre de Sherwood $Sh(t)$ .....	169
2.1. Fluide Newtonien (eau) .....	169
2.2. Fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L <sup>-1</sup> ) .....	170
3. Comparaison des composantes moyenne ( $S_{sob}$ ) et fluctuante ( $s'^2$ ) du cisaillement pariétal pour différentes conditions de bullage .....	174
3.1. Effet de la position de la sonde.....	174
3.2. Effet de la rhéologie de la phase liquide.....	181
4. Analyse spectrale du gradient pariétal de vitesse .....	184
4.1. Fluide Newtonien (eau) .....	184
4.2. Fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L <sup>-1</sup> ) .....	188
5. Comparaison des valeurs du cisaillement pariétal avec la littérature .....	192
6. Conclusion et perspectives.....	194

**Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées..... 197**

1. Introduction.....	197
2. Résultats et discussion .....	198
2.1. Productivité volumique maximale théorique.....	198
2.2. Culture en mode semi-continu.....	200
2.2.1. Suivi de la concentration en biomasse.....	200
2.2.2. Suivi de la teneur en pigments et indice de stress .....	204
2.2.3. Suivi de la concentration en O <sub>2</sub> dissous dans la culture .....	207
2.2.4. Dosage des éléments nutritifs par chromatographie ionique.....	208
2.3. Culture en mode continu .....	214
2.3.1. Détermination de la productivité volumique maximale pour différentes intensités lumineuses .....	214
2.3.2. Comparaison avec les productivités volumiques maximales théoriques.....	217

2.3.3. Comparaison avec d'autres systèmes de culture .....	218
2.3.4. Estimation du coefficient de transfert gaz-liquide ( $k_{L,aO_2}$ ) dans la culture .....	220
2.4. Suivi du développement de biofilm.....	221
3. Conclusion et perspectives.....	224
<b><i>Conclusion générale et perspectives.....</i></b>	<b>227</b>
<b><i>Nomenclature .....</i></b>	<b><i>a</i></b>
<b><i>Annexes .....</i></b>	<b><i>f</i></b>
<b><i>Références bibliographiques .....</i></b>	<b><i>y</i></b>

---

---

# Liste des figures

---

---

## Chapitre I

Figure I. 1 : Représentation schématique du processus global de la photosynthèse (Richmond and Hu, 2013).....	8
Figure I. 2 : Exemples de culture en systèmes ouverts : (a) Bassins circulaires (Yaeyama, Japon) et (b) Cultures en raceways de la Spiruline (Cynotech Co., Hawaï, Etats-Unis) .....	11
Figure I. 3 : Exemple de PBR tubulaire : (a) Tubes horizontaux empilés verticalement (Algae PARC Wageningen University), (b) Tubes horizontaux dans un seul plan (Université d'Almeria, Espagne), (c) Tubes inclinés (Bitog et al., 2011), (d) PBR cylindrique de type colonne à bulles (Usine Somaïa, Sainte-Marguerite, France).....	13
Figure I. 4 : Exemples de PBR plat : (a) PBRs à plaques plates (Université d'Arizona, Etats-Unis), (b) PBR solaire plat « AlgoFilm » à inclinaison variable (GEPEA, Nantes Université, France), (c) PBR solaire à panneau plat (Algosolis, France).....	14
Figure I. 5 : Exemples de PBR de laboratoire présents au laboratoire GEPEA : (a) PBR airlift (1L), (b) PBR solaire à panneau plat, (c) PBR de type colonne à bulles (Scobalite), (d) PBR torique, (e) PBR EOSS-2, (f) PBR AlgoFilm, (g) PBRs de type colonne à bulles confinée (2 et 4 mm d'entrefer) .....	16
Figure I. 6 : Principe de l'intensification de système de culture dans les PBRs à haute productivité volumique .....	17
Figure I. 7 : Évolution des productivités surfaciques et volumiques en fonction de l'intensité du flux incident pour plusieurs surfaces spécifiques éclairées (Pruvost and Cornet, 2012).....	17
Figure I. 8 : Représentation des différents régimes de fonctionnement rencontrés lors de la culture des microalgues (eucaryotes) en PBR. Les schémas à gauche représentent une vue latérale d'un PBR rectangulaire éclairé d'un seul côté. Les graphes à droite illustrent la productivité et la biomasse correspondante pour chaque mode de fonctionnement en fonction du taux de dilution : (a) culture photolimitée, (b) culture en régime luminostat, (c) culture en régime cinétique (Pruvost et Cornet, 2012) .....	25
Figure I. 9 : (a) Différentes plages de MRPA pour la microalgue <i>C. vulgaris</i> , (b) Evolution de la productivité en fonction du MRPA (en rouge $D=0,05 \text{ h}^{-1}$ , en gris $q_0=270 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et en noir $q_0=760 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) (Artu, 2016).....	27
Figure I. 10 : Évolution des différentes espèces carbonées dissoutes en fonction du pH du milieu (Le Gouic, 2013) .....	29
Figure I. 11 : Évolution de la productivité volumique et la concentration cellulaire en fonction du taux de dilution en mode continu (Le Borgne, 2011) .....	33
Figure I. 12 : Principe du fonctionnement de la colonne à bulles.....	35
Figure I. 13 : PBR de type réseau de colonnes à bulles (MicroBio Engineering Inc., San Luis Obispo, États-Unis <a href="https://microbioengineering.com/">https://microbioengineering.com/</a> ) .....	36
Figure I. 14 : Régimes d'écoulement dans une colonne à bulles conventionnelle (Modifiée de Olmos et al., 2003) .....	39
Figure I. 15 : Modèle du double film (modifié par Lewis et Whitman, 1924) .....	41
Figure I. 16 : Etapes de formation du biofilm microalgal à l'intérieur d'un PBR (modifiée de Zeriouh et al., 2017) .....	51

## Chapitre II

Figure II. 1 : Dispositif expérimental : (a) représentation schématique et (b) image de la colonne à bulles à faible entrefer (épaisseur de 2 mm) utilisée dans cette étude.....	57
Figure II. 2 : (a) Krüss-DSA30 pour la mesure de la tension superficielle ; (b) Exemple d'analyse avec la méthode de la goutte pendante d'une solution aqueuse de glycérol à 50 % m/m.....	58
Figure II. 3 : Mesure de densité par hydromètre.....	59
Figure II. 4 : Comparaison de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement pour une solution de glycérol à 50 % m/m (Thobie et al., 2017), XG (0,5 et 1 g.L <sup>-1</sup> ) (Haase et al. (2017) et une suspension de <i>Chlorella vulgaris</i> à 42 g.L <sup>-1</sup> (Souliès, 2013) .....	60
Figure II. 5 : Dispositif expérimental pour la mesure du taux de vide avec la méthode de la différence de pression .....	62
Figure II. 6 : Identification des transitions de régimes d'écoulement dans les colonnes à bulles (Shaikh and Al-Dahhan, 2007; Manjrekar et al., 2017) .....	63
Figure II. 7 : Dispositif expérimental du temps de mélange : (a) injection sur la largeur et (b) injection locale.....	66
Figure II. 8 : Signal de conductivité en fonction de la concentration de NaCl pour tous les fluides testés .....	66
Figure II. 9 : Traitement du signal de temps de mélange : (a) Signal de conductivité normalisé ; (b) Courbe filtrée obtenue dans cette étude pour l'eau du robinet à $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$ .....	67
Figure II. 10 : Exemple de courbe Désoxygénation-Réoxygénation .....	68
Figure II. 11 : Dispositif expérimental de transfert de matière gaz-liquide .....	69
Figure II. 12 : Détermination du temps de réponse de la sonde d'O <sub>2</sub> .....	70
Figure II. 13 : Traitement des données de : $\ln((C_L^* - C_L)/C_L^*)$ en fonction du temps pour les phases de désoxygénation et de réoxygénation.....	71
Figure II. 14 : Valeurs expérimentales et numériques pour l'estimation du coefficient de dispersion axiale $D_{ax}$ , $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$ pour l'eau .....	74
Figure II. 15 : Estimation de $k_{La}$ pour l'eau avec $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$ à l'aide du programme Scilab ..	75
Figure II. 16 : Dispositif expérimental de la technique d'ombroscopie utilisée dans cette étude.....	77
Figure II. 17 : Dispositif utilisé pour la méthode électrochimique et emplacement des différentes positions de mesure sur la colonne à bulles confinée (2 mm d'entrefer).....	83
Figure II. 18 : Exemple de courbe de l'intensité en fonction du potentiel.....	84
Figure II. 19 : Exemple de courbe obtenue pour la détermination du coefficient de diffusion des ions ferricyanure (25 mol.m <sup>-3</sup> ) dans une solution électrochimique aqueuse à une température de 22°C ....	88
Figure II. 20 : Exemple de courbe obtenue pour la détermination du coefficient de diffusion des ions ferricyanure (25 mol.m <sup>-3</sup> ) dans une solution électrochimique aqueuse avec XG à 0,5 g.L <sup>-1</sup> à une température de 22°C .....	89
Figure II. 21 : Exemple de l'Asymptote de Cottrell pour déterminer le diamètre réel de la sonde .....	90
Figure II. 22 : Principales étapes de la détermination des fluctuations du taux de cisaillement (modifiée de Blel et al. (2009a).....	92
Figure II. 23 : Image des PBRs de type colonnes à bulles utilisée dans cette étude : (a) PBR d'épaisseur de 2 mm, (b) PBR d'épaisseur de 4 mm .....	95

Figure II. 24 : Mesure de l'intensité lumineuse à l'aide de Quantum mètre LI-COR sur la face arrière des PBRs .....	104
---	-----

### **Chapitre III**

Figure III. 1 : Experimental setup: (a) schematic representation, (b) image of the thin-gap bubble column (2 mm thickness) used in this study .....	109
Figure III. 2 : Comparison of the apparent viscosity vs. shear rate for 50 wt % glycerol solution, XG (0.5 and 1 g L <sup>-1</sup> ) and Chlorella vulgaris suspension at 42 g L <sup>-1</sup> .....	110
Figure III. 3 : Evolution of the global gas holdup with the superficial gas velocity for all tested fluids .....	113
Figure III. 4 : Comparison of the gas hold-up obtained in the confined bubble column used in this study with data from the literature for conventional bubble column and confined column with 'd <sub>b</sub> /e' < 1: (a): Tap water, (b): glycerol solution at 50% wt % and (c): XG 0.5 and 1 g L <sup>-1</sup> .....	116
Figure III. 5 : Bubble patterns for the different flow regimes with four liquid phases in the 2 mm thin gap bubble column. (a, b) Newtonian fluids; (c, d) non-Newtonian fluids.....	121
Figure III. 6 : Mixing time (Local injection) vs superficial gas velocity for the four fluids used .....	129
Figure III. 7 : Mixing time vs superficial gas velocity with both tracer injection methods: local and width injection for all tested fluids .....	130
Figure III. 8 : Comparison between mixing time values in the two thin-gap bubble columns (2 mm and 4 mm) in tap water and XG at 1 g.L <sup>-1</sup> with two tracer injection methods: a) Local injection and b) Width injection .....	133

### **Chapitre IV**

Figure IV. 1 : Bubble size distribution in number for different superficial gas velocities in an air - water system and for two measurement zones.....	141
Figure IV. 2 : Bubbles resulting from break-up phenomenon for tap water at U <sub>Gsup</sub> = 0.007 m.s <sup>-1</sup> in zone 2 (combining photo of 500 images, acquisition frequency = 20 Hz).....	142
Figure IV. 3 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air – 50 wt % aqueous glycerol solution system and for two measurement zones .....	143
Figure IV. 4 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air - XG 0.5 g.L <sup>-1</sup> system and for two measurement zones .....	145
Figure IV. 5 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air - XG 1 g.L <sup>-1</sup> system and for two measurement zones .....	146
Figure IV. 6 : Horizontal (u), vertical (v) and the norm (U) velocities components against the bubble equivalent diameters (d <sub>b</sub> ) for tap water in zones 1 and 2 .....	149
Figure IV. 7 : Horizontal (u) and vertical velocity (v) components with the velocity norm (U) against their bubble equivalent diameters (d <sub>b</sub> ) for glycerol 50 wt % in zones 1 and 2 .....	150
Figure IV. 8 : Horizontal (u) and vertical velocity (v) components with the velocity norm (U) against their bubble equivalent diameters (d <sub>b</sub> ) for XG at 0.5 g.L <sup>-1</sup> in zones 1 and 2.....	152
Figure IV. 9 : Horizontal (u) and vertical velocity (v) components with the velocity norm (U) against their bubble equivalent diameters (d <sub>b</sub> ) for XG solution at 1 g.L <sup>-1</sup> in zones 1 and 2 .....	153
Figure IV. 10 : Specific interfacial area 'a' as a function of superficial gas velocity for the tested fluids: (a) in the two zones and (b) average value between the two zones (1 and 2).....	155

Figure IV. 11 : Evolution of the global gas-liquid mass transfer coefficient, $k_{La}$ , with the superficial gas velocity for the four liquid phases.....	160
Figure IV. 12 : Comparison between $k_{La}$ values in this thin-gap bubble column with literature for: (a): Water, (b): 50 wt % aqueous glycerol solution and (c): XG at 0.5 and 1 g.L <sup>-1</sup> .....	164

## **Chapitre V**

Figure V. 1 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de l'eau) .....	170
Figure V. 2 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de la solution de XG à 0,5 g.L <sup>-1</sup> ).....	172
Figure V. 3 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de la solution de XG à 1 g.L <sup>-1</sup> ).....	173
Figure V. 4 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz et pour les six positions de mesure (essais avec l'eau).....	176
Figure V. 5 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les 6 positions de mesure (solution de XG à 0,5 g.L <sup>-1</sup> ) .....	178
Figure V. 6 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les 6 positions de mesure (solution de XG à 1 g.L <sup>-1</sup> ).....	180
Figure V. 7 : Evolution des composantes moyenne et fluctuante du cisaillement pariétal (valeurs moyennées sur les 6 positions) en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour tous les fluides... ..	183
Figure V. 8 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour l'eau .....	187
Figure V. 9 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour la solution de XG à 0,5 g.L <sup>-1</sup> .....	190
Figure V. 10 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour la solution de XG à 1 g.L <sup>-1</sup> .....	191

## **Chapitre VI**

Figure VI. 1 : Productivités volumiques maximales théoriques en biomasse en fonction des différentes intensités lumineuses incidentes $q_0$ pour différentes géométries de PBRs allant de 6,6 à 500 m <sup>-1</sup> (les courbes en bleu et rouge représentent les $P_{v\ max}$ des deux PBRs utilisés dans ce travail) .....	200
Figure VI. 2 : Evolution de la concentration en biomasse et du pourcentage de soutirage et d'ajout de milieu de culture au cours du temps : (a) PBR de 2 mm et (b) PBR de 4 mm.....	202
Figure VI. 3 : Evolution de : (a) la concentration en biomasse et l'intensité lumineuse et (b) la concentration en biomasse et la productivité volumique, au cours du temps dans les deux PBRs.....	204
Figure VI. 4 : Evolution en fonction du temps de culture - dans le PBR de 2 mm - de : (a) la composition pigmentaire (en % de pigments totaux) et l'indice de stress ; (b) la concentration en pigments.....	206
Figure VI. 5 : Evolution en fonction du temps de culture - dans le PBR de 4 mm - de : (a) la composition pigmentaire (en % de pigments totaux) et l'indice de stress ; (b) la concentration en pigments.....	207

Figure VI. 6 : Signaux de concentration en O <sub>2</sub> dissous enregistrés dans la culture de 2 et 4 mm avec la sonde d'O <sub>2</sub> .....	208
Figure VI. 7 : Concentrations des espèces ioniques qui composent un milieu BBM destiné à atteindre une concentration en biomasse de 16 g.L <sup>-1</sup> (dosage par chromatographie ionique) .....	210
Figure VI. 8 : Evolution de la composition des surnageants de culture en ions nitrates, phosphates et sulfates (a) PBR de 2 mm ; (b) PBR de 4 mm .....	211
Figure VI. 9 : Rapports théoriques et expérimentaux des concentrations en nutriments du jour 8 pour le PBR de 4 mm .....	214
Figure VI. 10 : Evolution de la concentration en biomasse et de la productivité volumique en mode continu en fonction des différentes intensités lumineuses appliquées dans les deux PBRs (2 et 4 mm d'épaisseur) .....	215
Figure VI. 11 : La couleur de culture en condition normale et en condition de photohibition .....	215
Figure VI. 12 : Comparaison des valeurs de productivité volumique expérimentales et théoriques pour les deux PBRs .....	218
Figure VI. 13 : (a) Photographie de la face arrière du PBR de 2 mm avec les 25 positions fixées pour la mesure de l'intensité lumineuse et (b) Schéma détaillé du PBR de 2 mm avec les pourcentages moyens de pertes en lumière sur les positions de mesures numérotées de 1 à 25 zones, pour les intensités lumineuses q <sub>0</sub> comprises entre 100 et 500 μmol <sub>hv</sub> .m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> .....	222

---

---

## *Liste des tableaux*

---

---

### **Chapitre II**

Tableau II. 1 : Propriétés physiques des phases liquides .....	60
Tableau II. 2 : Valeurs de la tension superficielle des solutions liquides utilisées avec et sans les réactifs électrochimiques .....	81
Tableau II. 3 : Coefficients de diffusion de l'ion ferricyanure des solutions utilisées.....	89
Tableau II. 4 : Limites de concentration en cations et en anions supportés par la colonne .....	98
Tableau II. 5 : Détermination de l'incertitude de l'appareil pour chaque cation par mesures de faux inconnus réalisés à partir d'une solution standard contenant les différents cations en concentration connue, diluée dans l'éluant (acide sulfurique à 17 mM).....	98
Tableau II. 6 : Détermination de l'incertitude de l'appareil pour chaque anion par mesures de faux inconnus réalisés à partir d'une solution standard contenant les différents anions en concentration connue, diluée dans l'eau milli-Q.....	99
Tableau II. 7 : Gamme étalon pour le dosage des sucres, à différentes concentrations en glucose entre 0 et 0,1 g.L <sup>-1</sup> .....	100
Tableau II. 8 : Composition du milieu de culture BBM .....	101
Tableau II. 9 : Composition élémentaire de la microalgue <i>Chlorella vulgaris</i> (Souliès, 2014) .....	102

### **Chapitre III**

Table III. 1 : Physical properties of the liquid phases.....	110
Table III. 2 : Studies used to compare the gas holdup results obtained in this study with literature ..	117
Table III. 3 : Transition of regimes with different methods for all fluids. $U_{Gsup0-1}$ : Transition between the organized and homogeneous regime ; $U_{Gsup1-2}$ : Transition between the homogeneous and transition regime ; $U_{Gsup2-3}$ : Transition between the transition and heterogeneous regime ; $U_{Gsup0-2}$ : Transition between the organized and transition regime ; $U_{Gsup1-1'}$ : Transition between the homogeneous regimes I and II ; $U_{Gsup1'-2}$ : Transition between the homogeneous II and the transition I regimes ; $U_{Gsup2-2'}$ : Transition between the transition regimes I and II ; $U_{Gsup2'-3}$ : Transition between the transition II and heterogeneous regimes.....	122

### **Chapitre IV**

Table IV. 1 : Bubble trajectories in the 2 mm-gap column with different fluids and superficial gas velocities within two measurement zones (Frequency between two bubble images = 20 Hz) .....	137
Table IV. 2 : Comparison of the mixing time ( $t_m$ ) with the characteristic time of gas-liquid mass transfer ( $1/k_L a$ ) for all tested solutions .....	156
Table IV. 3 : $D_{ax}$ estimation for the four tested fluids.....	157
Table IV. 4 : Studies used to compare the gas-liquid mass transfer coefficient results obtained in this study with literature .....	165

## **Chapitre VI**

Tableau VI. 1 : Résumé des paramètres du modèle cinétique de <i>Chlorella vulgaris</i> (Souliès et al., 2016) .....	199
Tableau VI. 2 : Composition ionique d'un milieu BBM permettant d'atteindre 16 g.L <sup>-1</sup> de biomasse .....	209
Tableau VI. 3 : Evolution de la composition des surnageants de culture en éléments en fonction des ajustements en nutriments, PBR de 2 mm .....	212
Tableau VI. 4 : Evolution de la composition des surnageants de culture en éléments s en fonction des ajustements en nutriments, PBR de 4 mm .....	213
Tableau VI. 5 : Récapitulatif des résultats obtenus lors de la culture en mode continu dans les deux PBRs (2 et 4 mm d'épaisseur) pour différentes intensités lumineuses (320 ; 400 ; 500 et 600 $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et pour un taux de dilution $D = 0,03 \text{ h}^{-1}$ .....	217
Tableau VI. 6 : Comparaison de la productivité volumique obtenue dans cette étude (PBR de 2 et 4 mm d'épaisseur) avec celles d'autres géométries de systèmes de culture .....	219

## *Introduction générale*

---

---

Au cours de ces dernières années, la culture des microalgues et des cyanobactéries a suscité un intérêt croissant en raison de ses nombreuses applications prometteuses dans divers domaines. Cela englobe la production de produits à forte valeur ajoutée pour des industries variées, notamment pharmaceutiques, cosmétiques et agroalimentaires, tels que des pigments, des vitamines et des acides gras, entre autres. De plus, ces microorganismes contribuent à la production d'énergie propre, notamment le biohydrogène et le biodiesel. De surcroît, ces microorganismes jouent un rôle vital dans la réduction de la pollution, que ce soit dans le traitement des eaux ou la capture du dioxyde de carbone. En tant que ressource renouvelable par excellence, les microorganismes aquatiques cultivés dans des réacteurs se positionnent comme l'une des alternatives les plus crédibles aux ressources actuellement exploitées.

Les colonnes à bulles sont des systèmes de culture fermés utilisées en tant que photobioréacteurs (PBRs), car elles permettent un bon mélange et assurent les transferts gaz-liquide nécessaires à la croissance des microalgues. Ce type de PBR est particulièrement adapté à la culture de microorganismes photosynthétiques, car l'injection d'air enrichi en CO<sub>2</sub> permet de mélanger et d'alimenter la culture avec du carbone inorganique. En plus, l'agitation induite par l'ascension des bulles permet également à ces microorganismes de ne pas rester trop longtemps dans une zone sombre ou trop exposée à la lumière, évitant ainsi les phénomènes de respiration ou de photoinhibition, nuisibles à leur croissance. Le bullage joue également un rôle essentiel dans le transfert de matière gaz-liquide et doit être suffisant pour éviter, à la fois, la limitation en carbone grâce à l'absorption du CO<sub>2</sub> injecté, et l'inhibition par l'oxygène en permettant la désorption de l'O<sub>2</sub> produit.

Toutefois, des avancées technologiques demeurent nécessaires pour ces systèmes de culture, dans le but de réduire les coûts de production, d'atténuer les impacts environnementaux et d'améliorer leur efficacité énergétique. Dans ce contexte, l'amélioration des performances, grâce à une augmentation de la concentration de culture pour une surface éclairée donnée, représente une voie prometteuse pour atteindre une production optimisée et écologiquement efficace. L'optimisation, à la fois, des paramètres de culture et de la conception des PBRs constitue une approche potentielle pour parvenir à des hautes productivités volumiques (HPV). De plus, pour obtenir une concentration cellulaire ou une productivité volumique élevée, il est nécessaire de réduire l'épaisseur du PBR afin de garantir la disponibilité de la lumière sur

l'ensemble du volume du réacteur. Le laboratoire GEPEA a développé plusieurs technologies à HPV, telle que la technologie *Algofilm*® (ANR BIOSOLIS), qui a une épaisseur de culture d'environ 2 mm et qui fonctionne sur le principe du film ruisselant. Cette technologie a permis d'atteindre des productivités volumiques jusqu'à 14 fois supérieures à celles obtenues dans un système ouvert de type *raceway* (Pruvost et al., 2017). Ces niveaux de productivité élevés sont attribuables à la grande surface spécifique éclairée ( $a_{light} \approx 500 \text{ m}^{-1}$ ) qui est inversement proportionnelle à l'épaisseur de la culture.

Une autre technologie intensifiée a été étudiée, au sein du laboratoire GEPEA, par Thobie et al. (2017) et Almani (2021). Cette technologie repose sur l'utilisation d'une colonne à bulles confinée, ayant une épaisseur de 4 mm et un degré de confinement ' $d_b/e$ ' inférieur à 1 (c.à.d. la taille de bulles était inférieure à l'épaisseur de la colonne). Cette colonne a principalement fait l'objet d'une caractérisation axée sur l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide dans divers fluides modèles (Newtoniens ou non-Newtoniens). Dans ces travaux, il a été démontré que le transfert gaz-liquide n'était pas amélioré au sein de cette colonne par rapport aux colonnes conventionnelles. Cela a été expliqué par l'absence de films liquides minces entre les bulles et les parois.

Dans le cadre de cette thèse, l'objectif est de poursuivre l'intensification en réduisant davantage l'épaisseur de la culture par rapport à celles que l'on trouve dans la littérature, notamment par rapport à la colonne à bulles confinée ( $e = 4 \text{ mm}$ ). Pour cela, nous avons utilisé un PBR de type colonne à bulles confinée d'une épaisseur de 2 mm, ayant un ' $d_b/e$ ' supérieur à 1, ce qui devrait permettre d'intensifier davantage les conditions de culture, conduisant ainsi à une concentration élevée de microalgues. Le but est d'évaluer la possibilité d'améliorer le transfert de matière gaz-liquide par rapport aux autres colonnes, notamment en raison de la présence de films liquides entre la bulle et les parois (Roudet et al., 2017). L'utilisation de cette colonne devrait également réduire significativement la consommation d'énergie et d'eau, ainsi que les coûts de production et de récolte (Gross and Wen, 2014). Cependant, par comparaison avec les colonnes à bulles classiques (épaisseur de quelques centimètres) et confinées (avec un faible degré de confinement), le confinement peut entraîner des changements importants dans l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide (Thobie et al., 2017 ; Almani, 2021).

Dans les colonnes à bulles (confinées ou non), l'hydrodynamique est connue pour sa complexité aussi bien pour la phase continue que pour la phase dispersée. Elle dépend de plusieurs paramètres comme la géométrie de la colonne (Sarrafî et al., 1999), le type de

distributeur de gaz (Olmos et al., 2003a), les conditions de fonctionnement (débit, pression, température, etc.) (Ruzicka et al., 2001), ainsi que les propriétés physico-chimiques des fluides (Kim et al., 2017). Dans les PBRs confinés et pour de faibles concentrations de microalgues, le milieu présente un comportement Newtonien similaire à celui de l'eau. Le confinement engendre une hydrodynamique particulière caractérisée par : le mouvement 2D des bulles, la présence d'un film liquide entre la bulle et les parois de la colonne avec un transfert de matière intensifié dans le film liquide, l'augmentation des interactions bulle/paroi, la facilité de déformation des bulles en raison de la limitation de leur mouvement et la contrainte exercée par les parois qui affecte ainsi le sillage des bulles (Filella et al., 2015; Ruiz-Rus et al., 2022). Cependant, à des fortes concentrations de microalgues, plusieurs problèmes liés à l'hydrodynamique et au transfert gaz-liquide sont observés dans cette géométrie confinée (Souliès et al., 2013) : (i) la modification drastique des propriétés de la phase liquide lorsque la concentration en biomasse augmente : la viscosité augmente et le comportement rhéologique devient non-Newtonien rhéofluidifiant, (ii) la coalescence des bulles, (iii) le développement du biofilm qui est également augmenté dans une telle configuration. Ces problèmes potentiels impacteront la formation et le comportement des bulles et par la suite l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide dans le PBR. En effet, la coalescence des bulles peut réduire la plage de régime homogène, qui constitue le régime privilégié pour la culture des microalgues. La présence de grosses bulles détériore le mélange, altère le transfert gaz-liquide par une réduction de la surface spécifique d'échange ' $a$ '. Enfin, les biofilms affectent fortement à la fois la qualité et la disponibilité de la lumière qui pénètre dans le réacteur, diminuant ainsi la productivité de la biomasse et augmentant considérablement les coûts de culture (Zerriouh et al., 2017).

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet ANR « ALLIGATOR », coordonné par le laboratoire GEPEA, avec la participation du laboratoire de génie des procédés et matériaux (LGPM) du CentraleSupélec et l'institut de mécanique des fluides de Toulouse (IMFT). Il a pour but le développement et l'optimisation de cette nouvelle technologie du PBR pour la culture de microalgues. Trois objectifs ont été étudiés : (i) caractériser l'influence de la rhéologie du liquide sur le phénomène de coalescence des bulles confinées dans une cellule à faible entrefer (IMFT), (ii) comprendre l'impact de l'hydrodynamique sur la dynamique structurelle du biofilm (à l'échelle mésoscopique et microscopique), sa composition et ses propriétés et identifier les conditions hydrodynamiques qui limitent le développement et

l'adhésion du biofilm (LGPM), et (iii) caractériser l'hydrodynamique et le transfert gaz-liquide, dans divers fluides modèles, au sein d'une colonne à bulles confinée ( $e = 2 \text{ mm}$ ) (GEPEA).

Dans cette étude, nous avons utilisé des fluides modèles pour reproduire les caractéristiques rhéologiques de la microalgue *Chlorella vulgaris* à des concentrations cellulaires élevées. Pour ce faire, des solutions de glycérol et de gomme xanthane (XG) sont utilisées. Tout d'abord, nous avons choisi d'étudier l'influence de la viscosité de la phase liquide présentant un comportement Newtonien, avec une solution concentrée de glycérol à 50% m/m. Cette approche vise à évaluer l'effet de l'augmentation de la viscosité, tout en restant dans le domaine Newtonien, sur l'hydrodynamique et le transfert gaz-liquide dans cette colonne confinée. L'eau du robinet est également utilisée en tant que fluide Newtonien de référence. Ensuite, nous avons travaillé avec deux solutions de gomme xanthane (XG) à des concentrations de 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup> pour simuler le comportement non-Newtonien rhéofluidifiant de la microalgue *Chlorella vulgaris* à des concentrations cellulaires élevées ( $\approx 42 \text{ g.L}^{-1}$ ). Dans ce travail, nous avons examiné l'influence du confinement, des conditions d'injections d'air (différentes vitesses superficielles de gaz) et du comportement rhéologique (fluides Newtonien et non-Newtonien), à la fois aux niveaux local et global pour caractériser l'hydrodynamique, le mélange et le transfert de matière gaz-liquide dans cette colonne à bulles. La compréhension du rôle des bulles dans les phénomènes pariétaux est réalisée à l'aide de mesures électrochimiques, ce qui permet d'accéder aux composantes moyenne et fluctuante du cisaillement provoqué par le passage des bulles à proximité de la paroi de la colonne. A la fin, des essais de culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* ont été effectués sur deux PBRs de type colonnes à bulles avec de faibles entrefers de 2 et 4 mm. Le but est de vérifier l'adaptabilité de ces deux PBRs pour la croissance de cultures de microalgue à de fortes concentrations de biomasse. Ainsi, l'objectif est d'établir une stratégie de culture de microalgues en mode continu dans ce type de PBR, tout en tenant compte des différentes limitations qui peuvent avoir lieu en raison de la productivité volumique élevée en biomasse (limitation en lumière, en nutriments et inhibition par la production d'O<sub>2</sub>).

Ce manuscrit est divisé en six chapitres :

Le premier chapitre est une étude bibliographique décrivant en premier lieu les divers aspects de la culture des microorganismes photosynthétiques dans les différents systèmes de culture, notamment dans les PBRs. Ce chapitre aborde aussi les applications de ces microorganismes dans divers secteurs, ainsi que les facteurs qui influent sur leur croissance

dans les PBRs. Un focus est fait sur les méthodes d'intensification des cultures pour accroître la productivité par le biais de la réduction de l'épaisseur du PBR. La seconde partie de chapitre présente un état de l'art sur l'hydrodynamique et le transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles classiques et confinées. En particulier, cette partie discute plus spécifiquement les études menées sur les colonnes à bulles confinées, où l'hydrodynamique est particulière en raison des interactions entre les bulles elles-mêmes et avec les parois. La dernière partie de ce chapitre aborde un défi potentiel lié à l'intensification : la formation de biofilms sur les parois du PBR, réduisant l'intensité lumineuse absorbée par les cellules et donc la productivité en biomasse.

Le deuxième chapitre présente les divers dispositifs expérimentaux utilisés dans ce travail, ainsi que les appareils de mesure utilisés pour la caractérisation physicochimique des solutions testées. Une présentation détaillée des différentes méthodes expérimentales utilisées pour caractériser l'hydrodynamique, à la fois à l'échelle locale et globale, ainsi que pour mesurer le transfert gaz-liquide est effectuée. Ce chapitre aborde également la méthode électrochimique qui permet de caractériser les phénomènes du cisaillement en proche paroi. Enfin, la dernière partie se concentre sur la stratégie de culture de la souche de microalgue *Chlorella vulgaris* dans les PBRs de type colonnes à bulles confinées, ainsi que sur la caractérisation des biofilms photosynthétiques.

Le troisième chapitre présente les résultats de la caractérisation globale de l'hydrodynamique et du mélange dans cette colonne à bulles. Il est structuré en deux parties principales : (i) la première partie examine l'influence du confinement et des propriétés rhéologiques de la phase liquide sur les paramètres de l'hydrodynamique globale, tels que le taux de vide et les régimes d'écoulement, au sein de cette colonne spécifique, (ii) la seconde partie se penche sur les résultats concernant le temps de mélange pour deux méthodes d'injection d'un traceur salin.

Le quatrième chapitre est consacré à la caractérisation de l'hydrodynamique de la phase dispersée (phase gazeuse) à l'aide de la méthode d'ombroscopie, ainsi qu'au transfert de matière gaz-liquide dans cette colonne à bulles. L'analyse locale comporte la détermination de la distribution de taille, la trajectoire des bulles et les composantes de la vitesse d'un essaim de bulles en ascension et ceci pour les différents fluides modèles. La distribution des tailles des bulles permet ensuite de calculer la surface spécifique d'échange ' $a$ '. Enfin, la dernière partie examine l'impact du confinement et des propriétés rhéologiques de la phase liquide sur le coefficient du transfert de matière gaz-liquide,  $k_{La}$ .

Le cinquième chapitre aborde l'hydrodynamique en proche paroi en se basant sur des mesures électrochimiques. Ces mesures visent à déterminer les composantes moyenne et fluctuante du cisaillement à la paroi dans cette géométrie confinée, en utilisant diverses solutions liquides et en considérant différents régimes d'écoulement.

Enfin, le sixième chapitre traite la culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans deux PBRs de type colonne à bulles confinée de 2 et 4 mm d'épaisseur. L'objectif de ce chapitre est de valider les productivités volumiques obtenues avec les modèles théoriques dans le cadre de ces PBRs intensifiés, et d'identifier d'éventuels défis de fonctionnement, telles que la formation de biofilm et les limitations possibles dans ces géométries (disponibilité des nutriments et de la lumière et accumulation d'oxygène dissous).

## *Chapitre I : Revue bibliographique*

---

---

### **PARTIE A : Microalgues et ingénierie des photobioréacteurs (PBRs)**

#### 1. Généralités sur les microalgues

Les microorganismes photosynthétiques sont des organismes unicellulaires capables de convertir la lumière en énergie chimique grâce à la photosynthèse. Ce sont des organismes photoautotrophes qui utilisent une source de carbone inorganique et la lumière pour leur développement. Ce groupe comprend les bactéries photosynthétiques, les cyanobactéries et les microalgues. Les microalgues sont des eucaryotes, tandis que les bactéries photosynthétiques et les cyanobactéries sont des procaryotes dépourvus de noyau et d'autres organites compartimentés (Takache, 2010; Souliès, 2014). Les microalgues et les cyanobactéries constituent le phytoplancton aquatique et marin. Elles sont présentes partout dans le monde, principalement dans l'eau, mais également à la surface de tous les types de sols (Richmond, 2003). Ces microorganismes, qui existent depuis environ deux milliards d'années, ont produit l'oxygène présent dans notre atmosphère terrestre (Richmond and Hu, 2013).

Les microalgues, comme d'autres microorganismes, ont un taux de croissance rapide et peuvent produire des métabolites secondaires. Elles sont capables de se développer dans un milieu purement minéral et de produire leur propre matière organique grâce à la photosynthèse, qui transforme l'énergie lumineuse ( $h\nu$ ) en énergie chimique (ATP et NADPH), comme chez les plantes supérieures. Les microalgues ont des avantages pour les applications industrielles car elles peuvent utiliser le  $\text{CO}_2$  comme seule source de carbone, la lumière comme source d'énergie, sans nécessité de terres arables (Pragya et al., 2013; Bux and Chisti, 2016). Ces avantages ouvrent la voie à l'utilisation commerciale de microalgues pour la production de composés à haute valeur ajoutée, tels que les caroténoïdes, les peptides bioactifs et les acides gras polyinsaturés (Christaki et al., 2011; Borowitzka, 2013).

#### 2. Réactions biochimiques des microalgues

##### 2.1. *La photosynthèse*

La photosynthèse est une réaction d'oxydoréduction entraînée par la lumière dans laquelle le carbone inorganique (le dioxyde de carbone  $\text{CO}_2$  ou autre forme de carbone inorganique dissous (CID)) est converti en hydrates de carbone  $(\text{CH}_2\text{O})_n$ . Durant ce processus, l'oxygène

(O<sub>2</sub>) est libéré en tant que produit secondaire. La photosynthèse est ainsi représentée globalement par l'équation suivante (I.1) :



La photosynthèse a lieu au sein du chloroplaste dont la membrane interne est organisée en petits sacs appelés thylakoïdes. Dans les membranes des thylakoïdes se trouvent les pigments photosynthétiques qui captent la lumière nécessaire pour la photosynthèse. Ces pigments sont constitués principalement par la chlorophylle, mais aussi les pigments accessoires comme les phycobiliprotéines, les caroténoïdes, etc. (Richmond and Hu, 2013). Ces pigments sont regroupés en antennes collectrices qui utilisent tous les photons captés. L'absorption des longueurs d'ondes courtes, donc fortement énergétiques, va se faire par les antennes périphériques tandis que les longueurs d'ondes restantes, moins énergétiques, sont absorbées par les antennes internes. Les pigments accessoires et la chlorophylle b sont situés en périphérie et la chlorophylle a est située au centre. L'énergie qui est captée par les pigments est ensuite transférée à des photosystèmes.

La photosynthèse est divisée en deux étapes : les réactions lumineuses dites photochimiques (phase claire) et les réactions sombres dites chimiques (phase sombre ou cycle de Calvin) (Figure I.1) (Richmond and Hu, 2013).

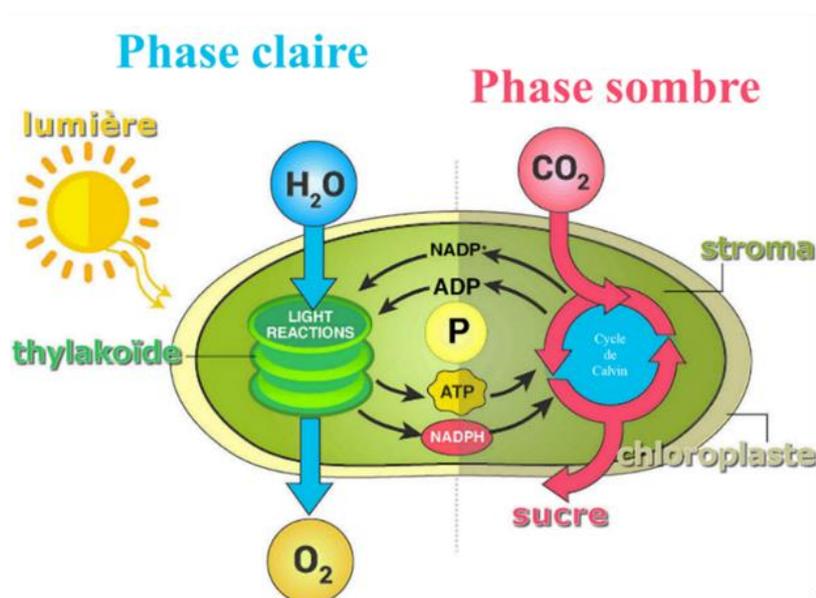


Figure I. 1 : Représentation schématique du processus global de la photosynthèse (Richmond and Hu, 2013)

## 2.2. *La respiration*

Dans l'obscurité, la respiration mitochondriale est l'activité dominante. Il n'y a pas de photosynthèse dans le chloroplaste. Ce dernier reste cependant métaboliquement actif afin de convertir les glucides, produits de la réaction de Calvin, en d'autres sucres exportés vers le cytosol (Hoefnagel et al., 1998). La respiration mitochondriale s'effectue en 4 grandes étapes : la glycolyse, l'oxydation du pyruvate, le cycle de l'acide citrique (ou cycle de Krebs) et la phosphorylation oxydative.

## 3. Valorisation des microorganismes photosynthétiques

Les microalgues sont omniprésentes dans le monde entier. Elles peuvent être trouvées dans le sol, bien qu'elles poussent principalement dans l'eau. Les principales applications des microalgues sont décrites ci-dessous :

- La première voie de valorisation est destinée essentiellement à l'alimentation. La biomasse est utilisée soit directement pour la consommation humaine (la cyanobactérie *Nostoc sp.* a été consommée en Chine comme aliment, en raison de ses propriétés nutritionnelles), soit indirectement en tant que nourriture pour les animaux destinés à l'alimentation humaine (ex. en écloserie pour alimenter les larves de poissons, les crustacés et les coquillages) (Todisco, 2019).
- La deuxième voie, qui connaît actuellement plus de succès que l'alimentation, concerne la production de certaines molécules d'intérêt (pigments, acides gras, vitamines, peptides, antioxydants...) utilisées dans plusieurs domaines (agroalimentaire, nutraceutique, cosmétique, pharmaceutique, environnemental...). Les avantages des microalgues dans le domaine cosmétique sont principalement liés à leur teneur élevée en acides gras, atteignant souvent 50% du poids sec (Todisco, 2019).
- La troisième voie concerne l'application énergétique, notamment à travers les biocarburants de troisième génération issus de matières premières telles que les microalgues et les cultures énergétiques. Les microalgues présentent de nombreux avantages en tant que source de biocarburants : elles peuvent être cultivées tout au long de l'année, se développent dans des milieux aqueux et nécessitent moins d'eau que les cultures terrestres, car la majeure partie de l'eau utilisée pour leur croissance peut être recyclée. De plus, elles peuvent être cultivées en eaux saumâtres sur des terres non arables, préservant ainsi la production alimentaire (Brennan and Owende, 2010). En

outre, les microalgues peuvent jouer un rôle essentiel dans la production d'hydrogène. Un exemple emblématique remonte à 1942, lorsque la souche *Scenedesmus obliquus* a été utilisée pour la première production d'hydrogène, marquant ainsi le début d'une perspective prometteuse pour l'application de cette technologie dans le secteur de l'énergie. Des chercheurs de l'Université de Chicago ont observé une production temporaire d'hydrogène en exposant cette souche à une source lumineuse. Depuis cette découverte initiale, la production d'hydrogène sous l'influence de la lumière a été étudiée chez diverses algues vertes, notamment *Chlorella pyrenoidosa* et *Chlamydomonas reinhardtii* (Cournac et al., 2012).

- Les microalgues pour l'environnement : les microalgues peuvent être utilisées de plusieurs manières pour atténuer le CO<sub>2</sub> atmosphérique ou traiter les eaux usées (Rasoul-Amini et al., 2014).

#### 4. Systèmes et modes de culture des microalgues

En général, les microalgues poussent dans les environnements naturels comme les lacs, les étangs et les lagunes, où elles utilisent directement l'énergie solaire et le CO<sub>2</sub> de l'atmosphère. Dans ce processus, la croissance est lente et incontrôlée. Afin d'optimiser et intensifier les paramètres de croissance, les microalgues peuvent être cultivées dans des systèmes à conditions de culture contrôlées. Il existe généralement deux types de systèmes de culture contrôlée, à savoir les systèmes ouverts et les systèmes fermés (appelés photobioréacteurs). Le choix dépend de la souche cultivée ainsi que de l'application visée.

##### 4.1. Systèmes de culture ouverts

Dans ces systèmes de cultures, il n'y a pas de séparation physique entre la culture et l'environnement extérieur. Ce sont des technologies facilement extrapolables à une grande échelle, leur conception est basique ce qui fait qu'ils sont les systèmes les moins chers.

Les systèmes ouverts peuvent être divisés en deux sous catégories : les bassins ouverts classiques (lagunes) (Figure I.2a) et les « *raceways* » (Figure I.2b). Dans les lagunes (Figure I.2a), les cultures ne sont mélangées que par le vent alors que dans les *raceways* (Figure I.2b), des roues à aubes sont utilisées pour faire circuler la culture dans une configuration en boucle.

Ces systèmes ouverts, bien qu'ils soient développés industriellement, présentent des limites en termes de productivités volumiques incompatibles avec les besoins futurs en biomasse

microalgale. Une des limites majeures à l'utilisation de ce type de technologie est l'absence de contrôle de la culture. En effet, la régulation du pH et de la température sur ce type de système est techniquement délicate. D'autre part, ces systèmes présentent, à cause du contact direct avec l'environnement, des risques de contamination biologique soit par d'autres espèces de microalgues, soit par des prédateurs (bactéries, virus, daphnies, copépodes...) qui altèrent la biomasse microalgale. En pratique, seules des souches très robustes (comme *Dunaliella salina* et *Arthrospira platensis*) sont capables de survivre dans ces conditions où la plupart des contaminants ne peuvent proliférer (respectivement hypersalinité et milieu fortement alcalin) (Kumar et al., 2015). De plus, la grande interface entre la culture et l'atmosphère représente une limitation significative dans l'évolution de ces systèmes de culture. Cela est principalement dû à la faible concentration en carbone dissous dans le milieu, souvent insuffisante pour répondre aux besoins de croissance non limitée des microorganismes photosynthétiques. Le taux élevé d'évaporation du milieu entraîne également une consommation d'eau considérable.

En conclusion, bien que leur utilisation soit limitée pour des applications industrielles cherchant des productivités élevées, les systèmes ouverts sont largement répandus dans le monde du fait de leur facilité d'extrapolation et de leur faible coût.

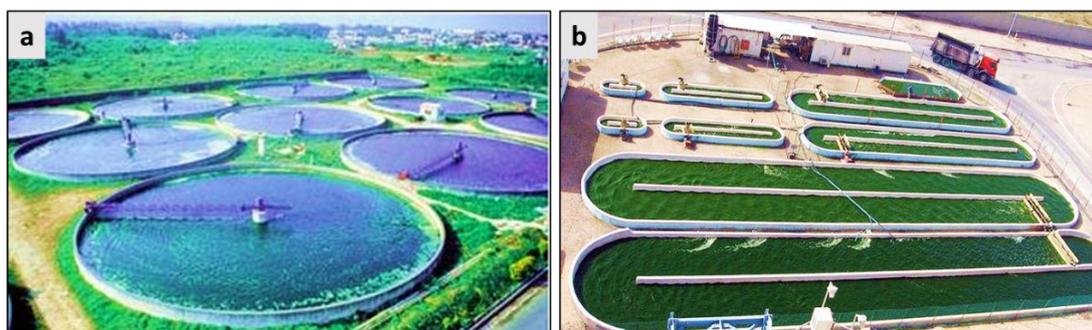


Figure 1. 2 : Exemples de culture en systèmes ouverts : (a) Bassins circulaires (Yaeyama, Japon) et (b) Cultures en raceways de la Spiruline (Cynotech Co., Hawaï, Etats-Unis)

#### 4.2. Systèmes de culture fermés

Par rapport aux systèmes ouverts, les systèmes fermés, appelés photobioréacteurs (PBRs), (Figure 3) permettent une culture contrôlée et offrent une grande qualité de production car ce sont des systèmes stérilisables (Pruvost, 2011). Par définition, un PBR est un système fermé dans lequel se produisent des interactions biologiques contrôlées par les conditions de culture (Olivo, 2007). Ces systèmes, plus coûteux, permettent un meilleur contrôle des conditions de croissance, une utilisation plus efficace de la lumière et du CO<sub>2</sub>, un bon mélange, ainsi qu'une

régulation de la culture qui minimise les risques de contamination par rapport aux systèmes ouverts en raison de l'absence de contact avec l'extérieur. Il suffit alors de stériliser le PBR avant la mise en culture. En outre, la désorption est également limitée en raison des faibles échanges avec l'air ambiant, ce qui évite les risques de limitation en carbone. La consommation en eau est faible comparée aux systèmes ouverts car l'évaporation y est quasi-nulle. Par conséquent, une productivité de biomasse plus élevée peut être obtenue dans les PBRs par rapport aux systèmes ouverts (Pawar, 2016).

Par ailleurs, les inconvénients des PBRs sont non négligeables. On peut citer le risque de formation de biofilm, l'accumulation d'oxygène qui peut avoir des effets toxiques sur la croissance photosynthétique et l'échauffement, en particulier dans des conditions solaires à cause de la grande quantité de lumière infrarouge recueillie (Pruvost et al., 2016). Tous ces inconvénients limitent l'utilisation des PBRs à l'échelle industrielle. Toutefois, une conception adéquate peut résoudre tout ou une partie de ces limitations avec une bonne régulation de la température de la culture ou bien l'application de conditions hydrodynamiques adéquates pour éviter le développement de biofilm. Il est toutefois nécessaire de continuer à développer cette technologie, en particulier en adaptant les paramètres de fonctionnement pour améliorer le rendement en biomasse.

Au cours des dernières années, de nombreux systèmes ont été développés pour la culture de microalgues comme des réacteurs tubulaires, parallélépipédiques, cylindriques, coniques etc. (Todisco, 2019). Les paramètres de bullage, la présence ou pas d'un système d'agitation, le contrôle et la régulation des paramètres opératoires comme la température et le pH ont été aussi étudiés. Il existe deux grandes catégories de PBRs suivant la source lumineuse utilisée : les PBRs à éclairage solaire et les PBRs à lumière artificielle. Les PBRs solaires sont généralement utilisés pour la production de la biomasse, bénéficiant ainsi de la ressource solaire pour la mise en place d'une production industrielle à grande échelle. Les PBRs à lumière artificielle sont utilisés pour des productions à petite échelle (Takache, 2010) ; dans ce cas, les différents paramètres de contrôle (pH, température, agitation, etc...) ainsi que la lumière peuvent être rigoureusement maîtrisés. Ces systèmes visent généralement une production ciblée d'une souche particulière ou d'un métabolite d'intérêt.

#### *4.2.1. Géométries des photobioréacteurs*

La géométrie du système de culture joue un rôle crucial dans le transfert de la lumière au sein de la culture. En fonction de la surface de captation du flux lumineux, il existe deux

grandes catégories de géométries : les géométries cylindriques (PBRs tubulaires ou cylindriques) et les géométries planes (PBRs plats).

- **Les photobioréacteurs tubulaires ou cylindriques**

Les PBRs tubulaires (Figure I.3a, b et c) sont constitués de tubes transparents à l'intérieur desquels la culture circule. Ils peuvent être disposés en plusieurs plans de tubes : horizontaux empilés verticalement (Figure I.3a), horizontaux dans un seul plan (Figure I.3b), inclinés (Figure I.3c). Les PBRs peuvent être également cylindriques verticaux comme c'est le cas d'un PBR de type colonne à bulles (Figure I.3d). Dans cette géométrie, les cultures sont exposées à la lumière d'un seul côté ; cela conduit à une répartition plus complexe de la lumière, du fait de l'absence de symétrie cylindrique et du dioptre optique formé par la surface éclairée (Lee et al., 2014). Une atténuation monodirectionnelle ne sera pas obtenue sauf si un éclairage radial symétrique est appliqué (Takache et al., 2009).

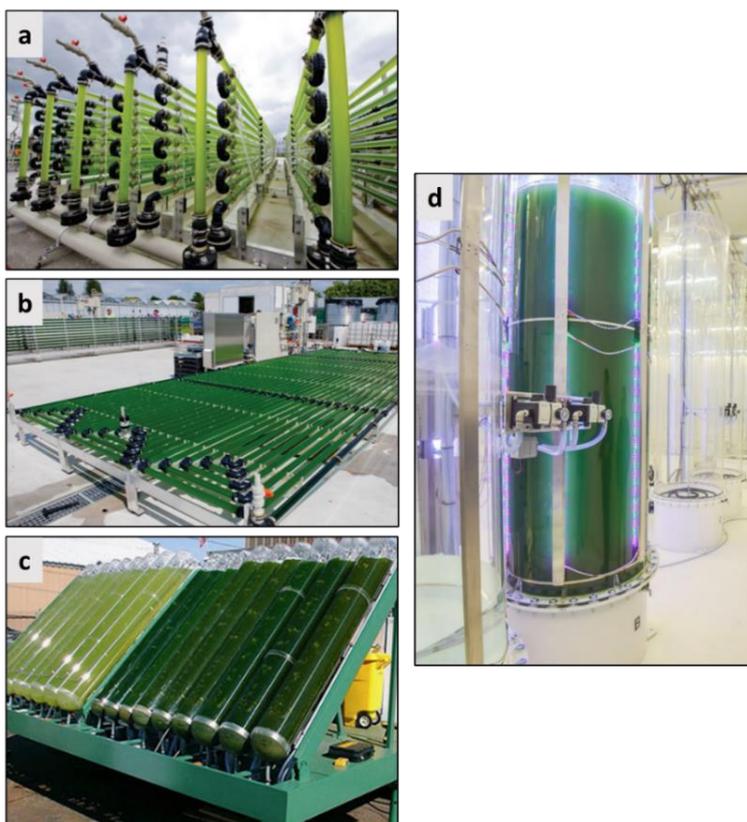


Figure I. 3 : Exemple de PBR tubulaire : (a) Tubes horizontaux empilés verticalement (Algae PARC Wageningen University), (b) Tubes horizontaux dans un seul plan (Université d'Almeria, Espagne), (c) Tubes inclinés (Bitog et al., 2011), (d) PBR cylindrique de type colonne à bulles (Usine Somaia, Sainte-Marguerite, France)

- **Les photobioréacteurs plats**

Les PBRs plats (Figure I.4) sont des dispositifs plats transparents, fonctionnant comme des *airlifts* ou des colonnes à bulles, où la culture est mélangée par aération. Ces systèmes ont un rapport surface/volume plus important que les autres types de PBRs. De cette façon, l'énergie lumineuse est mieux utilisée. Le mouvement de la biomasse est assuré par le bullage de gaz en bas du système et l'accumulation d'oxygène est généralement plus faible que dans les PBRs tubulaires (Ugwu et al., 2008). Dans ce type de PBR, la géométrie plane permet d'atteindre une atténuation de la lumière monodirectionnelle, suivant une direction perpendiculaire à la surface éclairée (notée  $z$ ). Vree et al. (2015) et Pawar (2016) ont montré que les PBRs verticaux, y compris la colonne à bulles, ont des productivités surfaciques plus élevées que les PBRs horizontaux en raison d'une interception de lumière plus élevée.

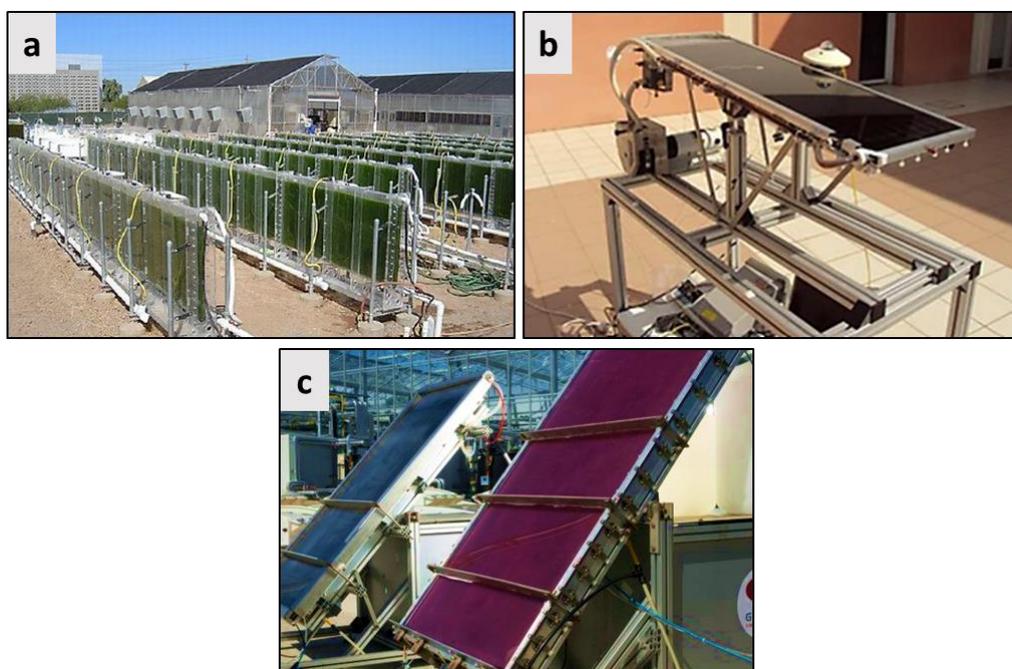


Figure I. 4 : Exemples de PBR plat : (a) PBRs à plaques plates (Université d'Arizona, Etats-Unis), (b) PBR solaire plat « AlgoFilm » à inclinaison variable (GEPEA, Nantes Université, France), (c) PBR solaire à panneau plat (Algosolis, France)

- **Les photobioréacteurs à l'échelle industrielle**

A ce jour, les PBRs sont très peu exploités à l'échelle industrielle en raison de leur coût de fabrication. Seules quelques entreprises commercialisant des métabolites à forte valeur ajoutée ont opté pour ces PBRs. Par exemple, chez la société Alga Technologies Ltd (Israël), leader mondial de la production d'astaxanthine d'origine naturelle, la microalgue est cultivée dans des PBRs serpentins tubulaires et horizontaux sur une surface de production de plus de 2 hectares (Prokop et al., 2015). D'autres entreprises utilisent des PBRs tubulaires horizontaux,

telles que : Fitoplancton Marino (Espagne), Varicon Aqua (Indonésie) et Nova Gream (Allemagne).

Au cours de la dernière décennie, la conception des PBRs plats est devenue un marché émergent. Plusieurs technologies ont été développées et testées par des entreprises et des plateformes technologiques comme par exemple Algosolis (France), Subitec (Allemagne), Biofarma (Norvège) et Necton (Portugal). Dans ce type de PBR, le mélange se fait par l'injection d'air, on parle alors de PBR *airlift*, ce qui permet une bonne homogénéité de culture et un taux de transfert de matière gaz-liquide élevé (Olivieri et al., 2014).

- **Les photobioréacteurs à l'échelle laboratoire**

Les PBRs à échelle laboratoire sont très utiles pour la validation de nouveaux concepts d'ingénierie ou l'optimisation des paramètres de croissance d'une souche de microalgues. Ces PBRs doivent répondre aux différents critères permettant une bonne croissance par photosynthèse à savoir un bon mélange, un transfert gaz-liquide permettant un apport de carbone, une évacuation de l'oxygène produit et un effet de cisaillement contrôlé afin de limiter le développement de biofilm, tout en prenant en compte la sensibilité de la souche de microalgue.

Différents types de PBRs sont utilisés dans le laboratoire GEPEA (Saint-Nazaire, France) (Figure I.5) : PBR *airlift* – 1L (Figure I.5a), PBR solaire à panneau plat (Figure I.5b), PBR de type colonne à bulles (Scobalite) (Figure I.5c), PBR torique (Figure I.5d), PBR EOSS-2 (Figure I.5e), PBR *AlgoFilm* (Figure I.5f) et PBRs de type colonne à bulles confinée (2 et 4 mm d'entrefer) (Figure I.5g).

Dans cette thèse, la microalgue *Chlorella vulgaris* sera cultivée dans deux PBRs de type colonne à bulles confinées d'épaisseurs 2 et 4 mm (Figure I.5g).

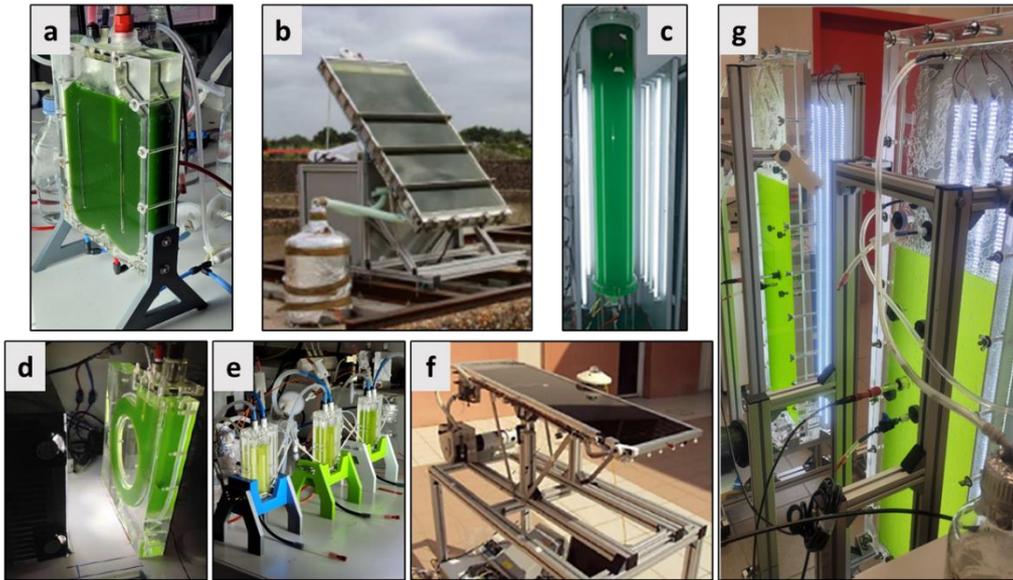


Figure I. 5 : Exemples de PBR de laboratoire présents au laboratoire GEPEA : (a) PBR airlift (1L), (b) PBR solaire à panneau plat, (c) PBR de type colonne à bulles (Scobalite), (d) PBR torique, (e) PBR EOSS-2, (f) PBR AlgoFilm, (g) PBRs de type colonne à bulles confinée (2 et 4 mm d'entrefer)

#### 4.2.2. Photobioréacteurs intensifiés

Malgré tous les avantages déjà cités pour les PBRs, des avancées technologiques sont encore nécessaires pour réduire les coûts de production et les impacts environnementaux et accroître l'efficacité énergétique de ces technologies. Dans ce contexte, l'intensification par l'augmentation de la concentration de la culture pour une surface éclairée donnée représente une voie prometteuse pour parvenir à une production volumique optimisée et éco-efficace. Afin d'augmenter la disponibilité de l'énergie lumineuse pour la culture, il est nécessaire d'augmenter à la fois l'intensité lumineuse incidente et la surface spécifique éclairée  $a_{light}$ . Ce dernier paramètre est défini comme étant le rapport entre la surface éclairée du PBR  $S_{light}$  et le volume de la culture  $V_R$ . Dans le cas d'un PBR plat éclairé d'un seul côté, la surface spécifique éclairée  $a_{light}$  sera inversement proportionnelle à l'épaisseur de la culture ( $e$ ), comme suivant :

$$a_{light} = \frac{1}{e} \quad (I.2)$$

Cette équation (I.2) montre clairement que plus l'épaisseur de la culture est faible, plus la surface spécifique éclairée est importante. Ainsi, une augmentation de cette surface spécifique éclairée permet d'augmenter la productivité volumique comme il est décrit dans l'équation suivante (Pruvost et al., 2017) :

$$\langle P_{v\ max} \rangle \propto a_{light} \times \ln \left[ 1 + \frac{q_0}{k} \right] \quad (I.3)$$

où  $\langle P_{v \max} \rangle$  est la productivité volumique maximale ( $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$ ),  $a_{\text{light}}$  est la surface spécifique éclairée du PBR ( $\text{m}^{-1}$ ),  $q_0$  est la densité du flux de photons incident ( $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et  $K$  est le coefficient de demi-saturation de la photosynthèse ( $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

Deux techniques ont été utilisées jusqu'à présent pour atteindre cet objectif : (i) soit en réduisant l'épaisseur de la culture par la modification de l'espacement entre les deux façades du PBR (Figure I.6), (ii) soit en faisant ruisseler la culture en un film mince sur des surfaces inclinées. Ces technologies, de faibles épaisseurs (typiquement de quelques millimètres), sont dites « PBRs à haute productivité volumique HPV » (Pruvost and Cornet, 2012).

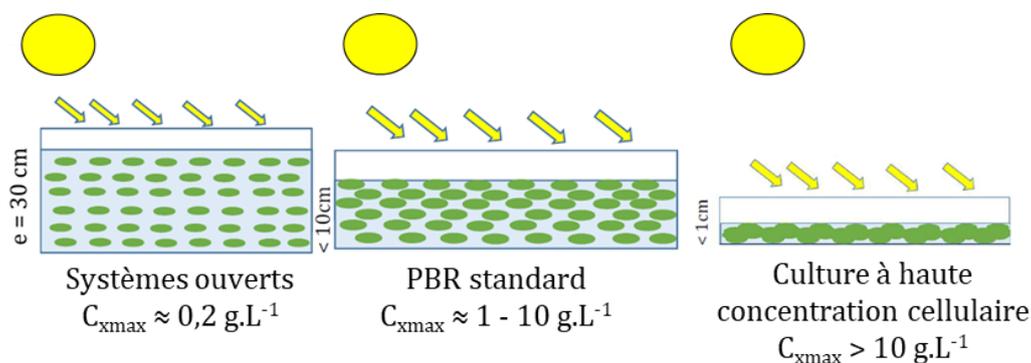


Figure I. 6 : Principe de l'intensification de système de culture dans les PBRs à haute productivité volumique

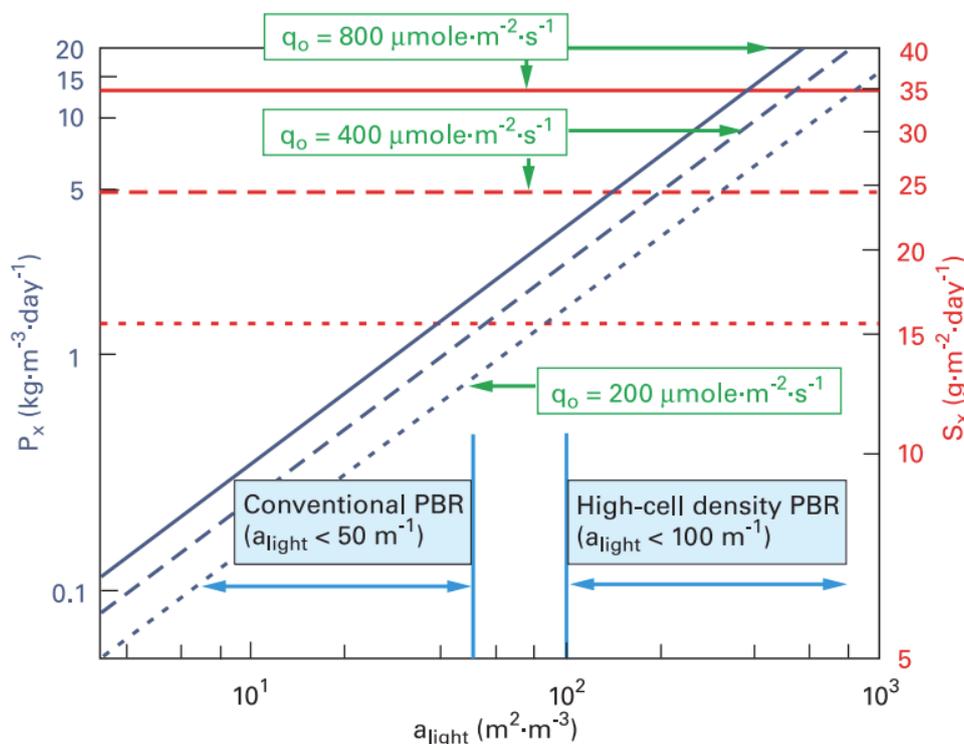


Figure I. 7 : Évolution des productivités surfaciques et volumiques en fonction de l'intensité du flux incident pour plusieurs surfaces spécifiques éclairées (Pruvost and Cornet, 2012)

Comme le présente la figure I.7, la productivité volumique est fortement dépendante de la géométrie du système, en particulier de la surface spécifique éclairée  $a_{light}$ .

Des technologies à HPV ont été développées par le laboratoire GEPEA (Saint-Nazaire, France) comme la technologie *Algofilm*® (ANR BIOSOLIS). Ce PBR a une épaisseur de culture de l'ordre de 2 mm et fonctionne sur le principe d'un film ruisselant. Cette technologie a la particularité de développer une importante surface spécifique éclairée et une réduction de l'épaisseur de culture pour garantir un rapport surface/volume élevé. Elle permet aussi la réduction de la quantité d'eau utilisée ce qui diminue significativement les coûts de production et la consommation d'énergie liée au mélange, à la régulation thermique, au pompage et à la récolte de biomasse (Pruvost et al., 2017). Il a été montré que ce PBR accumule peu d'oxygène du fait de son coefficient du transfert de matière élevé. Ce PBR permet d'atteindre des productivités volumiques jusqu'à 14 fois supérieures à celles obtenues dans un système ouvert de type *raceway*, suivant les conditions de culture appliquées. En effet, pour une intensité lumineuse incidente de  $700 \mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  et en utilisant un système de *raceway* avec une surface éclairée spécifique de  $5 \text{ m}^{-1}$ , la productivité volumique maximale est d'environ  $0,07 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ , alors que pour une technologie intensifiée telle que la technologie *Algofilm*® qui a une surface spécifique éclairée beaucoup plus importante ( $700 \text{ m}^{-1}$ ), la productivité volumique est de  $1 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Une autre technologie de PBR *airlift* plat de 7 mm d'épaisseur - Priam (Photobioréacteur à Rayonnement Interne et Agencement Modulaire) a été utilisée pour la culture de microalgues dans des conditions confinées (Souliès, 2014). La suspension passe potentiellement d'une concentration de biomasse inférieure à  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  pour les systèmes conventionnels à des concentrations de l'ordre de  $50 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  avec cette technologie. La surface spécifique éclairée importante de ce PBR ( $150 \text{ m}^{-1}$ ) permet d'atteindre des productivités volumiques élevées tout en réduisant la quantité d'eau.

Dans cette thèse, deux PBRs de type colonnes à bulles confinées à faible épaisseur de culture, 2 mm ( $a_{light} = 500 \text{ m}^{-1}$ ) et 4 mm ( $a_{light} = 250 \text{ m}^{-1}$ ), ont été utilisés dans le but de suivre, d'une part, la productivité volumique de la souche *Chlorella vulgaris*, ainsi que l'impact du confinement sur le développement de biofilm microalgal.

5. Comportement rhéologique des cultures de microalgues à haute concentration cellulaire

Les propriétés rhéologiques des suspensions de microalgues ont été peu étudiées dans la littérature. Ainsi, la comparaison entre les différentes études est difficile en raison de la variation des concentrations de biomasse, de la composition du milieu et du comportement rhéologique qui peut varier selon les souches étudiées (Bernaerts et al., 2017). Cependant, des études antérieures ont montré que la plupart des suspensions de microalgues se comportent comme une solution Newtonienne (viscosité constante quel que soit le taux de cisaillement appliqué) à de faibles concentrations en biomasse, tandis qu'au-dessus d'une certaine concentration critique, le comportement rhéologique devient non-Newtonien (viscosité apparente qui varie avec le taux de cisaillement appliqué) et ce changement varie selon les espèces de microalgues (Yap et al., 2016).

5.1. *Effet de la concentration et de la souche de microalgues*

Plusieurs études ont été réalisées sur l'effet de la concentration cellulaire sur le comportement rhéologique de différentes espèces de microalgues. D'après Souliès et al. (2013), le comportement rhéologique d'une culture de *Chlorella vulgaris* dépend de la concentration cellulaire définie sous la forme de la fraction volumique en biomasse ou de la concentration massique en biomasse. Ces auteurs ont montré que la culture de *Chlorella vulgaris* a un comportement Newtonien jusqu'à une concentration en biomasse sèche de 30 g.L<sup>-1</sup>, ce qui correspond à une fraction volumique de 0,115. Entre 30 et 60 g.L<sup>-1</sup> (fraction volumique entre 0,115 et 0,25), le comportement devient non-Newtonien rhéofluidifiant. Ce comportement a déjà été observé pour d'autres espèces de microalgues comme *Chlamydomonas reinhardtii* (Rafai et al., 2010), ainsi que *Scenedesmus obliquus* (Adesanya et al., 2012). Souliès et al. (2013) ont enfin montré que pour de fortes fractions volumiques (> 0,25), un comportement de fluide à seuil est observé pour la souche *Chlorella vulgaris*.

Contrairement à l'étude de Souliès et al. (2013), où le comportement non-Newtonien rhéofluidifiant n'est observé qu'à des fractions volumiques élevées, Zhang et al. (2013) ont montré que ce comportement peut être observé à faible fraction volumique pour les suspensions d'eau douce et marine de *Chlorella sp.* En effet, les suspensions d'eau douce de *Chlorella sp.* avec des fractions volumiques inférieures à 0,007 ont une viscosité effective similaire à celle du milieu de culture, montrant un comportement Newtonien, mais au-dessus et pour des fractions volumiques entre 0,007 et 0,0431, correspondant à concentrations comprises entre

1,76 et 10,86 g.L<sup>-1</sup>, un comportement rhéofluidifiant a été observé. Il convient de noter que bien que le milieu de suspension de ces deux souches algales soit différent, leurs viscosités effectives étaient presque identiques. De plus, les viscosités effectives du milieu de suspension de ces deux souches algales suggèrent qu'aucune substance visqueuse telle que des polysaccharides extracellulaires n'a été excrétée par ces deux souches algales (Sirin et al., 2013). Selon Zhang et al. (2013), les différents comportements rhéologiques de ces deux suspensions de microalgues ne peuvent être dus qu'à leurs propriétés cellulaires différentes (taille hydrodynamique des cellules et leur potentiel Zêta de surface). Ainsi, les influences de ces deux propriétés physiques sur la viscosité effective des suspensions de microalgues ont été discutées par Zhang et al. (2013) et ils ont conclu que la taille de la cellule algale a un effet prédominant sur sa charge de surface.

Adesanya et al. (2012) ont effectué une étude expérimentale du comportement rhéologique des suspensions de la microalgue *Scenedesmus obliquus*. Ils ont observé un comportement non-Newtonien rhéofluidifiant pour une concentration supérieure à 50 g.L<sup>-1</sup>. Pour expliquer ce résultat, ces auteurs ont effectué une observation microscopique de la suspension de microalgues qui a révélé la présence d'agrégats cellulaires (flocs), formés suite aux forces d'attraction de type van der Waals. Cependant, ils n'ont pas pu identifier le comportement de fluide à seuil, car la gamme des fractions volumiques étudiées était limitée.

Dans une autre étude réalisée par Wileman et al. (2012) sur les souches *Nannochloris sp.* et *Chlorella vulgaris* à différentes concentrations cellulaires (0,5 à 80 g.L<sup>-1</sup>), le comportement rhéologique observé était Newtonien jusqu'à 40 g.L<sup>-1</sup> pour toutes les souches, avec moins de 30% d'augmentation de la viscosité effective par rapport à celle du milieu nutritif. Ce n'est que lorsque la concentration augmente au-delà de 60 g.L<sup>-1</sup> que les deux suspensions présentent un comportement rhéofluidifiant.

Il est essentiel de noter que la viscosité d'une culture peut augmenter en raison de la présence d'exopolysaccharides (EPS). En effet, la formation d'EPS entraîne une augmentation rapide de la viscosité apparente et peut engendrer un comportement non-Newtonien rhéofluidifiant (Margaritis et al., 1999; Liu et al., 2016). Cette augmentation de la viscosité est liée aux longues chaînes de molécules de sucre constituant les EPS, synthétisées et excrétées par les microalgues dans leur environnement. Ces molécules d'EPS entrent en interaction avec l'eau et d'autres constituants du milieu de culture, donnant naissance à une matrice plus complexe et structurée. Ce processus favorise la formation d'un réseau de type gel hydraté qui limite la mobilité des

cellules et induit un comportement non-Newtonien (Bernaerts et al., 2018). Lupi et al. (1994) ont montré dans leur étude que la viscosité de la suspension de *Botryococcus braunii* UC 58 est passée de 0,001 Pa.s à 3 Pa.s sur une période de croissance de 40 jours avec la présence d'EPS.

Pour résumer, les paramètres clés qui influencent les propriétés rhéologiques des suspensions d'algues comprennent : (i) la concentration cellulaire qui affecte le paramètre « facteur de compacité » (le facteur de compacité est défini comme le rapport du volume des solides au volume total de la suspension de particules), (ii) le comportement rhéologique de la phase liquide qui est affecté par la température et la teneur en composés solubles et substances polymères, (iii) les propriétés viscoélastiques des cellules de microalgues, (iv) les propriétés de surface des cellules de microalgues entre elles et avec les parois (qui les entourent) qui sont affectées par les propriétés de surface inhérentes (ces propriétés comprennent la charge de surface, les forces de Van der Waals et les interactions acide-base des cellules) ainsi que le pH et la force ionique de la phase liquide (Wileman et al., 2012).

Dans cette thèse, les propriétés rhéologiques (Newtonienne ou non-Newtonienne rhéofluidifiante selon la concentration cellulaire) de la souche de microalgue *Chlorella vulgaris* seront mimées par des fluides modèles pour étudier l'influence des paramètres rhéologiques sur l'hydrodynamique locale et globale et le transfert de matière gaz-liquide à l'intérieur d'une colonne à bulles confinée.

### *5.2. Fluides modèles pour mimer le comportement rhéologique d'une haute concentration de microalgues*

Il est important de choisir les bons fluides modèles pour simuler le plus fidèlement possible les propriétés rhéologiques d'une suspension de microalgues et donc comprendre l'effet de ces propriétés sur l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée. Dans cette étude, des solutions modèles de glycérol et de gomme xanthane (XG) sont utilisées pour simuler la culture de la microalgue *Chlorella vulgaris*. Dans un premier lieu, l'effet de la viscosité d'une phase liquide Newtonienne est étudié en utilisant une solution concentrée de glycérol à 50% m/m. Ensuite, deux solutions de gomme xanthane (XG) à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup> sont utilisées pour mimer le comportement rhéofluidifiant d'une culture de *Chlorella vulgaris* à une concentration cellulaire entre 30 et 40 g.L<sup>-1</sup>.

- Les solutions aqueuses de glycérol

Le glycérol, également connu sous le nom de glycérine ou propane-1,2,3-triol, est un composé organique de formule chimique  $C_3H_8O_3$ . Les solutions aqueuses de glycérol sont largement utilisées dans les études expérimentales des écoulements visqueux. Par exemple, Olivieri et al. (2011) ont étudié les effets de la viscosité, la tension superficielle et le temps de relaxation sur l'hydrodynamique dans une colonne à bulles à l'échelle laboratoire et dans un réacteur de type *airlift*. Ruzicka et al. (2003) ont étudié expérimentalement l'effet de la viscosité du liquide sur la stabilité du régime homogène pour les solutions aqueuses de glycérol de viscosité modérée. Récemment, Thobie et al. (2017) ont caractérisé l'hydrodynamique globale et le transfert de matière gaz-liquide dans une colonne à bulles confinée ( $e = 4$  mm) destinée à la culture de microalgues. Pour simuler la présence de microalgues, la viscosité du liquide est ajustée avec des solutions aqueuses de glycérol à 10% et 50% m/m.

- Les solutions aqueuses de gomme xanthane (XG)

La gomme de xanthane est un polysaccharide anionique extracellulaire, hydrosoluble et de haut poids moléculaire, produit par la fermentation de la bactérie *Xanthomonas campestris*. Elle est constituée d'une chaîne principale de cellulose qui porte un branchement latéral tous les 2 glucoses. La solution aqueuse de XG est très visqueuse même à faible concentration. En effet, la gomme xanthane présente des propriétés d'écoulement particulières avec un comportement prononcé rhéofluidifiant, en raison de sa conformation rigide en forme de tige. Les solutions aqueuses de XG présentent souvent une viscosité apparente exceptionnellement élevée avec une limite d'élasticité, même à faible concentration.

Pour simuler le comportement rhéologique de microalgue à haute concentration cellulaire, Almani (2021) a utilisé la XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  et le CMC à  $2 \text{ g.L}^{-1}$  dans une étude expérimentale et numérique de l'hydrodynamique et du transfert de matière gaz-liquide dans une colonne à bulles confinée ( $e = 4$  mm). De même, des solutions de XG ( $1$  à  $5 \text{ g.L}^{-1}$ ) ont été utilisées par Fransolet et al. (2005) pour étudier l'influence de comportement non-Newtonien sur le taux de vide et les régimes d'écoulement dans les colonnes à bulles.

6. Production de biomasse en photobioréacteur

6.1. *Paramètres influençant la croissance des microorganismes photosynthétiques dans un PBR*

Les microalgues ont de nombreux besoins pour leur croissance. Plusieurs paramètres physico-chimiques ont une influence sur la productivité de la biomasse dans un PBR tels que la lumière, l'apport en nutriments (dont le carbone inorganique), la température, le pH, la salinité, et en oligoéléments. En plus, l'hydrodynamique du système de culture joue un rôle important pour l'optimisation de la production de biomasse en PBR.

6.1.1. *La lumière*

La lumière est l'un des principaux paramètres qui influencent la croissance photosynthétique des microalgues. Etant donné que ces microorganismes se développent photosynthétiquement, l'intensité lumineuse est l'un des facteurs limitants les plus importants qui affectent leur croissance (Pruvost et al., 2017). Le rayonnement utile à la photosynthèse, appelé rayonnement photosynthétique actif « PAR » (ou Photosynthetically Active Radiation), a des longueurs d'onde comprises entre 400 et 700 nm, ce qui correspond, plus au moins, à la plage des longueurs d'onde de la lumière visible (Richmond and Hu, 2013).

Dans les PBRs, cette énergie photonique est distribuée d'une façon hétérogène et ceci quelles que soient la géométrie, la concentration en biomasse, la densité de flux incidente et les conditions hydrodynamiques. Ceci est dû aux phénomènes d'absorption et de diffusion de la lumière par les microorganismes. La quantité de lumière disponible pour chaque microorganisme est donc différente de la densité de flux incidente appliquée en surface du PBR. Il en résulte que les productivités du PBR sont directement dépendantes des conditions de transfert radiatif au sein de la culture (Takache, 2010). Deux grandeurs caractéristiques sont couramment utilisées pour décrire l'apport de lumière : l'irradiance locale ( $G$ ) et le flux lumineux incident ( $q_0$ ). Il existe une valeur d'irradiance appelée irradiance de compensation ( $G_c$ ) en dessous de laquelle le phénomène de respiration est majoritaire sur les réactions photosynthétiques et une irradiance appelée irradiance de saturation ( $G_{sat}$ ) au-dessus de laquelle apparaît le phénomène de photoinhibition (Thobie, 2018).

6.1.1.A. Régimes de fonctionnement des PBRs

Pour définir le régime de fonctionnement du PBR, la fraction volumique éclairée «  $\gamma$  », qui est liée à la profondeur nécessaire à l'extinction totale du flux lumineux incident, constitue un paramètre important (Takache, 2010). En prenant en considération l'atténuation lumineuse et en partant de la définition du point de compensation pour un microorganisme photosynthétique, le réacteur de volume réactionnel  $V_R$  peut être divisé en un volume éclairé «  $V_l$  » et un volume sombre «  $V_d$  ». Dans ce cas,  $\gamma$  est définie par l'équation suivante (I.4) :

$$\gamma = \frac{V_l}{V_R} = \frac{z(G_c)}{e} \quad (\text{I.4})$$

avec  $z(G_c)$  est la profondeur recevant une irradiance supérieure à  $G_c$  et  $e$  est l'épaisseur du réacteur plan.

Ainsi, trois régimes de fonctionnement des PBRs ont été identifiés par Pruvost et Cornet (2012) et sont représentés dans la figure I.8 :

- Régime photolimité ( $\gamma < 1$ ) (Figure I.8a) : C'est le cas où la culture est en photolimitation avec l'apparition de zones sombres (avec  $G(z) < G_c$ ) ; la respiration prédomine la photosynthèse, ce qui engendre une perte de productivité.
- Régime luminostat ( $\gamma = 1$ ) (Figure I.8b) : C'est le cas où la culture est totalement éclairée ( $V_R = V_l$ ), il n'y a donc pas de zones sombres avec  $G_c$  localisé exactement au fond du réacteur  $z(G_c) = e$ . Ce régime est donc l'idéal pour la production de biomasse, étant donné que la productivité volumique maximale «  $P_{v,max}$  » (voir la définition dans la partie 6.2.4) est atteinte.
- Régime cinétique ( $\gamma > 1$ ) (Figure I.8c) : C'est le cas où l'intensité lumineuse est très élevée et/ou la concentration en biomasse est trop faible. Dans ce cas, le point de compensation  $z(G_c)$  est situé en-dehors du  $V_R$  du PBR. Ce régime est caractérisé par une transmission d'une partie de la lumière reçue au travers du PBR qui mène donc à des faibles performances, dues à une absorption incomplète de l'énergie disponible (Pruvost et Cornet, 2012).

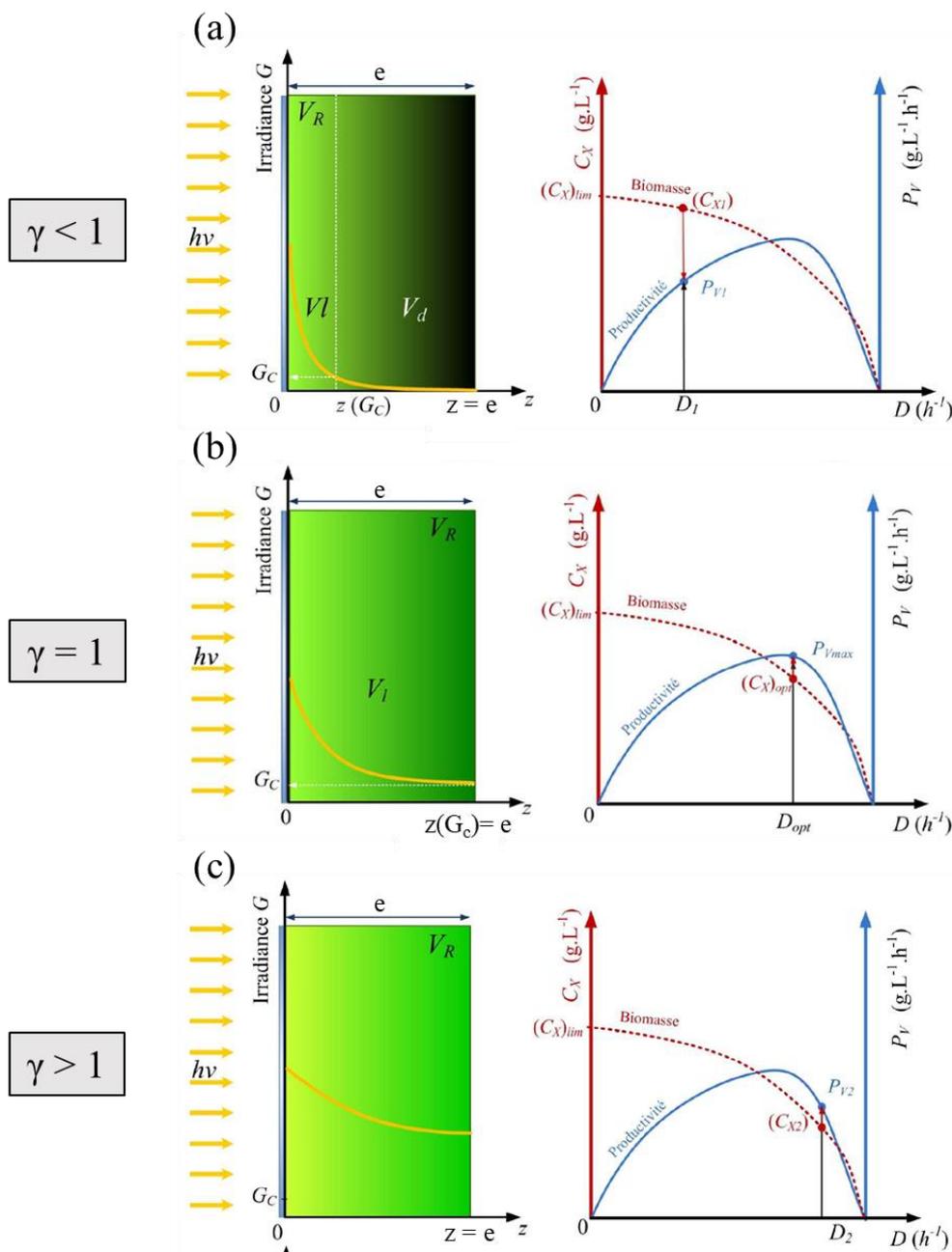


Figure I. 8 : Représentation des différents régimes de fonctionnement rencontrés lors de la culture des microalgues (eucaryotes) en PBR. Les schémas à gauche représentent une vue latérale d'un PBR rectangulaire éclairé d'un seul côté. Les graphes à droite illustrent la productivité et la biomasse correspondante pour chaque mode de fonctionnement en fonction du taux de dilution : (a) culture photolimitée, (b) culture en régime luminostat, (c) culture en régime cinétique (Pruvost et Cornet, 2012)

### 6.1.1.B. Caractérisation de la quantité de lumière absorbée par les microalgues

Une autre manière de représenter l'atténuation de l'énergie lumineuse au sein de la culture est de travailler en vitesse volumique d'absorption des photons (Cassano et al., 1995), noté  $\langle \mathcal{A} \rangle$  ou MRPA (Mean rate of photons absorption). Le MRPA représente la vitesse spécifique

moyenne d'absorption des photons par les microalgues et prend en compte le flux lumineux reçu en surface, la composition pigmentaire ainsi que la concentration en biomasse.

Il y a deux méthodes pour calculer le MRPA : la première consiste à résoudre intégralement le champ de rayonnement dans le PBR en mesurant les propriétés radiatives de microalgues (Pruvost et al., 2008; Kandilian et al., 2016). Le MRPA peut également être déterminé en effectuant un bilan sur la phase photonique dans le volume du réacteur (Equation I.5) (Pruvost et al., 2008) :

$$\langle \mathcal{A} \rangle = \frac{a_{light}}{C_x} (q_0 - q_L) \quad (I.5)$$

où  $q_0$  et  $q_L$  représentent la densité de flux de photons, respectivement à l'entrée et à la sortie du PBR. Lorsque tout le flux lumineux est absorbé dans le PBR (c.à.d.  $q_L \cong 0$ ), cette expression peut se résumer à :

$$\langle \mathcal{A} \rangle \cong \frac{a_{light} q_0}{C_x} \quad (I.6)$$

Il faut noter que cette dernière équation est particulièrement intéressante. En effet, il est possible de déterminer le MRPA, en connaissant simplement le flux lumineux reçu à la surface du PBR, la concentration en biomasse (mesurée en biomasse sèche) et l'épaisseur de la culture. Cela permet de travailler dans les conditions optimales de croissance pour chaque souche de microalgues.

Artu (2016) a mené de multiples campagnes expérimentales avec la microalgue *Chlorella vulgaris* soumise de manière constante ou séquentielle à différentes valeurs de MRPA dans différentes technologies de PBRs. Ces travaux ont permis de déterminer des gammes de MRPA favorisant la conversion de la lumière en biomasse (et donc la productivité), tout en garantissant la robustesse de la production (maintien de la culture dans le temps sans risques de perte). Ces différentes gammes de MRPA sont illustrées dans la figure I.9. Cette figure montre que la productivité maximale en biomasse est observée pour une gamme de MRPA comprise entre 8 et 15  $\mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ . Au-delà de 15  $\mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ , la productivité de la biomasse reste constante, jusqu'à une valeur de MRPA égale à 30  $\mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ . Ensuite, une légère diminution se produit. De même, baisser le MRPA en dessous de 8  $\mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  n'a pas pour effet d'augmenter l'efficacité de conversion des photons en biomasse (Artu, 2016).

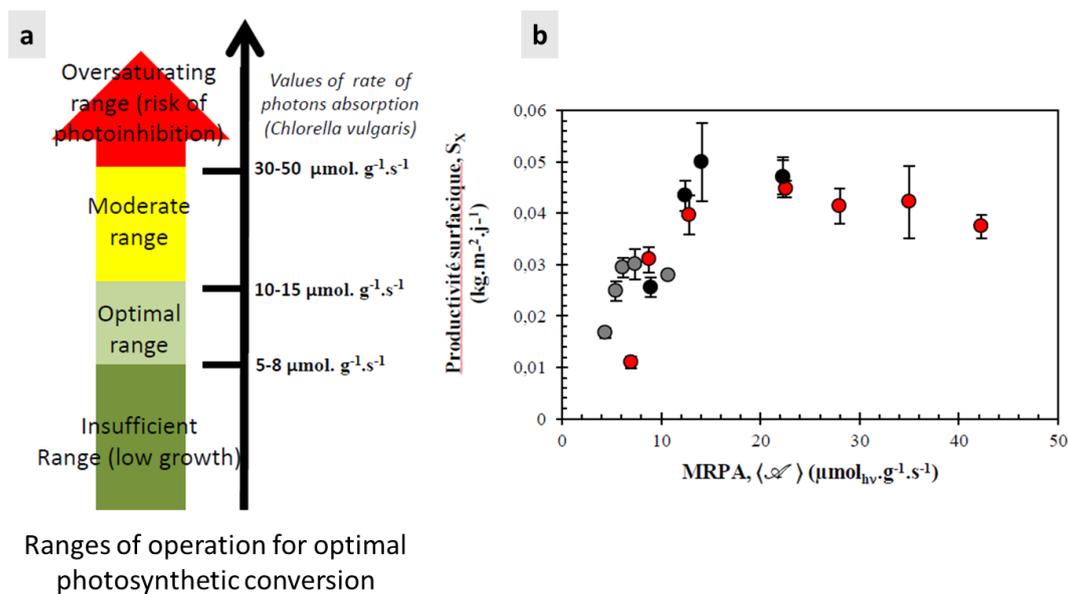


Figure I. 9 : (a) Différentes plages de MRPA pour la microalgue *C. vulgaris*, (b) Evolution de la productivité en fonction du MRPA (en rouge  $D=0,05 \text{ h}^{-1}$ , en gris  $q_0=270 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  et en noir  $q_0=760 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) (Artu, 2016)

### 6.1.2. Effet de la température

La température est un facteur crucial influant sur l'activité photosynthétique des microalgues et des cyanobactéries. La vitesse de croissance augmente avec l'augmentation de la température jusqu'à une limite au-dessus de laquelle il y a réchauffement de la culture ce qui provoque des limitations dans l'absorption des nutriments et affecte la photosynthèse (Sayed and Elshahed, 2000). La température est également importante pour la dissociation des molécules contenant du carbone et permet alors la disponibilité de ce dernier pour la photosynthèse (Bitog et al., 2011). Pour *Chlorella vulgaris*, la température optimale de croissance se situe entre 20 et 25°C (Converti et al., 2009).

### 6.1.3. Effet du pH

Le pH dépend de la composition chimique du milieu et peut évoluer fortement avec la consommation des espèces carbonatées (Breuer et al., 2013). Par exemple, la microalgue *Chlorella vulgaris* croît pour des pH compris entre 5 et 9, avec un pH optimal compris entre 7 et 8 (Richmond, 2004). Dans les PBRs, le pH peut être réglé automatiquement par injection du  $\text{CO}_2$  ou par ajout de bicarbonate lorsque le pH dépasse sa valeur optimale (Takache, 2010).

#### 6.1.4. Concentration en oxygène dissous

L'oxygène est produit lors de la photosynthèse des microalgues. Des taux d'oxygène dissous de 100% à 400% celui de la saturation en air dans l'eau, voire plus, sont couramment observés dans les cultures de microalgues (Peng et al., 2013). Cette forte concentration en O<sub>2</sub> peut constituer un facteur d'inhibition pour la croissance des microalgues, notamment en provoquant la dissipation de l'énergie lumineuse par photorespiration, en inhibant les enzymes des voies photosynthétiques et en endommageant l'appareil photosynthétique, les structures membranaires, l'ADN et d'autres composants cellulaires. Costache et al. (2013) ont démontré que, pour *Scenedesmus almeriensis*, une concentration d'O<sub>2</sub> dissous proche de la saturation (9 mg.L<sup>-1</sup>) accélère la vitesse de la photosynthèse. Or, à des concentrations d'O<sub>2</sub> dissous plus élevées, le taux de photosynthèse a diminué de manière exponentielle jusqu'à atteindre zéro à 32 mg.L<sup>-1</sup> (355 % de la saturation). Il a été observé que jusqu'à des valeurs de 23 mg.L<sup>-1</sup> (250 % de la saturation), le taux de photosynthèse ne diminuait que de 20 % par rapport à son niveau maximal observé. Les mêmes résultats ont été obtenus pour *Nanochloropsis sp* (Raso et al., 2012). Kazbar et al. (2019) ont montré qu'une concentration en oxygène dissous supérieure à 30 mg.L<sup>-1</sup> s'est avérée avoir un effet négatif sur la croissance de microalgue *Chlorella vulgaris*, cultivée dans un PBR torique ( $q_0 = 250 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  et un taux de dilution  $D = 0,02 \text{ h}^{-1}$ ), avec une diminution de 30 % de la productivité surfacique par rapport à sa valeur maximale observée.

Au final, l'avantage d'avoir des productivités élevées en biomasse peut être réduit par l'accumulation d'O<sub>2</sub> dissous. Afin de régler ce problème, des systèmes de bullage avec un transfert gaz-liquide efficace sont alors nécessaires.

#### 6.1.5. Milieu de culture

La croissance photosynthétique est dépendante des nutriments (CID « carbone inorganique dissous » et minéraux) dont la nature varie selon la souche cultivée (Pruvost et al., 2017). Pour établir de bonnes conditions de croissance, tous les composés chimiques nécessaires à la croissance de la biomasse doivent être dissous dans le milieu de culture. L'ajout de ces nutriments à la culture a un impact sur le pH et la salinité (Todisco, 2019). Les microalgues exigent un milieu de culture riche en carbone inorganique, en macronutriments (N, P, S) et micronutriments (K, Mg, Ca, Mn, Cu, Fe...).

Le carbone est requis sous forme de  $\text{CO}_3^{2-}$  ou de  $\text{HCO}_3^-$  lorsque la culture se fait en mode autotrophie, ce qui permet d'atteindre des rendements élevés en biomasse. Le  $\text{CO}_2$  gazeux n'est en effet pas assimilé par les microalgues, il doit donc être injecté dans le milieu de culture pour dissolution. La réaction de dissolution forme différentes espèces carbonées qui dépendent du pH comme le montre la figure I.10.

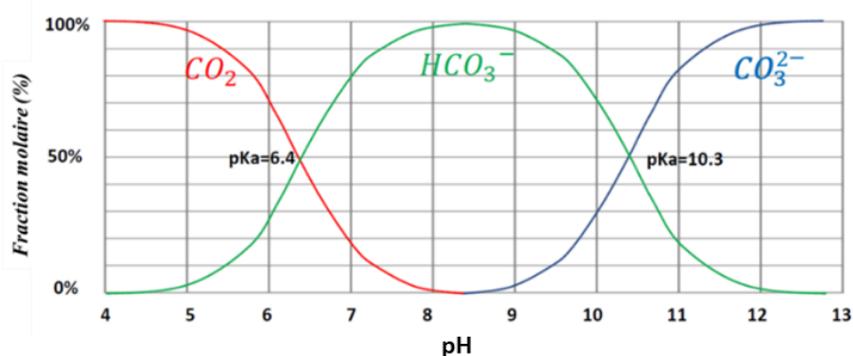


Figure I. 10 : Évolution des différentes espèces carbonées dissoutes en fonction du pH du milieu (Le Gouic, 2013)

Plusieurs espèces peuvent donc se retrouver dans le milieu ( $\text{CO}_2$  dissous, anions bicarbonates  $\text{HCO}_3^-$  et anions carbonate  $\text{CO}_3^{2-}$ ). Quelle que soit l'espèce transportée à l'intérieur de la cellule *via* la membrane cellulaire, elle se retransforme naturellement en  $\text{CO}_2$  du fait du pH intracellulaire, afin d'être fixée par le cycle de Calvin (Equation I.7).



Le  $\text{CO}_2$  utilisé pour la photosynthèse fait que l'ion  $\text{OH}^-$  s'accumule dans la culture, donc une conséquence de la photosynthèse est l'augmentation du pH. L'ajout de  $\text{CO}_2$  directement à la culture vise également à réduire le pH.

L'azote est le deuxième nutriment le plus important car il contribue à la synthèse de la matière vivante (protéines, chlorophylle, enzymes...). C'est un des constituants de la chlorophylle qui commande l'opération fondamentale de la photosynthèse. Les réponses typiques à la limitation de l'azote sont la décoloration de la culture et l'accumulation de composés de carbone organique. Il est généralement fourni sous forme de nitrate ( $\text{NO}_3^-$ ) ou nitrite ( $\text{NO}_2^-$ ) mais souvent l'ammoniac ( $\text{NH}_4^+$ ) ou l'urée sont utilisés.

Le phosphore est essentiel dans de nombreux processus cellulaires, tels que le transfert d'énergie et la biosynthèse des acides nucléiques. Il est généralement fourni sous forme d'orthophosphate ( $\text{PO}_4^{2-}$ ).

Le soufre est un élément constitutif de beaucoup de protéines, puisqu'il entre dans la composition des acides aminés essentiels (la méthionine et la cystéine par exemple), qui sont responsables de la structure tridimensionnelle des protéines grâce aux liaisons « ponts disulfure » qu'ils engendrent.

Pour les micronutriments (K, Mg, Ca, Mn, Cu, Fe), ils doivent avoir une concentration inférieure à 10 mg.g<sup>-1</sup> de biomasse. Certains d'entre eux interviennent au niveau des réactions biochimiques au sein de la cellule tout en remplissant des rôles de cofacteurs enzymatiques. Par exemple, le fer est un élément indispensable à la synthèse du pigment chlorophyllien assurant la photosynthèse. De la même manière, le magnésium est un constituant des chlorophylles. Tout manque de ces deux éléments affecte directement l'activité photosynthétique de la cellule. Quant au calcium, c'est un élément constitutif de la paroi cellulaire.

Il est donc important de définir la composition des milieux de culture afin de garantir une croissance optimale des microalgues, ce qui permet d'éviter toute limitation nutritive.

#### *6.1.6. Hydrodynamique dans les PBRs*

L'hydrodynamique a un rôle important pour assurer l'homogénéité de la culture et les transferts de matière, de chaleur et de lumière (Pruvost et al., 2008). En particulier, il est indispensable que l'hydrodynamique garantisse un mélange et un transfert de matières suffisants pour assurer une exposition régulière des microorganismes aux zones éclairées, éviter la limitation en nutriments, notamment en carbone inorganique, ainsi qu'une inhibition due à une concentration locale trop élevée en oxygène. Cependant, une mauvaise maîtrise de l'hydrodynamique peut favoriser la formation de biofilm ou d'agrégats de cellules. Ceci est d'autant plus vrai que la concentration cellulaire est importante et que le milieu est confiné.

Il faut cependant noter que les conditions hydrodynamiques pourront avoir un impact direct sur la vitalité des cellules considérées comme fragiles aux cisaillements générés par l'agitation (Takache, 2010). En effet, la bonne capacité de mélange et de transfert gaz-liquide ne doit toutefois pas engendrer des conditions de stress hydrodynamique pour les cellules (Muller-Feuga et al., 2003; Richmond, 2004). Certains microorganismes photosynthétiques sont particulièrement sensibles aux forts cisaillements, ce qui fait des conditions hydrodynamiques un paramètre critique (Wu and Merchuk, 2001; Barbosa et al., 2004). C'est pour cette raison que les PBRs fonctionnent généralement en régime homogène à faibles vitesses superficielles

de gaz, ce qui présente l'avantage d'un faible cisaillement, surtout pour les souches de microalgues fragiles (Sánchez Mirón et al., 2000).

## 6.2. Modes de culture dans les PBRs

Il existe différents modes de culture de microalgues ; le choix dépend de l'application et de l'installation.

### 6.2.1. Mode batch (ou discontinu)

Une culture en discontinu (ou en batch) est une culture durant laquelle aucun substrat, à l'exception de la lumière et du CO<sub>2</sub>, ne sera introduit dans le réacteur. C'est un système fermé sans alimentation ni soutirage. La récolte est généralement réalisée lorsque la productivité baisse en raison de l'apparition des zones sombres dans le réacteur, généralement pendant la phase stationnaire ( $t_{final}$ ), définie comme la phase où la concentration en biomasse cesse d'augmenter de manière significative (Takache, 2010).

Au début de la culture ( $t_{initial}$ ), le PBR est d'abord rempli avec l'inoculum, le milieu de culture est ajouté et le CO<sub>2</sub> pur est ajouté en continu ou à la demande, suivant l'évolution du pH. La productivité volumique  $P_v$  (g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup>) en mode batch est donnée par l'équation suivante (I.8) :

$$P_v = \frac{C_{x(finale)} - C_{x(initiale)}}{t_{final} - t_{initial}} \quad (I.8)$$

avec  $C_{x(finale)}$  est la concentration en biomasse finale (g.L<sup>-1</sup>) à un temps  $t_{final}$  (j) ;  $C_{x(initiale)}$  est la concentration en biomasse initiale (g.L<sup>-1</sup>) à un temps  $t_{initial}$  (j).

Les cultures en mode discontinu sont largement utilisées pour la production commerciale des microalgues, grâce à la facilité de leur mode opératoire et la simplicité des systèmes de suivi de la culture (Takache, 2010).

### 6.2.2. Mode semi-continu

Ce mode consiste à récolter périodiquement la culture et à la remplacer ponctuellement par du milieu neuf ; c.à.d. il y a une entrée et une sortie temporaires, mais non continues dans le temps. Ce mode de culture est aussi souvent utilisé industriellement ; une récolte partielle a ainsi lieu tous les 3 à 10 jours et le volume soutiré est remplacé par du milieu neuf pour une

nouvelle production et un nouvel apport en nutriments, maintenant ainsi un volume de culture constant.

Ce mode de culture sera utilisé dans cette thèse dans deux PRRs de type colonne à bulles confinée pour la culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* (plus de détails dans le chapitre II, Partie C.7).

### *6.2.3. Mode fed-batch*

Dans ce cas, le milieu est ajouté en continu ou par intermittence. La récolte se fait périodiquement. Le volume de culture n'est donc pas constant. Au début de la culture, le PBR est rempli d'un volume opératoire significativement inférieur à celui attendu au temps final. Ensuite, la croissance cellulaire est suivie comme pour un mode discontinu. Lorsque la culture atteint l'état requis, du milieu neuf sera ajouté dans le PBR et un deuxième batch va démarrer. Ceci peut être répété autant de fois que le volume du PBR et le pourcentage de remplissage le permettent. Ce mode de culture est largement utilisé dans l'industrie car il optimise la productivité de la biomasse et ne nécessite aucun retrait de substrat.

### *6.2.4. Mode continu*

En mode continu, le réacteur sera alimenté en permanence par du milieu neuf contenant les nutriments. Cela nécessite d'effectuer un soutirage afin de garder un volume et un taux de dilution constants dans le PBR. Le soutirage peut être effectué selon deux modes de fonctionnement (chemostat ou turbidostat) et suivant le débit d'alimentation en milieu neuf : Le mode chemostat correspond au mode continu pour lequel le milieu neuf est injecté en permanence avec un débit fixe  $Q_e$  (débit imposé par la pompe d'alimentation). En régime stabilisé (volume réactionnel constant),  $Q_e$  est égal au débit de sortie de soutirage  $Q_s$  (en utilisant une pompe de soutirage ou par trop plein). Le mode turbidostat est obtenu par fixation de la concentration en biomasse dans le réacteur alors mesurée en ligne. Ce mode est caractérisé par un débit variable dépendant de la concentration en biomasse (estimée en général par la turbidité du milieu, d'où le nom de turbidostat).

En culture continue, lorsqu'un état stationnaire est atteint, la productivité volumique de la biomasse est calculée comme suit :

$$P_v = D \cdot C_x = \frac{C_x}{\tau_p} \quad (I.9)$$

avec  $D = \frac{Q_e}{V_R}$  est le taux de dilution ( $j^{-1}$ ) où  $Q_e$  est le débit d'alimentation en milieu neuf ( $L.j^{-1}$ ),  $V_R$  est le volume effectif de la suspension algale dans le réacteur (L) ;  $\tau_p$  (j) est le taux de renouvellement de la culture ( $\tau_p = \frac{1}{D}$ ) et  $C_x$  est la concentration de la biomasse ( $g.L^{-1}$ ).

La productivité d'un système de culture est une grandeur largement utilisée pour caractériser ses performances et comparer différents systèmes entre eux. Deux productivités peuvent être définies en culture de microorganismes photosynthétiques : la productivité volumique  $P_v$  (équation I.9) et la productivité surfacique  $S_x$  définie ainsi :

$$S_x = P_v \frac{V_R}{S_{light}} = \frac{P_v}{a_s} \quad (I.10)$$

Pour un flux lumineux donné,  $P_v$  varie en fonction du taux de dilution  $D$  : elle augmente jusqu'à une valeur maximale,  $P_{v,max}$ , pour un taux de dilution optimal noté,  $D_{opt}$ . Toutefois, si  $D$  dépasse cette valeur,  $P_v$  diminue progressivement. À des niveaux élevés de  $D$  ( $D \gg D_{opt}$ ), la microalgue ne dispose pas suffisamment de temps pour se reproduire, ce qui entraîne une perte graduelle de biomasse et un « lessivage » du PBR (Figure I.11). Ainsi, la productivité volumique maximale,  $P_{v,max}$ , peut être déterminée expérimentalement en utilisant l'équation suivante :

$$P_{v,max} = C_{x,opt} D_{opt} \quad (I.11)$$

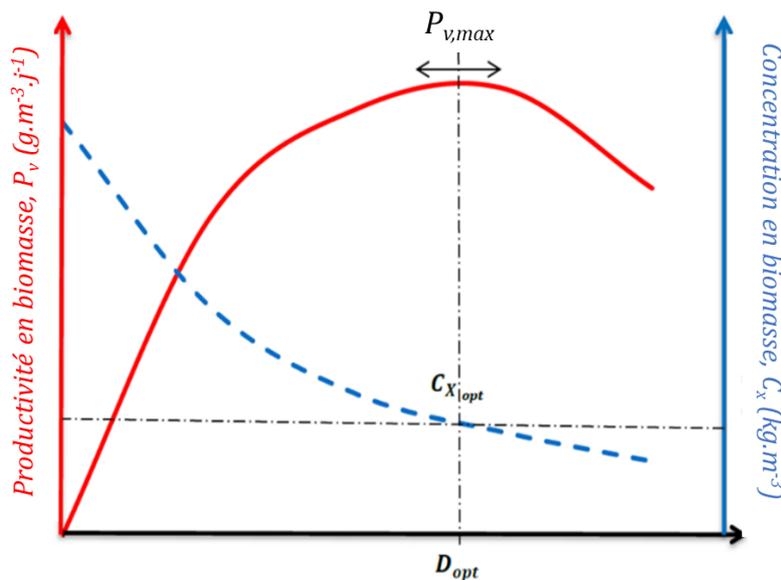


Figure I. 11 : Évolution de la productivité volumique et la concentration cellulaire en fonction du taux de dilution en mode continu (Le Borgne, 2011)

En régime permanent, la condition optimale de dilution ( $D_{opt}$ ), qui permet d'obtenir cette valeur de productivité volumique maximale  $P_{v,max}$ , correspond soit au mode luminostat (pour les microalgues avec  $\gamma = 1$ ), soit au régime de photolimitation (pour les procaryotes avec  $\gamma < 1$ ).

## 7. Conclusion de l'étude bibliographique sur les microalgues et les photobioréacteurs

Cette partie met en évidence le potentiel prometteur des microalgues pour diverses applications, grâce à leur aptitude à synthétiser des éléments organiques essentiels tels que protéines, glucides (amidon, sucre, glucose, polysaccharides) et lipides, avec des proportions variant selon les espèces. Ces microorganismes photosynthétiques contiennent également des pigments tels que les caroténoïdes et les phycobiliprotéines. Cette étude bibliographique des systèmes de culture de microalgues, présentés dans la littérature, offre un aperçu des technologies existantes, de leurs avantages et de leurs limites. En outre, cette étude met clairement en évidence l'importance d'intensifier les conditions de culture afin d'augmenter la productivité et de réduire les coûts de production, en réduisant l'épaisseur de la culture. Toutefois, il convient de noter que cette intensification pourrait engendrer des défis potentiels tels que la formation de biofilms sur les parois des photobioréacteurs, réduisant l'intensité lumineuse absorbée par les cellules et donc la productivité en biomasse. De plus, les conditions de culture intensifiées auront des impacts sur l'hydrodynamique, avec une dynamique particulière due au confinement et à l'augmentation de la viscosité de la phase liquide (liée à la concentration en microalgues). La prochaine partie de ce chapitre (Partie B) présentera un état de l'art de l'hydrodynamique et le transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles classiques et confinées.

## **PARTIE B : Hydrodynamique et transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles conventionnelles et confinées**

### 1. Définition et présentation de colonnes à bulles

Par définition, les colonnes à bulles sont des systèmes diphasiques gaz-liquide dans lesquels un gaz est dispersé, à travers un diffuseur, dans une phase liquide (Shaikh and Al-Dahhan, 2007). Ces systèmes sont essentiellement sous forme des cuves cylindriques ou rectangulaires avec un distributeur de gaz au fond. Dans ces systèmes, le gaz peut être injecté sous forme de bulles dans une phase liquide ou dans une suspension solide-liquide (Figure I.12) (Kantarci et

al., 2005). Les colonnes à bulles offrent de nombreux avantages : bonnes caractéristiques de transfert de chaleur et de matière, absence de pièces en mouvement (faible consommation d'énergie), facilité d'utilisation, faibles coûts d'exploitation et de maintenance et capacité de fonctionner avec de très fines particules (<100  $\mu\text{m}$ ).

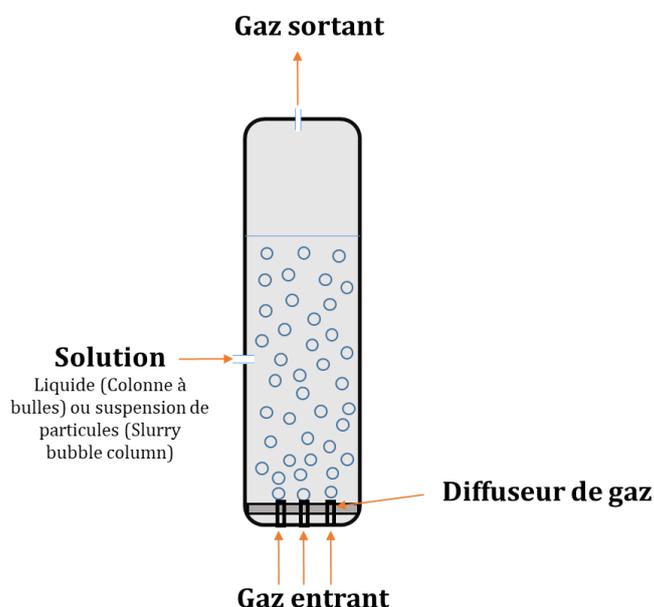


Figure I. 12 : Principe du fonctionnement de la colonne à bulles

## 2. Applications des colonnes à bulles

Les colonnes à bulles diphasiques sont largement utilisées dans les industries pétrochimiques, biochimiques, chimiques et biotechnologiques en raison des avantages qu'elles présentent au niveau de la conception et du fonctionnement. Les colonnes à bulles de grande taille peuvent être utilisées dans les industries chimiques pour les procédés suivants : hydrogénations, oxydations, halogénations, hydro-halogénations, réaction de Fisher-Tropsch, ozonation, carboxylations, alkylations, etc. (Roudet, 2008). En ce qui concerne les réacteurs de petite taille, tels que les milli-réacteurs, une avancée notable au cours des dix dernières années a été l'utilisation de monolithes dans les domaines des écoulements à bulles confinés pour la chimie réactionnelle. L'exemple industriel le plus connu de ces réacteurs est celui de l'hydrogénation de l'antraquinone, une molécule appartenant à la famille des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), qui est cruciale dans la production de peroxyde d'hydrogène, un processus mis en œuvre par la société Akzo-Nobel (Roudet, 2008).

### 3. Photobioréacteurs de type colonne à bulles

Les photobioréacteurs fonctionnant comme des colonnes à bulles semblent actuellement la technologie la plus prometteuse pour la culture de microalgues à grande échelle (Pawar, 2016; Huang et al., 2017). Les PBRs de type colonnes à bulles sont également conçus pour permettre un meilleur contrôle des conditions de culture, éviter la contamination et permettre l'ajustement de facteurs tels que le pH, la concentration et l'injection de gaz, la température et les nutriments) (Shuba and Kifle, 2018). A titre d'exemple, cette technologie de PBRs est actuellement exploitée par la société MicroBio Engineering Inc., San Luis Obispo (États-Unis) (Figure I.13) qui travaille sur le développement de la technologie des microalgues. Ce système « Le MBE Bubble Column Array PBR » comprend quatorze réacteurs à colonne de verre (800 mL), permettant plusieurs conditions expérimentales simultanées.



Figure I. 13 : PBR de type réseau de colonnes à bulles (MicroBio Engineering Inc., San Luis Obispo, États-Unis <https://microbioengineering.com/>)

### 4. Hydrodynamique dans les colonnes à bulles conventionnelles

L'hydrodynamique d'un système diphasique dépend de plusieurs facteurs à savoir la géométrie, les dimensions du réacteur et le type d'injection (Sarraf et al., 1999; Ruzicka et al., 2001; Simonnet, 2005), les conditions de fonctionnement (Krishna et al., 1991; Wilkinson et al., 1992; Reilly et al., 1994; Letzel et al., 1997; Besagni et al., 2017a) et les propriétés physico-chimiques des fluides (Loubière and Hébrard, 2004; Mouza et al., 2005; Besagni and Inzoli, 2017).

Dans des colonnes à bulles classiques (non confinées), de nombreuses études expérimentales et numériques ont été réalisées (Olmos et al., 2003a). La plupart de ces travaux

ont été menés dans une phase liquide Newtonienne, traitant des études paramétriques telles que le taux de vide, les transitions entre les régimes d'écoulement, le temps de mélange et le coefficient de transfert de matière gaz-liquide. Ces études dans des conditions non confinées et Newtoniennes permettent à l'heure actuelle une bonne caractérisation de l'hydrodynamique (Olmos et al., 2003a) avec des prédictions numériques satisfaisantes de l'écoulement (Olmos et al., 2001; Talvy et al., 2007; Simonnet et al., 2008). D'autre part, des études se sont intéressées à étudier les effets du comportement non-Newtonien sur la dynamique des bulles, le mélange et le transfert gaz-liquide dans ces colonnes (Esmaeili et al., 2015; Jamshidi and Mostoufi, 2018).

En général, plusieurs paramètres gouvernent l'hydrodynamique et les performances d'une colonne à bulles en tant que réacteur/bioréacteur :

- Détermination du taux de vide global ;
- Identification des régimes d'écoulements et de leurs transitions ;
- Détermination du temps de mélange ;
- Caractérisation globale du transfert de matière gaz-liquide.

### 4.1. Taux de vide

Le taux de vide,  $\varepsilon_G$ , est l'un des paramètres les plus importants caractérisant le mode de fonctionnement des réacteurs comme les *airlifts* et les colonnes à bulles. Il est défini comme le rapport entre le volume de gaz et le volume total. Ce paramètre est fonction de la géométrie de la colonne, des conditions opératoires, des propriétés physiques des deux phases et de l'injection qui vont gouverner la dynamique des bulles. À un débit de gaz donné, le taux de vide est lié au temps de séjour des bulles dans le réacteur et détermine - en combinaison avec la distribution de la taille des bulles – la surface spécifique d'échange 'a' et impacte alors fortement le mélange et le transfert de matière gaz-liquide.

L'influence des propriétés physico-chimiques de la phase liquide, de la géométrie du PBR et des conditions d'injection sur le taux de vide est présentée en détail dans l'annexe I.

### 4.2. Les régimes d'écoulement et leurs transitions

Dans les colonnes à bulles, l'hydrodynamique peut être décrite en premier lieu par l'identification des régimes d'écoulement et leurs transitions (Gourich et al., 2006). En effet, ces régimes jouent un rôle essentiel dans le fonctionnement et les performances de ces

colonnes. Dans une colonne à bulles, on observe essentiellement trois régimes d'écoulement (Figure I.14) : le régime homogène, le régime transitoire et le régime hétérogène (Olmos et al., 2003b). Ces régimes sont principalement contrôlés par le débit de gaz et les propriétés de la phase liquide (Chaumat et al., 2007). Chaque régime d'écoulement est caractérisé par des phénomènes particuliers.

#### *4.2.1. Régime homogène*

Le régime homogène (Figure I.14) est généralement rencontré à de basses vitesses superficielles de gaz, quand le gaz est uniformément distribué à l'aide de plaques poreuses ou des orifices multiples. Il est caractérisé par des bulles de petits diamètres avec une dispersion spatiale uniforme. Dans ce régime, il n'y a pas d'interaction entre les bulles, leur mouvement est plus ou moins vertical. Les phénomènes de rupture et de coalescence sont donc négligeables. La taille des bulles et le taux de vide sont principalement contrôlés par le distributeur et les propriétés physico-chimiques de la phase continue (Zahradník et al., 1997; Olmos et al., 2003ab; Al-Dallal, 2016; Thobie et al., 2017; Almani, 2021).

En général, les photobioréacteurs opèrent à de faibles vitesses superficielles de gaz correspondant au régime homogène, ce qui présente l'avantage d'un faible cisaillement pour les cellules de microalgues qui pourraient autrement être endommagées (Sánchez Mirón et al., 2000).

#### *4.2.2. Régime hétérogène*

Un régime d'écoulement hétérogène (Figure I.14) est généralement observé à des vitesses superficielles de gaz relativement élevées. Il est caractérisé par une large distribution de tailles des bulles et un mouvement turbulent des deux phases liquide et gaz (Esmaeili et al., 2015; Olmos et al., 2003ab). La coalescence, très dominante dans ce régime, permet la formation de grosses bulles avec une augmentation de la vitesse superficielle de gaz. Dans ces conditions, le distributeur de gaz n'a plus d'influence sur l'hydrodynamique globale et la turbulence est gouvernée par les bulles coalescées dans la phase liquide (Gourich et al., 2006).

#### *4.2.3. Régime transitoire*

Selon les conditions de fonctionnement, ces deux régimes (homogène et hétérogène) peuvent être séparés par un régime de transition (Figure I.14). Ce dernier est caractérisé par un phénomène de coalescence qui aboutit à l'apparition d'une population polydispersée et de

grosses bulles qui se situent préférentiellement dans la zone centrale de la colonne (Chen et al., 1994; Olmos et al., 2003ab). Il est important de noter que deux régimes de transition ont déjà été observés par Olmos (2002) et Lin et al. (1998) dans des colonnes à bulles conventionnelles de différentes épaisseurs (Figure I.14), ainsi que dans une colonne à bulles confinée (4 mm d'épaisseur) notamment lors des travaux de Thobie et al. (2017) et Almani (2021).

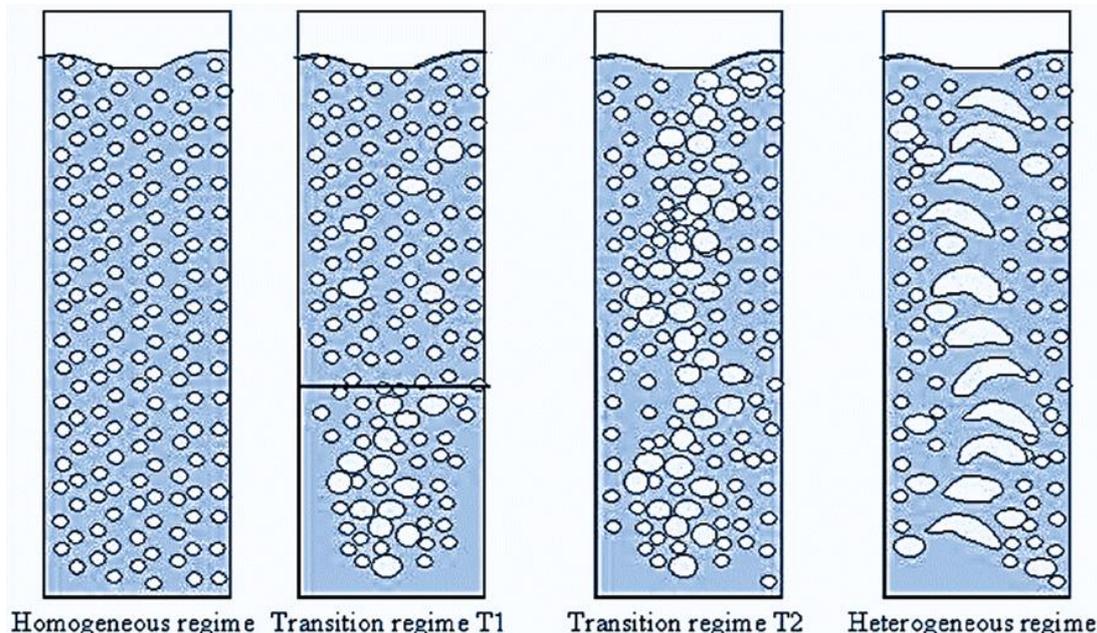


Figure I. 14 : Régimes d'écoulement dans une colonne à bulles conventionnelle (Modifiée de Olmos et al., 2003)

Les différents régimes d'écoulement et leurs transitions dépendent principalement des propriétés physico-chimiques de la phase liquide, de la géométrie de la colonne, et des conditions d'injection, dont davantage de détails sont fournis dans l'annexe II.

#### 4.3. Temps de mélange

Les colonnes à bulles sont couramment utilisées dans divers domaines industriels. Une des principales raisons de ce vif intérêt réside dans le fait qu'une bonne efficacité de mélange et de transfert gaz-liquide est obtenue sans qu'il soit nécessaire de procéder à une agitation mécanique supplémentaire. Cependant, il faut savoir que prédire la qualité du mélange dans les écoulements à bulles reste difficile, principalement en raison de l'existence de différents régimes d'écoulement (Kantarci et al., 2005). Le temps de mélange est influencé par les propriétés physico-chimiques de la phase liquide, la géométrie de la colonne, et les conditions d'injection (voir annexe III).

#### 4.4. Transfert de matière gaz-liquide

Le transfert de matière gaz-liquide ont été largement étudiés dans de nombreux domaines, notamment la protection de l'environnement et l'industrie chimique (Dong et al., 2019). Le coefficient de transfert de matière volumique ' $k_{LA}$ ' est un paramètre clé dans la caractérisation et la conception des réacteurs industriels gaz-liquide agités et non agités (Jimenez et al., 2014). Le transfert de matière gaz-liquide est affecté par l'hydrodynamique globale et dépend principalement des propriétés de la phase liquide (Álvarez et al., 2000; Li et al., 2012; Thobie et al., 2017; Dong et al., 2019; Almani, 2021), des conditions opératoires, (Wilkinson et al., 1994; Maalej et al., 2003), du diamètre de la colonne (Akita and Yoshida, 1974; Deckwer and Schumpe, 1993) et de la nature du diffuseur de gaz (Koide et al., 1983; Han et al., 2017). L'étude de l'influence de ces paramètres sur le transfert de matière gaz-liquide sont présentée dans l'annexe IV.

##### 4.4.1. Les théories du transfert de matière gaz-liquide

En général, dans les échangeurs de matière gaz-liquide, le transfert se fait à travers une interface. Cette dernière permet le passage des molécules des constituants transférant d'une phase à l'autre. Cependant, il est possible de relier la densité de flux de matière  $N_A$  au gradient de concentration  $\Delta C$  (encore appelé force motrice ou potentiel d'échange) et au coefficient de transfert de matière noté  $k$  par l'équation suivante :

$$N_A = k \cdot \Delta C \quad (I.12)$$

Le mécanisme général de transfert de matière des molécules d'O<sub>2</sub> comprend deux étapes : dans la première étape, les molécules d'O<sub>2</sub> diffusent vers l'interface gaz-liquide à partir de la phase gazeuse. L'interface entre les deux phases est en équilibre, ainsi le flux de matière à travers l'interface est continu. En d'autres termes, la quantité d'O<sub>2</sub> transférée de la phase gazeuse à l'interface est égale à celle transférée de l'interface au liquide. Enfin, dans la deuxième étape, l'O<sub>2</sub> diffuse dans la phase liquide (Li et al., 2019).

Il existe plusieurs modèles pour estimer le coefficient de transfert telle que la théorie du double film (Lewis and Whitman, 1924), ou celle de la pénétration et du renouvellement de surface. La théorie du double film, largement décrite dans la littérature, est très utilisée pour décrire le transfert d'un composé gazeux en phase liquide (Figure I.15). Elle s'appuie sur plusieurs hypothèses :

- (i) La présence d'une interface sans épaisseur physique séparant les deux phases ;
- (ii) Un film se développe de chaque côté de l'interface où le transfert se fait uniquement par diffusion moléculaire ;
- (iii) Chaque film est caractérisé par un coefficient individuel de transfert,  $k_G$  du côté gaz et  $k_L$  du côté liquide ;
- (iv) A l'interface, les concentrations sont en équilibre et suivent la loi de Henry ;
- (v) A l'extérieur des deux films, les concentrations sont constantes dans tout le volume ou l'élément de volume ;
- (vi) Le transport à travers les deux films s'effectue en régime permanent (Roustan, 2003). L'équation I.13 exprime le flux transféré entre les deux phases : O<sub>2</sub>/Eau :

$$N_{O_2} = k_G(C_G - C_G^i) = k_L(C_L^i - C_L) \quad (I.13)$$

où  $N_{O_2}$  est la densité du flux de matière échangé à travers l'interface ;  $C_G$  et  $C_L$  sont les concentrations respectives d'O<sub>2</sub> dans les phases gaz et liquide ;  $C_G^i$  et  $C_L^i$  sont les concentrations respectives d'O<sub>2</sub> à l'interface côté gaz et liquide et  $k_G$  et  $k_L$  sont les coefficients de transfert individuels.

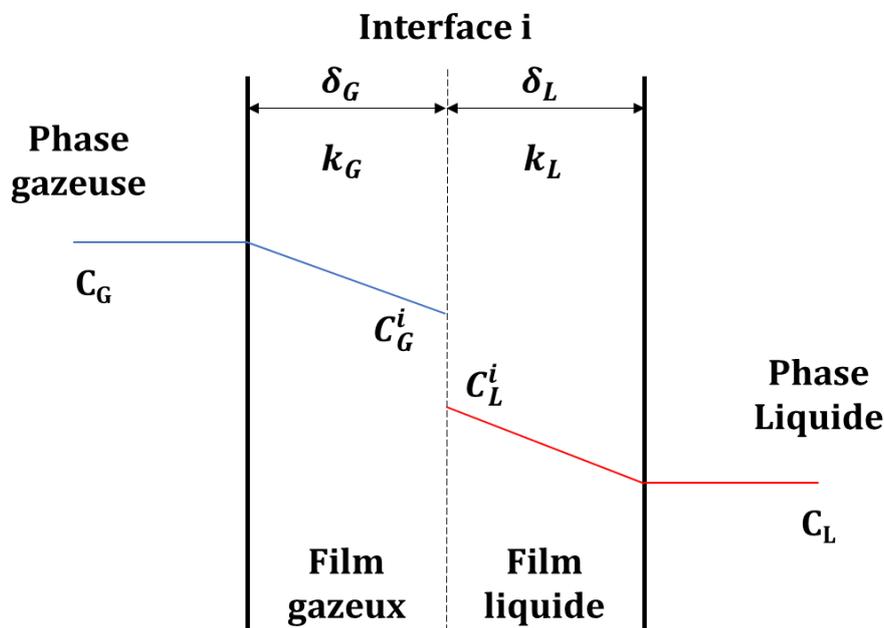


Figure I. 15 : Modèle du double film (modifié par Lewis et Whitman, 1924)

Cependant, il est difficile de déterminer les concentrations d'O<sub>2</sub> à l'interface. En considérant les deux films comme des boîtes noires et en introduisant  $C_L^*$  comme la concentration molaire à laquelle serait la phase liquide si elle était en équilibre avec la phase gazeuse et  $C_G^*$  comme la

concentration molaire à laquelle serait la phase gazeuse si elle était en équilibre avec la phase liquide, on peut écrire l'équation I.14 comme :

$$N_{O_2} = k_G(C_G - C_G^i) = k_L(C_L^i - C_L) = K_L(C_L^* - C_L) = K_G(C_G - C_G^*) \quad (I.14)$$

avec  $K_L$  et  $K_G$  les coefficients de transfert globaux côté liquide et côté gaz, que l'on peut exprimer en fonction des coefficients de transfert individuels (ou de film)  $k_L$  et  $k_G$  par les relations suivantes (I.15 et I.16) :

$$\frac{1}{K_L} = \frac{1}{k_L} + \frac{1}{mk_G} \quad (I.15)$$

$$\frac{1}{K_G} = \frac{1}{k_G} + \frac{m}{k_L} \quad (I.16)$$

où  $m$  est le coefficient de solubilité,  $m=H_{O_2}/RT$  avec  $T$  la température et  $R$  la constante des gaz parfaits et  $H_{O_2}$  la constante de Henry d'O<sub>2</sub>.

Un gaz comme l'O<sub>2</sub> est très peu soluble dans l'eau.  $m$  est très grand et donc le terme  $\frac{1}{mk_G}$  devient très petit et donc la résistance au transfert est localisée côté liquide. On a donc  $k_L \approx K_L$ . La densité de flux de matière transférée entre phases peut donc s'écrire :

$$N_{O_2} \approx k_L(C_L^* - C_L) \quad (I.17)$$

avec  $k_L = \frac{D_L}{\delta_L}$  pour ce modèle de double film, où  $D_L$  est le coefficient de diffusion dans la phase liquide d'O<sub>2</sub> et  $\delta_L$  l'épaisseur du film côté liquide.

Lorsqu'un composé est peu soluble en phase liquide, comme l'O<sub>2</sub>, pour améliorer le transfert, la phase liquide doit être aussi turbulente que possible. Cela permet de réduire l'épaisseur du film liquide et donc d'améliorer le transfert de matière.

Il est plus facile de déterminer le flux de matière échangé par unité de volume de liquide plutôt qu'une densité de flux de matière. On peut exprimer le flux  $J_{O_2}$  comme suit :

$$J_{O_2} \approx k_L a (C_L^* - C_L) \quad (I.18)$$

avec  $a$ , la surface spécifique d'échange.

Higbie (1935) a proposé la théorie de la pénétration. Selon cette théorie, lorsqu'un fluide entre en contact avec un autre, le temps de contact est court, ce qui ne permet pas l'établissement d'un régime permanent. Le transfert se fait donc par diffusion moléculaire en régime transitoire dans une direction donnée. Selon ce modèle, chaque paquet de fluide arrive à l'interface et reste exposé à l'action de la phase gazeuse pendant un temps  $t_{exp}$  donné. Tous les paquets de fluide ont le même temps d'exposition. Higbie (1935) a proposé une relation permettant de calculer le coefficient de transfert de matière ' $k_L$ ' par diffusion en régime transitoire :

$$k_L = 2 \sqrt{\frac{D_L}{\pi t_{exp}}} \quad (I.19)$$

Pour une bulle de diamètre  $d_b$  et de vitesse  $V_b$  en ascension dans un liquide en mouvement, le temps d'exposition ou de contact  $t_{exp}$  est exprimé par la relation suivante :

$$t_{exp} = \frac{d_b}{V_b} \quad (I.20)$$

#### 4.4.2. Surface spécifique d'échange « $a$ »

La plupart des études effectuées se limitent à la détermination du coefficient de transfert de matière volumique,  $k_{LA}$ , qui est le produit entre le coefficient de transfert de matière en phase liquide ' $k_L$ ' et la surface spécifique d'échange ' $a$ '. Cependant, très peu de données traitent séparément ' $k_L$ ' et ' $a$ ' dans les colonnes à bulles (Bouaifi et al., 2001).

La surface spécifique d'échange ' $a$ ' varie dans la colonne de bulles en raison du diamètre de la bulle et du taux de vide. Dans une colonne à bulles conventionnelle, et en supposant des bulles sphériques, la relation entre ces paramètres peut s'écrire :

$$a = \frac{6\varepsilon_G}{d_b} \quad (I.21)$$

Il est donc important de connaître la distribution de taille de l'essaim de bulles au sein de l'écoulement car celle-ci va permettre de remonter à la surface spécifique d'échange ' $a$ ' utile pour caractériser ensuite le transfert de matière gaz-liquide. La technique optique d'ombroscopie est largement utilisée pour déterminer des distributions de tailles et de vitesses de bulles dans un essaim de bulles (Zaruba et al., 2005; Sathe et al., 2013; Besagni and Inzoli, 2016) étant donné qu'il est difficile de prévoir le diamètre des bulles. En effet, celui-ci dépend

principalement du type de diffuseur et des propriétés physico-chimiques du liquide (Besagni and Inzoli, 2017).

## 5. Colonne à bulles « confinée »

Nombreux avantages prouvés du confinement ont été discutés dans la littérature, tels que : (i) la réduction de la résistance au transfert de matière gaz-liquide, étant donné que le coefficient de transfert de matière gaz-liquide  $k_{LA}$  est de 2 à 7 fois plus élevé dans les structures confinées que dans les grands contacteurs turbulents (Kreutzer et al., 2006; Roudet et al., 2017) ; (ii) l'augmentation du temps de séjour des bulles à l'intérieur du réacteur (Maxworthy, 1987, 1991; Roudet et al., 2011b; Roig et al., 2012; Wongwailikhit et al., 2018) ; (iii) l'amélioration de l'efficacité du transfert dans le mince film liquide entre les bulles et les parois (Roudet et al., 2017) ; (iv) l'amélioration de la compacité des réacteurs industriels gaz/liquide (Roudet et al., 2017; Kreutzer et al., 2006).

### 5.1. Hydrodynamique dans les colonnes à bulles confinées

En général, les bulles ascendantes qui se déplacent dans des espaces restreints entre des plaques parallèles, ont un comportement différent de celles en mouvement libre. Le confinement de ces bulles peut entraîner des modifications de leur dynamique et de leur forme, comme l'ont montré des études antérieures (Maxworthy, 1987; Roudet et al., 2011b; Roig et al., 2012; Filella et al., 2015). Ainsi, les films liquides entre la bulle et les surfaces solides sont réduits, ce qui peut amplifier les déformations de la bulle en raison de la limitation de ses mouvements. En outre, la contrainte de cisaillement exercée par les parois peut affecter les sillages de la bulle (Roig et al., 2012; Filella et al., 2015).

Selon le degré de confinement ' $d_b/e$ ', les bulles confinées sont relativement plus lentes par rapport à celles non confinées, mais leur comportement et leur structure de sillage restent comparables (Roig et al., 2012). En outre, leurs formes ont été trouvées semblables à celles de bulles qui se déplacent librement (sphérique, ellipsoïdale ou calotte sphérique) et leur succession dépend du nombre d'Archimède (Magnaudet and Eames, 2000; Vries, 2001; Roig et al., 2012; Filella et al., 2015).

Des études locales et globales ont fourni des informations de base sur la dynamique des bulles et le mélange dans des géométries confinées.

- Etudes locales :

Bouche et al. (2012) ont étudié la dynamique d'un essaim de bulles dans une cellule Hele-Shaw de 1 mm d'épaisseur en utilisant la technique d'ombroscopie. Ils ont montré que chaque bulle est accompagnée d'un sillage instable dans lequel un vortex normal se développe. Cependant, contrairement aux conditions 3D, le sillage est fortement atténué par le frottement des parois, et son effet disparaît à seulement quatre diamètres derrière la bulle. Ils ont également mis en évidence deux phénomènes qui régissent les mouvements des bulles : les oscillations induites par le sillage et les fluctuations intenses de la vitesse derrière la bulle. Dans la direction verticale, l'agitation des bulles est essentiellement causée par les oscillations induites par le sillage dont l'intensité est indépendante du taux de vide.

De même, Roig et al. (2012) et Roudet et al. (2011a) ont caractérisé la dynamique des bulles dans une cellule de Hele-Shaw d'une épaisseur de 1 mm. Ils ont effectué cette étude locale de l'hydrodynamique sur une bulle isolée et le champ de vitesse de la phase liquide qui l'entoure, à l'aide des deux techniques d'ombroscopie et de PIV dans la gamme des nombres d'Archimède ( $Ar$ ) entre 200 et 11000. Des lois d'échelle concernant le mouvement d'une bulle isolée s'élevant dans un liquide au repos ont été déterminées pour une large gamme de tailles de bulles. Les résultats ont montré que la forme de la bulle évolue de sphérique à ellipsoïdale lorsque  $Ar$  atteint la valeur de 600 ; pour un  $Ar > 600$ , une dynamique 2D particulière est observée avec plusieurs formes de bulles qui changent d'ellipsoïdales à ellipsoïdales déformées et enfin à des formes de calottes hémicylindriques. Tout d'abord, ces bulles 2D ont une trajectoire oscillante puis elles deviennent rectilignes pour les bouchons sphériques. Le sillage peut donc présenter des tourbillons alternatifs (trajectoire oscillante) ou bien il demeure stationnaire (trajectoire rectiligne). Ils ont également souligné que le passage d'une bulle 2D conduit à une perturbation de l'écoulement liquide qui disparaît très rapidement, après un temps caractéristique de l'ordre de  $e^2/\nu$  ; où «  $e$  » est la largeur de l'interstice de la cellule de Hele-Shaw et «  $\nu$  », la viscosité cinématique de l'eau. Ils ont montré que le film a un rôle mineur dans la montée des bulles avec un grand nombre de Reynolds. Les différents régimes observés sont plutôt dus à un couplage complexe entre le sillage des bulles, qui est fortement atténué par le frottement sur les parois en raison du degré de confinement plus élevé, et l'évolution des formes de bulles en raison des effets de la gravité et de l'inertie lorsque le volume de la bulle augmente.

Filella et al. (2015) ont étudié le mouvement et le sillage derrière des bulles isolées dans une cellule à faible entrefer de 3,1 mm d'épaisseur. Basés sur le nombre d'Archimède et le rapport de confinement, ils ont suggéré trois régimes pour la forme et la trajectoire de la bulle. Le premier régime avec  $Ar \leq 1800$  et ' $d_b/e$ '  $> 1,85$ , correspond à la forme circulaire ou légèrement ellipsoïdale de la bulle ayant un rapport d'aspect (axe majeur/mineur) inférieur à 1,5, ces bulles suivent une trajectoire rectiligne ou périodique. Pour le deuxième régime, avec  $1800 \leq Ar \leq 5000$  et  $1,85 \leq d_b/e \leq 3,7$ , les bulles ont des oscillations le long du trajet avec une augmentation du rapport d'aspect de 1,5 à 3. Enfin, le troisième régime avec  $Ar \geq 5000$  correspond aux grandes bulles de forme de segment circulaire présentant principalement des trajectoires rectilignes (ou légèrement oscillatoires).

Alméras et al. (2018) ont caractérisé le mécanisme de mélange pour les colonnes de bulles 2D confinées. Selon eux, le mélange dans la cellule à faible entrefer est principalement dû à l'interaction directe du colorant et de l'écoulement à proximité des bulles, ce qui permet le mélange dans la direction verticale. De plus, localement, ce phénomène de mélange peut être considéré comme si chaque bulle capture un volume de colorant dans son sillage, le transporte sur une certaine distance, puis le libère. Une autre étude menée par Alméras et al. (2015) ont montré que le mélange dans un essaim homogène de bulles avec un nombre de Reynolds élevé est principalement dû à la turbulence induite par les bulles et que le phénomène de capture-transport-libération dans les sillages est négligeable.

- Etudes globales :

Les études globales de l'hydrodynamique dans les colonnes à bulles 2D ont été peu abordées dans la littérature. Cependant, dans une colonne à bulles à faible entrefer (4 mm) et un rapport de confinement ' $d_b/e$ ' inférieur à 1, l'hydrodynamique globale a été caractérisée par Thobie et al. (2017) et Almani (2021) en utilisant des fluides Newtoniens (eau du robinet et solutions de glycérol à 10 et 50 % m/m) et des fluides non-Newtoniens (solutions aqueuses de gomme xanthane (XG) à 1 g.L<sup>-1</sup> et de carboxyméthylcellulose (CMC) à 2 g.L<sup>-1</sup>), respectivement. Dans ces études, l'effet du confinement a été mis en évidence montrant un taux de vide plus élevé en régime homogène par rapport aux colonnes à bulles conventionnelles. Ces résultats ont été également observé par Böhm and Kraume (2015), qui ont étudié l'hydrodynamique d'un essaim de bulles dans un système de membrane plate ayant un entrefer de 5 ou 7 mm et fonctionnant avec de l'eau et une solution de XG (0,8 g.L<sup>-1</sup>). Ce taux de vide plus élevé a été expliqué par une vitesse d'ascension des bulles plus faible dans la colonne confinée en raison

de la résistance accrue rencontrée par les bulles en géométrie confinée par rapport à celle conventionnelle, ce qui augmente le temps de séjour des bulles ainsi que le taux de vide. Thobie et al. (2017) et Almani (2021) ont trouvé que les transitions de régime apparaissent à des vitesses superficielles de gaz plus faibles dans les colonnes à bulles confinées que dans le cas des colonnes classiques. D'autre part, Almani (2021) a comparé le taux de vide entre l'eau et les fluides non-Newtoniens et il a montré que ce paramètre est plus important dans les liquides non-Newtoniens en raison du temps de séjour plus long (vitesses terminales des bulles plus faibles). Cette dernière conclusion est en accord avec les observations antérieures de Böhm and Kraume (2015).

En ce qui concerne le temps de mélange, Thobie et al. (2017) et Almani (2021) ont signalé des tendances semblables à celles des colonnes à bulles classiques, où le temps de mélange diminue avec l'augmentation de la vitesse superficielle des gaz et pour la même vitesse superficielle des gaz, il augmente avec l'augmentation de la viscosité. Dans l'étude d'Almani (2021), des analyses du temps de mélange ont été aussi réalisées avec deux méthodes : l'injection locale en bas de colonne et l'injection en largeur au-dessus de la surface libre. Le mélange dans les liquides non-Newtoniens était assez mauvais, en particulier dans les régimes homogène et transitoires par rapport à l'eau (en régime homogène, les temps de mélange sont 10 à 30 fois supérieurs à ceux observés dans le régime hétérogène respectivement avec les méthodes de l'injection en largeur et locale).

## 5.2. *Transfert de matière dans les colonnes à bulles confinées*

- Etudes locales :

Roudet et al. (2017) ont révélé l'importante contribution du confinement des bulles à l'augmentation du transfert de matière gaz-liquide, en comparant les résultats des bulles confinées dans une cellule Hele-Shaw avec celles non confinées par la technique de fluorescence induite par plan laser (PLIF). Selon eux, le transfert de matière était plus élevé et même amplifié pour les plus grandes bulles confinées. Par exemple, pour une bulle confinée de 3 cm de diamètre, le taux de transfert de matière d'oxygène était environ le double de celui d'une bulle non confinée du même volume (respectivement  $8,8 \times 10^{-6} \text{ g.s}^{-1}$  contre  $4,1 \times 10^{-6} \text{ g.s}^{-1}$ ). De plus, ils ont constaté que les films liquides, situés entre la surface de la bulle et les plaques de Hele-Shaw, étaient le principal contributeur ( $\approx 87 \%$ ) au transfert de matière gaz-liquide (Roudet et al., 2017).

D'autres études récentes ont étudié l'impact du confinement sur le transfert de matière autour d'une seule bulle, en utilisant la fluorescence induite par les UV (Zhang et al., 2020) ou une méthode colorimétrique (Kherbeche et al., 2013; Felis et al., 2019). Pour l'étude de Zhang et al. (2020), le taux de transfert de matière et le coefficient de transfert de matière ' $k_L$ ' pour des bulles de CO<sub>2</sub> de différents diamètres (2,8 à 9,1 mm) dans une cellule Hele-Shaw (2 mm d'entrefer) ont été étudiés. Ils ont déduit que les films liquides entre la bulle et les parois de la cellule Hele-Shaw constituent une part importante du transfert de matière interphasique global. La principale contribution des films liquides au taux global de transfert de matière a en fait été rapportée par Roudet et al. (2017). Ainsi, Zhang et al. (2020) ont trouvé que les coefficients de transfert de matière en phase liquide ' $k_L$ ' ont une tendance légèrement décroissante (variation entre  $1,2 \times 10^{-4}$  et  $9,8 \times 10^{-5}$  m.s<sup>-1</sup> pour différentes tailles de bulle) lorsque le diamètre de la bulle augmente. Cette étude a montré également que les valeurs de Sherwood issues de l'expérience sont significativement inférieures de celles issues du modèle de Higbie. Ces résultats ont été expliqués par une contamination partielle des interfaces de bulles. En effet, la solution d'acridine utilisée comme un colorant fluorescent dans leur travail, pourrait être un type de contaminant qui modifie les conditions aux limites sur l'interface de la bulle, ce qui peut inhiber le taux de transfert de matière de la bulle de CO<sub>2</sub> vers l'eau. De même, l'étude de Kherbeche et al. (2013) sur le transfert de matière de l'oxygène d'une bulle d'air dans l'eau dans une cellule de Hele-Shaw (2 mm d'entrefer) a montré que la valeur expérimentale du ' $k_L$ ' est inférieure aux résultats obtenus par le modèle de Higbie.

- Etudes globales :

Les valeurs de  $k_{LA}$  entre les colonnes à bulles confinées et non confinées ont été également comparées par Thobie et al. (2021) et Almani (2021). Ils ont constaté que les valeurs de  $k_{LA}$  sont plus faibles en conditions confinées que dans le cas des colonnes classiques et ce avec les fluides Newtoniens et non-Newtoniens. Selon ces auteurs, le transfert de matière gaz-liquide n'est pas amélioré en raison des vitesses terminales plus faibles observées dans une colonne confinée, ce qui augmente le temps d'exposition et diminue par la suite le coefficient de transfert de matière ' $k_L$ '. Ils ont aussi trouvé que les propriétés rhéologiques de la phase liquide affectent également la valeur de  $k_{LA}$ . En effet, les valeurs de  $k_{LA}$  sont beaucoup plus élevées dans le cas de l'eau que les fluides non-Newtoniens (CMC et XG) et les fluides Newtoniens visqueux (les solutions aqueuses de glycérol à 10% et 50% m/m). Ils ont expliqué ces résultats

par l'effet de la viscosité élevée dans ces fluides qui entraîne une coalescence plus importante et donc une valeur de ' $a$ ' plus petite.

Pour résumer, à partir des études locales et globales en géométries confinées, il est possible de voir que la majorité de ces études sont exploitées avec une phase liquide Newtonienne et notamment avec l'eau. Cependant, l'étude de l'hydrodynamique et du transfert gaz-liquide en écoulements gaz-liquide confinés reste encore à approfondir, notamment à l'échelle globale du réacteur en utilisant une géométrie plus confinée que celle utilisée par Thobie et al. (2017) et Almani (2021) avec des fluides Newtoniens et non-Newtoniens visqueux. En utilisant cette géométrie confinée, l'objectif est d'évaluer la possibilité d'améliorer le transfert de matière gaz-liquide par rapport aux réacteurs non confinés, notamment en raison de la présence de films liquides entre la bulle et les parois, comme l'ont suggéré des travaux antérieurs (Roudet et al., 2017).

#### 6. Conclusion sur la partie hydrodynamique et transfert gaz-liquide dans les colonnes à bulles conventionnelles et confinées

L'étude bibliographique réalisée dans cette partie a permis de mieux appréhender les complexités de l'hydrodynamique dans les colonnes à bulles classiques et confinées liées notamment à la déformabilité des bulles, et aux phénomènes de rupture et de coalescence. L'existence de différents régimes d'écoulement, de taux de vide, de temps de mélange, ainsi que leur forte dépendance vis-à-vis de la géométrie de la colonne, des caractéristiques physico-chimiques de la phase liquide et des conditions de l'injection ont été abordés en détail. De plus, la caractérisation du transfert de matière gaz-liquide a été également exposée en se basant sur les études menées sur les colonnes à bulles conventionnelles et confinées.

Enfin, des études locales sur la dynamique des bulles dans les colonnes à bulles confinées ont été présentées. Toutes ces études ont montré que dans les géométries confinées, le confinement induit un hydrodynamique unique en raison du mouvement essentiellement bidimensionnel des bulles, de la présence d'un film liquide entre la bulle et les parois de la colonne, de l'augmentation des interactions paroi-bulle et de la diminution de la production de turbulence. Cette étude bibliographique a également démontré que dans ce type de colonne à bulles confinée, le transfert se fait principalement dans le film liquide.

Dans le cadre de cette thèse, une caractérisation approfondie de l'hydrodynamique globale et locale ainsi que du transfert de matière gaz-liquide sera réalisée dans un PBR intensifié ayant

une épaisseur de 2 mm avec une viscosité élevée de la phase liquide et modifiant son comportement de Newtonien à non-Newtonien rhéofluidifiant. Ce changement de comportement a la capacité d'altérer l'hydrodynamique globale et le transfert de matière à l'intérieur de la colonne à bulles. Dans cette étude, la concentration élevée de *Chlorella vulgaris* (environ 42 g.L<sup>-1</sup>) sera simulée en utilisant des solutions aqueuses de glycérol à 50 % m/m et de gomme xanthane aux concentrations 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>. L'objectif de cette étude est de mieux comprendre les conditions survenant lors de l'intensification des conditions de culture à fortes concentration, tout en identifiant les problématiques potentielles et en déterminant les paramètres de fonctionnement optimaux. Ces investigations représentent une étape cruciale vers l'identification des conditions opérationnelles optimales pour une culture efficace de microalgues au sein de cette configuration confinée.

## **PARTIE C : Biofilm photosynthétique**

### 1. Généralités sur le biofilm

Dans les photobioréacteurs, la présence de biofilm est un phénomène courant. Cependant, pour les PBRs intensifiés, éviter la formation de biofilm revêt un intérêt majeur. En effet, si le biofilm n'est pas contrôlé, le passage à un PBR intensifié pourrait perdre son intérêt, car les avantages supplémentaires liés à l'intensification seraient limités par la compétition pour la lumière et les nutriments entre les microalgues et le biofilm. Ainsi, le biofilm peut entraîner un encrassement biologique qui diminue la productivité de la biomasse et l'efficacité photosynthétique, et conduisant éventuellement à l'arrêt du PBR.

### 2. Définition et composition du biofilm

Un biofilm est généralement défini comme une communauté de microorganismes assez complexe, attachée à une surface et encapsulée dans une matrice de substances polymériques extracellulaires (protéines, lipides, exopolysaccharides, acides nucléiques...) produites par ces microorganismes (Flemming and Wingender, 2010; Medeiros, 2016). Le biofilm est généralement visible sous la forme d'une couche visqueuse de sédiments; son épaisseur varie entre quelques micromètres à des centaines de micromètres (Zakova Terezia et al., 2019). Sa structure tridimensionnelle est très hétérogène à la fois dans le temps et dans l'espace (De Beer and Stoodley, 2006).

La composition et la structure des biofilms photosynthétiques varient en fonction des facteurs abiotiques et biotiques de l'environnement (Schnurr and Allen, 2015). La matrice des biofilms est généralement constituée d'eau, de microorganismes (microalgues et bactéries) et d'exopolymères. L'eau est un élément très important de la matrice car elle représente entre 50 à 95% de biofilm (Donlan and Costerton, 2002). Les exopolymères ne représentent que quelques pourcents de la masse totale (2 à 5%). Néanmoins, ils peuvent représenter jusqu'à 50 à 90% du carbone organique total du biofilm (Bakke et al., 1984). Les microorganismes constituent 1 à 2% du biofilm (Schnurr et Allen, 2015).

### 3. Formation de biofilm et adhésion de microalgues

La figure I.16 (modifiée de Zerriouh et al., 2017) représente schématiquement la séquence de formation d'un biofilm de microalgues à l'intérieur d'un PBR. Le développement du biofilm est généralement caractérisé par un processus en six étapes : le conditionnement du support (Figure I.16b) et l'accès des microorganismes au support (Figure I.16c), ensuite, il y a une phase d'adhésion réversible (Figure I.16c), suivie d'une adhésion irréversible (Figure I.16d), puis les microorganismes commencent à produire des substances polymériques extracellulaires (EPS) (Figure I.16d). Enfin, le biofilm entre dans une phase de multiplication et de croissance (Figure I.16e), qui peut entraîner le détachement des couches superficielles du biofilm qui sont faiblement adhérentes (Figure I.16f).

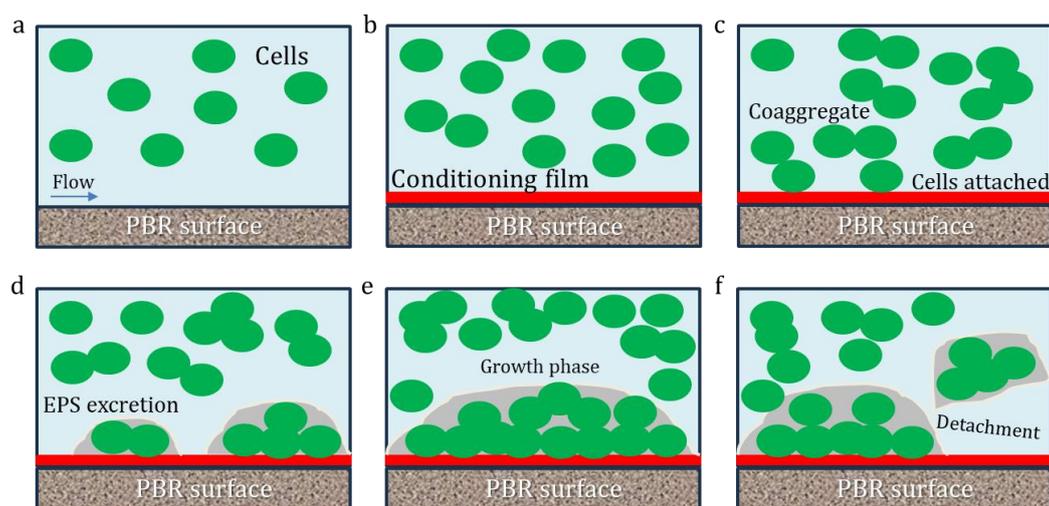


Figure I. 16 : Etapes de formation du biofilm microalgale à l'intérieur d'un PBR (modifiée de Zerriouh et al., 2017)

#### 4. Gestion du développement de biofilm dans les photobioréacteurs

Des études antérieures ont démontré que l'hydrodynamique affecte la formation et la structure des biofilms (Liu et Tay, 2002). Inversement, la structure, les propriétés physico-chimiques et la résistance de cohésion du biofilm ont un impact considérable sur la réponse du biofilm aux forces externes.

Dans la culture de microalgues, une option pour éliminer le biofilm est d'optimiser la géométrie du système afin d'assurer des conditions hydrodynamiques appropriées *via* l'élimination des zones mortes dans le PBR (Ting et al., 2017). D'autres méthodes sont disponibles comme l'utilisation de l'ozone, la technologie des ultrasons ou l'utilisation de divers produits chimiques (Belohlav et al., 2020).

Krohn-Molt et al. (2013) ont démontré que le développement de biofilm entraîne une diminution de l'intensité lumineuse dans un PBR plat en poly(téréphtalate d'éthylène) lors d'essais réalisés avec des cultures non axéniques de *Scenedesmus obliquus* et *Chlorella vulgaris* à 17°C. Au début de l'incubation, une intensité lumineuse de  $150 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  a été mesurée, mais après 12 semaines de culture, cette valeur a chuté 15 fois ( $10 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) en raison de la formation d'une couche de biofilm sur les surfaces du PBR. Selon cette étude, une solution pour contrer ce développement de biofilm est d'augmenter la fréquence de nettoyage des PBRs. Cependant, cela peut entraîner des coûts de maintenance élevés et une indisponibilité de l'installation, ce qui réduit le temps de production. Par conséquent, il est nécessaire de trouver une méthode permettant de limiter l'encrassement des parois afin de réduire la fréquence de nettoyage et les arrêts des PBRs.

Belohlav et al. (2020) ont mené une étude pour déterminer la valeur critique de la contrainte de cisaillement à la paroi qui permet la prévention de la formation de biofilm dans une culture de microalgues dans un PBR de type flat-panel. Puis, ils ont déterminé dans un système tubulaire la valeur critique nécessaire pour éliminer le biofilm déjà formé à la paroi. Dans leur travail, une valeur critique de la contrainte de cisaillement à la paroi de 0,2 Pa a été définie comme valeur limite permettant d'éviter la formation de biofilm. Cette contrainte a été générée par le débit du milieu de culture ( $45 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  correspond à  $Re = 2000$ ) pour la microalgue *Chlorella vulgaris* à  $1 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ . Ils ont montré aussi que, une fois le biofilm est déjà fixé sur la paroi, la contrainte de cisaillement nécessaire pour détacher le biofilm doit être entre 6 et 53 Pa : la stabilité du biofilm était déjà perturbée à une valeur de 6 Pa (vitesse moyenne du liquide

est égale à  $1,35 \text{ m.s}^{-1}$  ; cependant, le biofilm formé sur la paroi transparente a été complètement retiré de la surface lorsque la contrainte de cisaillement de la paroi a atteint une valeur de 53 Pa (vitesse moyenne du liquide est égale à  $4,64 \text{ m.s}^{-1}$ ).

En ce qui concerne les colonnes à bulles rectangulaires 2D, l'impact des bulles qui ont un diamètre du même ordre de grandeur que l'entrefer sur l'hydrodynamique en proche paroi a été étudié par quelques auteurs. Böhm et al. (2013, 2016) ont caractérisé l'effet de l'aération sur le nettoyage des bioréacteurs à membrane plans en corrélant l'effet d'une bulle en ascension sur la contrainte de cisaillement à la paroi mesurée par la méthode électrochimique. Au cours de ces travaux, l'impact de plusieurs combinaisons d'épaisseur de canal (3 à 7 mm), de diamètre de bulle (3 à 9 mm) et de vitesse du liquide (0 ou  $0,2 \text{ m.s}^{-1}$ ) sur la contrainte de cisaillement maximale et le niveau de fluctuations a été étudié. Ils ont montré que les deux types de contrainte sont plus élevés lorsque la taille de bulle est plus grande que l'entrefer et lorsqu'une vitesse est imposée à la phase liquide.

Thobie et al. (2022b) ont étudié l'effet des propriétés des bulles (taille et fréquence de bullage) sur l'hydrodynamique des phases gazeuse et liquide, en particulier au niveau de la paroi. A cet effet, un canal de section  $4 \times 4 \text{ mm}^2$  a été utilisé et deux types d'injection de gaz ont été testés : une injection capillaire qui génère des bulles plus petites que la taille du canal (diamètre moyen des bulles égal à 3,7 mm) et une injection en T qui génère des grosses bulles avec un diamètre moyen plus grand que la taille du canal (diamètre moyen des bulles égal à 4,5 mm). Les composantes moyennes et fluctuantes de la contrainte de cisaillement à la paroi ont été estimées par la méthode électrochimique. L'effet de passage des bulles sur la paroi a été mis en évidence par des pics périodiques du signal temporel de cisaillement. En plus, ils ont montré que l'amplitude de ces pics varie en raison de l'oscillation des bulles dans le canal avec l'injection capillaire alors que pour les bulles de Taylor, une valeur maximale et constante de la contrainte de cisaillement est observée quelle que soit la taille des bulles. D'un autre côté, la comparaison de l'énergie fluctuante des signaux a montré des valeurs plus importantes dans le cas de l'injection capillaire.

Une autre étude a été réalisée par Thobie et al. (2022a) sur l'effet du bullage sur le développement de biofilm microalgal. Cette étude a montré la présence d'une interaction complexe entre l'écoulement à bulles et le développement/élimination du biofilm photosynthétique sur les parois internes du PBR. Des expériences dans un PBR de 2 cm d'épaisseur ont mis en évidence l'effet du bullage sur le développement du biofilm dans une

géométrie conventionnelle. Dans les zones sans bullage, un biofilm épais s'est développé avec une baisse importante de la transmission lumineuse. Dans les zones impactées par le bullage et qui sont sans biofilm visible, l'analyse microscopique a montré la présence d'une fine couche transparente d'une épaisseur inférieure à 10  $\mu\text{m}$ . Cette couche est responsable d'une chute de transmission lumineuse d'environ 11% après 35 jours de culture. Selon ces auteurs, le bullage permet donc de limiter le développement du biofilm mais ne l'empêche pas complètement. La première couche, dite couche de conditionnement, adhère encore à la paroi. De même, des expériences ont été réalisées par Thobie et al. (2022a) dans un canal confiné ( $4 \times 4 \text{ mm}^2$ ). Cette étude a montré qu'il est très difficile de détacher le biofilm une fois qu'il a adhéré à la paroi. Seules les conditions de bullage avec un taux de fluctuations élevé de la contrainte de cisaillement de la paroi ont pu détacher les couches superficielles du biofilm. Aucun effet n'a été observé sur le détachement de la couche de conditionnement. Ils ont également remarqué que le phénomène était pire avec l'injection de bulles très confinées dans le canal, ceci a été expliqué par le fait que le biofilm est compacté par le passage des bulles très confinées.

Les études ci-dessus montre que la contrainte de cisaillement à la paroi représente donc un facteur critique nécessitant une attention particulière dans la culture des microalgues. Cette approche est d'autant plus intéressante dans les PBRs où le bullage est souvent utilisé pour assurer le mélange, l'apport de  $\text{CO}_2$  et le dégazage de l'excès d' $\text{O}_2$ . Dans ce cas, le contrôle du biofilm pourrait être envisagé sans arrêter la culture. Par conséquent, l'optimisation de la transmission de lumière dans un PBR à haute productivité volumique, *via* la prévention de formation et/ou l'élimination de dépôt sur les surfaces optiques, nécessite d'effectuer une étude hydrodynamique en proche paroi. Cela permet de remonter au frottement pariétal local et instantané en se basant uniquement sur l'action de bullage.

### 5. Conclusion sur la partie biofilm photosynthétique

L'intensification des PBRs peut engendrer divers problèmes, notamment le développement accru de biofilms à leur surface. La formation de biofilms sur ces surfaces peut entraîner une diminution significative du flux lumineux, entraînant ainsi une réduction de la performance du PBR et par la suite la productivité en biomasse. Plusieurs études ont été réalisées sur l'impact des traitements de surface sur le développement et le détachement des biofilms. Concernant les études sur l'hydrodynamique, des contradictions émergent entre différentes études en ce qui concerne les contraintes de cisaillement nécessaires en surface pour éliminer les biofilms déjà formés.

Dans ce présent travail, l'objectif principal est d'identifier la contribution de la dynamique des bulles sur les contraintes de cisaillement à la paroi et donc leur rôle dans la prévention du développement de biofilms au niveau des parois, en particulier lorsque la géométrie est confinée. Ces paramètres seront déterminés avec la méthode électrochimique pour des fluides modèles (Newtoniens et non-Newtoniens).

## *Chapitre II : Matériel et méthodes*

---

---

### **PARTIE A : Dispositif expérimental : Colonne à bulles confinée ( $e = 2$ mm)**

Cette étude est réalisée dans une colonne à bulles à faible entrefer (Figure II.1). Elle est constituée de deux plaques en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) de 5 cm d'épaisseur. L'une des plaques est creusée de 2 mm en profondeur sur une surface de 30 cm de large et 120 cm de haut. L'idée de creuser 2 mm sur l'une des deux plaques vise à avoir une épaisseur de l'entrefer constante sur toute la hauteur de la colonne. Au cours de cette étude, cette colonne est remplie avec les solutions étudiées (Newtoniennes et non-Newtoniennes) jusqu'à une hauteur de 97 cm, ce qui correspond à un volume de liquide opératoire d'environ 582 mL. Toutes les expériences sont réalisées avec une phase liquide stagnante.

L'air, utilisé comme phase gazeuse, est injecté à travers 15 capillaires d'un diamètre intérieur de 1,016 mm uniformément répartis au bas de la colonne. En amont de ces capillaires, une chambre d'homogénéisation est installée, permettant d'avoir une même pression de gaz et donc un débit identique au niveau de chaque capillaire. La gamme étudiée des vitesses superficielles des gaz est de 0,002 à 0,040 m.s<sup>-1</sup>, cette gamme permet de couvrir tous les régimes d'écoulement (c'est-à-dire les régimes homogène(s), de transition et hétérogène) quelle que soit la nature liquide. La vitesse superficielle des gaz ( $U_{Gsup}$ ) est définie comme le rapport entre le débit volumique d'air et la section de passage de la colonne. Un débitmètre massique de 1,5 nL/min (EL-FLOW®-BRONKHORST®) est placé avant la chambre d'homogénéisation et permet de contrôler le débit d'air injecté. La paroi avant de la colonne comporte six emplacements (P2-P5 et P7, P8) (Figure II.1) qui peuvent être utilisés pour introduire différents capteurs telles que la sonde conductimétrique (utilisé pour déterminer le temps de mélange) ou la sonde d'oxygène dissous (pour déterminer le coefficient volumique de transfert de matière gaz-liquide) ou la microélectrode (pour déterminer le cisaillement à la paroi). P3, P5 et P8 sont situés à mi-largeur de la colonne à bulles tandis que P2, P4 et P7 sont situés à 1/6 de la largeur de la colonne. Les hauteurs des emplacements sont de 900 mm, 700 mm et 500 mm, pour P2-P3, P4-P5 et P7-P8 respectivement. Un capteur de pression différentielle piézorésistif (KELLER PD23) est utilisé pour déterminer le taux de vide ; ce capteur possède deux entrées, qui permettent de mesurer une pression différentielle  $\Delta P$  entre

deux positions. Ces deux entrées peuvent être placées aux positions P1-P9 ou P6-P9. Les positions P1, P6 et P9 sont situées respectivement à 20 mm, 550 mm et 950 mm du bas de la colonne.

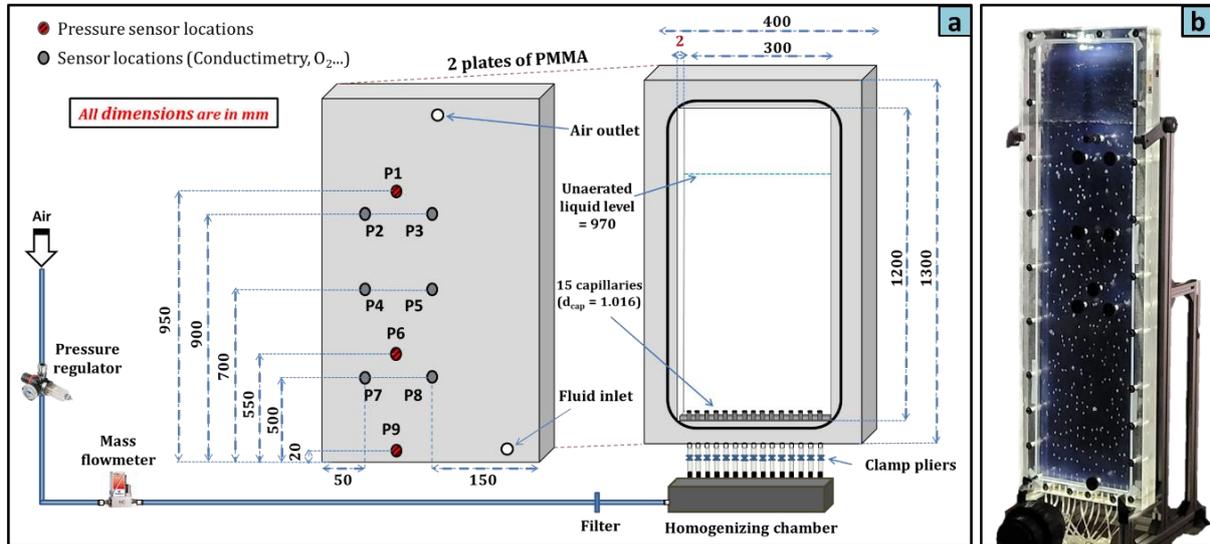


Figure II. 1 : Dispositif expérimental : (a) représentation schématique et (b) image de la colonne à bulles à faible entrefer (épaisseur de 2 mm) utilisée dans cette étude

## PARTIE B : Caractérisation physico-chimique des fluides modèles

L'hydrodynamique dans la colonne à bulles à faible entrefer est caractérisée avec des fluides modèles : solutions aqueuses de gomme de xanthane, XG (SIGMA life sciences) à  $0,5 \text{ g L}^{-1}$  ( $0,05 \text{ \% m/m}$ ) et  $1 \text{ g.L}^{-1}$  ( $0,1 \text{ \% m/m}$ ), utilisées comme fluides non-Newtoniens rhéofluidifiants et une solution aqueuse de glycérol à  $50 \text{ \% (m/m)}$  (Glycérol, 98+ %, extra pur, SLR, Fisher Chemical) connu comme un fluide Newtonien visqueux. L'eau du robinet est utilisée comme fluide de référence (fluide Newtonien à faible viscosité). Un système de purification Milli-Q Advantage A10<sup>®</sup> est utilisé pour fournir de l'eau ultra-pure (conductivité  $< 0,1 \mu\text{S.cm}^{-1}$ ) pour la préparation de solutions de XG et de glycérol. Les solutions de XG ont été préparées en dissolvant la quantité nécessaire de polymères dans de l'eau déminéralisée sous agitation à température ambiante pendant 24 heures. La solution aqueuse de glycérol à  $50\% \text{ m/m}$  a été préparée en diluant le glycérol pur (sous forme liquide) dans de l'eau déminéralisée.

### 1. Mesure de la tension superficielle

Les tensions superficielles des solutions sont analysées à l'aide de l'appareil Krüss-DSA30 (Figure II.2a) avec la méthode de la goutte pendante (Adamson and Gast, 1997; Kazemzadeh

et al., 2014). Cette méthode optique permet de déterminer la surface ou l'interface d'une goutte de liquide à l'aide du profil de courbure de la goutte. L'analyse de la forme de la goutte à l'équilibre selon l'équation d'Young-Laplace (équation II.1) est utilisée :

$$\Delta p = \sigma \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (\text{II.1})$$

où,  $\Delta p$  est la différence de pression à travers l'interface,  $R_1$  et  $R_2$  sont les rayons de courbure et  $\sigma$  est la tension superficielle.

Ainsi, la méthode de la goutte pendante consiste à déterminer la tension superficielle entre deux fluides en analysant la forme de la goutte du fluide « A » formée dans le fluide « B » à l'aide d'une aiguille de diamètre connu. Dans notre cas, le fluide « A » est le liquide à analyser et le fluide « B » est l'air. La forme de la goutte dépend de la tension superficielle et de l'accélération de la pesanteur qui tend à allonger la goutte, lui donne une forme de poire et va influencer son rayon de courbure (Figure II.2b). Le diamètre de l'aiguille utilisée pour tous les fluides testés est de 0,691 mm. Les valeurs de tensions superficielles obtenues pour les différentes solutions liquides sont résumées dans le tableau II.1.

Pour éviter le phénomène d'évaporation lors de la mesure qui peut entraîner de fortes variations de tension superficielle, la goutte est formée dans un cube de verre transparent. La tension superficielle est déterminée lorsqu'elle devient stable dans le temps et après stabilisation de son volume.

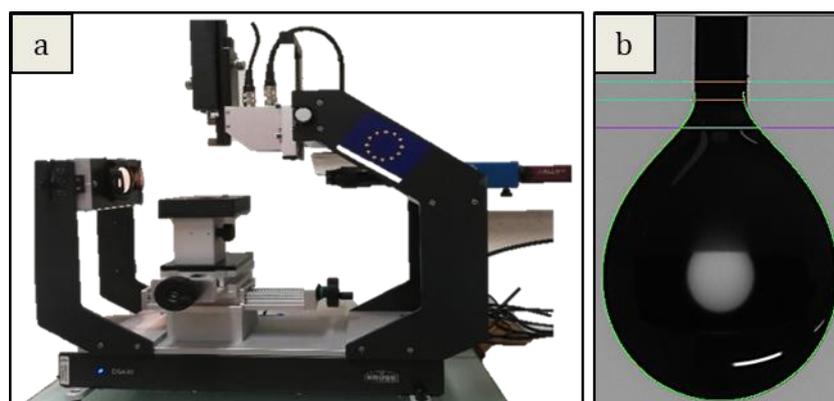


Figure II. 2 : (a) Krüss-DSA30 pour la mesure de la tension superficielle ; (b) Exemple d'analyse avec la méthode de la goutte pendante d'une solution aqueuse de glycérrol à 50 % m/m

## 2. Mesure de la masse volumique

Les densités ont été mesurées avec un hydromètre à gravité (Fisher Scientifique-LABOSI) (Figure II.3). Des triplicats ont été faits pour chaque fluide. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau II.1.



Figure II. 3 : Mesure de densité par hydromètre

## 3. Caractérisation rhéologique des fluides modèles

Dans ce travail, des fluides modèles ont été utilisés pour mimer les comportements rhéologiques de la microalgue *Chlorella vulgaris* à haute concentration cellulaire. Pour cela, des solutions de glycérol et de gomme xanthane (XG) ont été utilisées. En premier lieu, nous avons décidé d'étudier l'influence de la viscosité pour une phase liquide présentant un comportement Newtonien visqueux en utilisant une solution concentrée de glycérol à 50% m/m. A cette concentration en glycérol, la viscosité est de  $5,7 \times 10^{-3}$  Pa.s (Thobie et al., 2017). Cette viscosité est plus élevée que celle que l'on peut trouver dans le domaine Newtonien pour des cultures de microalgues allant jusqu'à  $30 \text{ g.L}^{-1}$  (Souliès et al., 2013). Cependant, cette solution sera étudiée pour voir l'effet de l'augmentation de la viscosité sur l'hydrodynamique et les transferts gaz-liquide dans une colonne à bulles confinée tout en restant dans le domaine Newtonien.

Ensuite, deux solutions de gomme xanthane (XG) à 0,5 et  $1 \text{ g.L}^{-1}$  ont été utilisées pour mimer le comportement non-Newtonien rhéofluidifiant de la microalgue *Chlorella vulgaris* à haute concentration cellulaire ( $30$  à  $40 \text{ g.L}^{-1}$ ). Aux concentrations testées, les solutions de XG à 0,5 et  $1 \text{ g.L}^{-1}$  présentent un comportement rhéologique proche de celui de *Chlorella Vulgaris* à  $42 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure II.4).

Pour la suspension de *Chlorella vulgaris*, le rhéogramme de la figure II.4 a été obtenu à partir de Souliès (2013), pour les solutions XG (0,5 et 1 g L<sup>-1</sup>) les données rhéologiques sont de Haase et al. (2017) et pour le glycérol, la valeur de la viscosité a été obtenue par Thobie et al. (2017).

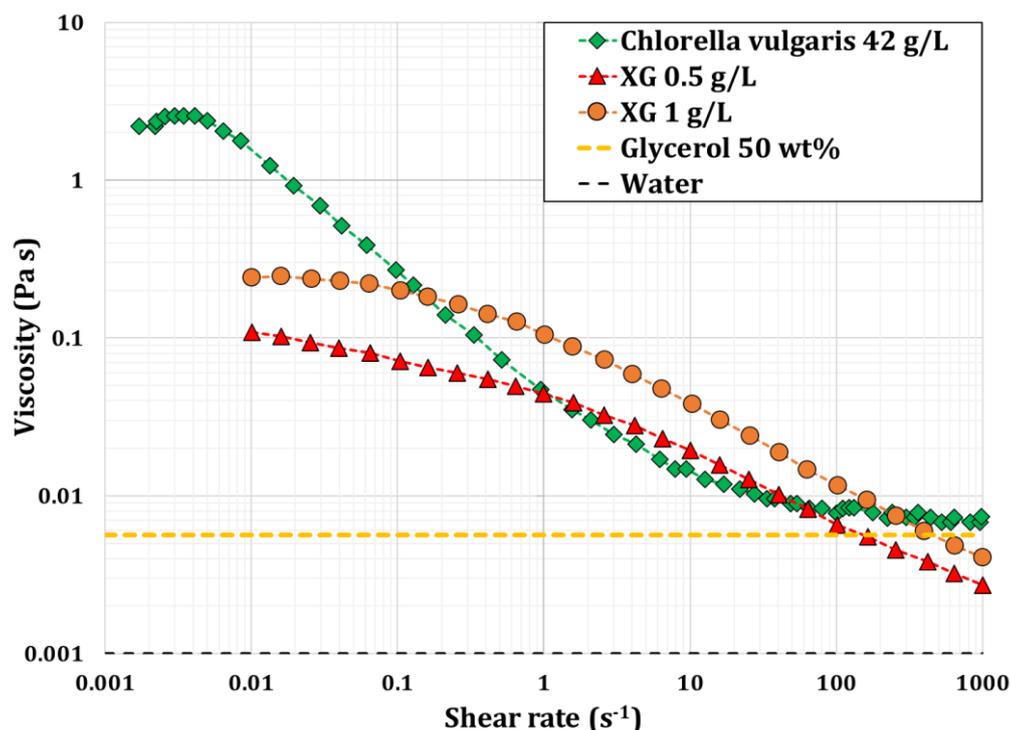


Figure II. 4 : Comparaison de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement pour une solution de glycérol à 50 % m/m (Thobie et al., 2017), XG (0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) (Haase et al. (2017) et une suspension de *Chlorella vulgaris* à 42 g.L<sup>-1</sup>(Souliès, 2013)

Tableau II. 1 : Propriétés physiques des phases liquides

Fluide	$\rho_L$ [kg.m <sup>-3</sup> ]	$\sigma$ [N.m <sup>-1</sup> ]	$\mu$ [Pa.s]	T [°C]
Eau déminéralisée	1000 ± 1	0,0703 ± 0,001	0,001	22
Solution de XG (0,5 g.L <sup>-1</sup> )	999 ± 1	0,0694 ± 0,007	-	22
Solution de XG (1 g.L <sup>-1</sup> )	998,5 ± 1	0,0687 ± 0,001	-	22
Solution de glycérol (50% m/m)	1145 ± 1	0,0635 ± 0,001	0,006 <sup>(a)</sup>	22

<sup>(a)</sup> Thobie et al. (2017)

## **PARTIE C : Méthodes de mesures**

### 1. Détermination du taux de vide

Le taux de vide  $\varepsilon_G$  est défini comme le rapport entre le volume de gaz et le volume total (Equation II.2) :

$$\varepsilon_G = \frac{V_G}{V_G + V_L} \quad (\text{II.2})$$

où  $V_G$  et  $V_L$  correspondent respectivement aux volumes des phases gaz et liquide.

Ce paramètre peut être déterminé à partir de deux méthodes : la méthode par mesure de la hauteur (Koide et al., 1983; Al-Ezzi and Najmuldeen, 2014; Besagni and Inzoli, 2016; Prakash et al., 2018; Maximiano Raimundo et al., 2019) et la méthode par mesure de la pression différentielle (Thobie et al., 2017 ; Almani, 2021 ; Mokhtari et et al., 2019 ; Zahradník et al., 1997).

#### *1.1. Méthode par mesure de hauteur*

Cette méthode a ses avantages et ses inconvénients. Elle est peu coûteuse, facile à mettre en place, mais en même temps elle n'est pas très précise. Le taux de vide global  $\varepsilon_G$  est déterminé dans ce cas, à partir de la hauteur du liquide non aéré ( $H_L$  en m) et de la hauteur totale sous aération ( $H_{L+G}$  en m). Ces paramètres étant déterminés visuellement, la hauteur aérée est soumise à une incertitude significative en raison des oscillations de la surface libre, en particulier à fort débit de gaz. Le taux de vide est calculé par l'équation II.3 :

$$\varepsilon_G = \frac{H_{L+G} - H_L}{H_{L+G}} \quad (\text{II.3})$$

#### *1.2. Méthode par mesure de pression différentielle*

La méthode de la pression différentielle est plus précise que la précédente méthode. Dans ce cas, le taux de vide peut être déterminé par l'équation suivante :

$$\varepsilon_G = 1 - \frac{\Delta P}{\rho_L \cdot g \cdot \Delta h} \quad (\text{II.4})$$

avec  $\rho_L$ , la masse volumique de la phase liquide ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ),  $g$ , l'accélération de la pesanteur ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$ ),  $\Delta P$  et  $\Delta h$  sont respectivement la pression différentielle (en Pa) et la distance entre les deux entrées du capteur de pression (en m).

Le capteur de pression différentielle utilisé dans cette étude est un capteur piézorésistif (KELLER PD23) avec une plage de mesure de 0 à 200 mbar et une précision de  $\pm 0,2\%$ . Une carte d'acquisition connectée à un programme LabVIEW permet d'enregistrer les pressions différentielles mesurées dans le temps avec une fréquence de 500 Hz. La pression différentielle moyenne dans le temps est prise en compte pour le calcul du taux de vide. Pour chaque configuration, la pression différentielle est enregistrée pendant 180 secondes.

Dans cette étude, la pression différentielle est mesurée entre deux positions situées à des hauteurs respectives de 20 mm et 950 mm (positions des capteurs représentées sur la figure II.5).

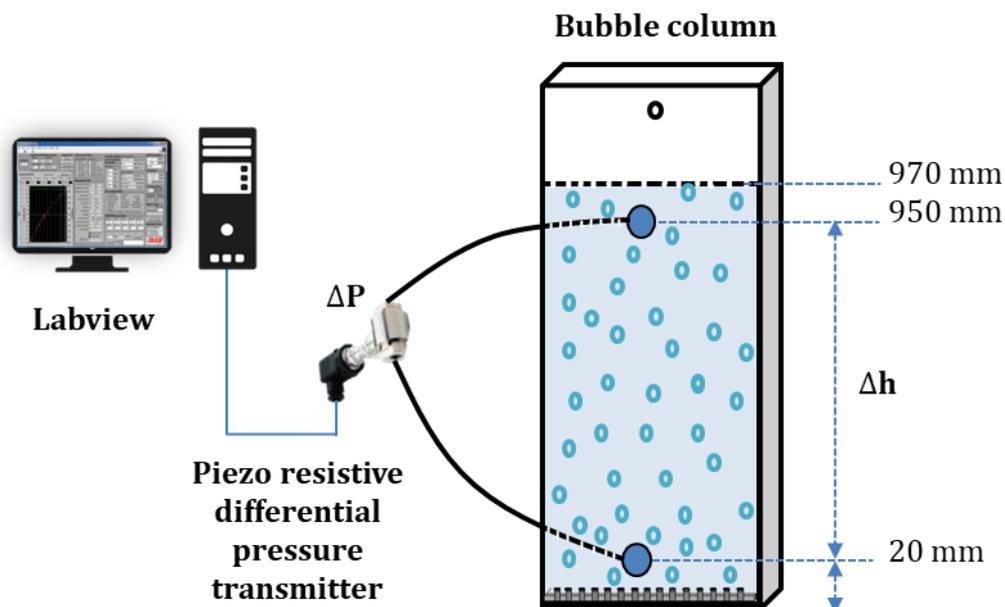


Figure II. 5 : Dispositif expérimental pour la mesure du taux de vide avec la méthode de la différence de pression

## 2. Identification des régimes d'écoulement et leurs transitions

Trois méthodes différentes sont utilisées dans ce travail pour déterminer les transitions entre les régimes d'écoulement.

2.1. Evolution du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz

Cette méthode d'identification des régimes d'écoulement consiste à tracer l'évolution du taux de vide ( $\epsilon_G$ ) en fonction de la vitesse superficielle du gaz ( $U_{Gsup}$ ) et à identifier les changements de pente obtenus avec ce graphique. C'est l'une des méthodes les plus utilisées pour déterminer les transitions de régimes. Dans chaque régime, le taux de vide peut, en général, être corrélé avec la vitesse superficielle du gaz selon l'équation II.5 :

$$\epsilon_G \propto U_{Gsup}^n \tag{II.5}$$

La valeur du paramètre 'n' dépend du régime d'écoulement. Cette relation a été expliquée par Shaikh and Al-Dahhan (2007) à l'aide de la figure II.6. A faible  $U_{Gsup}$ , correspondant au régime homogène, cette relation est quasi linéaire ( $n = 0,8 - 1$ ). Avec les interactions intenses entre bulles à  $U_{Gsup}$  élevé correspondant aux régimes de transition et hétérogène, la relation entre le taux de vide et la vitesse superficielle du gaz s'écarte de la linéarité, donc la valeur de  $n$  est inférieure à 1 ( $n = 0,4 - 0,6$ ) (Gourich et al., 2006; Miura et al., 2012). Par conséquent, le changement de pente de la courbe du taux de vide peut être identifié comme un point de transition de régime.

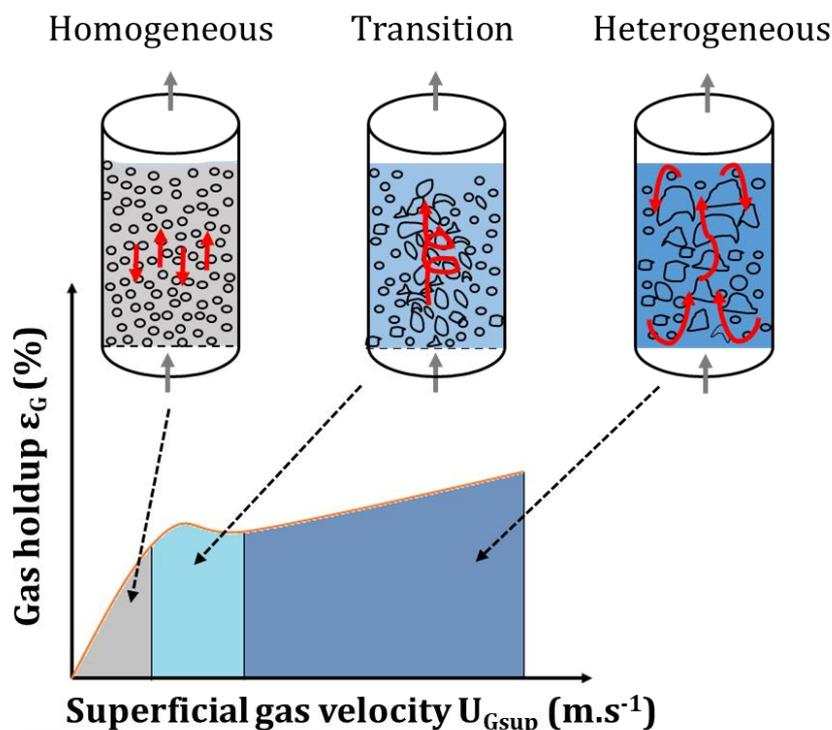


Figure II. 6 : Identification des transitions de régimes d'écoulement dans les colonnes à bulles (Shaikh and Al-Dahhan, 2007; Manjrekar et al., 2017)

2.2. *Méthode de Wallis ou « drift flux method »*

La méthode du « Drift flux », appelée aussi flux dispersif, a été utilisée en premier lieu par Wallis (1969) pour déterminer les régimes d'écoulement. Cette méthode est basée sur l'étude du mouvement relatif moyen d'une phase par rapport à l'autre. Le principe de ce concept est de rapporter le glissement interfacial à la vitesse moyenne volumique. Cette méthode est adaptée aux écoulements rencontrés dans les colonnes de bulles, qui sont régis par l'équilibre entre la force de flottabilité et celles de frottement interfacial (Vial et al., 2000). Dans le cas de notre colonne fermée au liquide, l'équation du « Drift flux » (Equation II.6) peut être simplifiée comme suit :

$$J_{G-L} = U_{Gsup} \times (1 - \varepsilon_G) \quad (II.6)$$

Pour déterminer les transitions entre régimes, il faut tracer ce flux de dispersion moyen ' $J_{G-L}$ ', donné par l'équation II.6, en fonction du taux de vide et repérer les changements du profil d'évolution.

2.3. *Méthode de « Zuber et Findley »*

Parfois, il peut être difficile d'identifier les transitions avec les méthodes précédentes lorsque la pente change progressivement. Pour cela, une autre méthode a été développée par Zuber et Findlay (1965) : elle consiste à tracer le rapport  $J_G/\varepsilon_G$  en fonction de la densité de flux totale ' $J$ ' (où  $J = J_G + J_L$ , représentant respectivement les densités volumiques moyennes de la phase gazeuse  $J_G$  et de la phase liquide  $J_L$ ), selon l'équation II.7 :

$$\frac{J_G}{\varepsilon_G} = C_1 \times J + C_2 \quad (II.7)$$

où  $C_1$  représente le degré d'uniformité du flux massique et du taux de vide sur la section du réacteur et  $C_2$  représente la vitesse terminale de montée des bulles. Dans le cas de notre colonne fermée au liquide, la densité de flux totale ' $J$ ' est égale à  $J_G$ . La densité volumique moyenne de la phase gazeuse ' $J_G$ ' correspond à la vitesse superficielle du gaz ( $U_{Gsup}$ ).

On peut donc tracer le rapport  $U_{Gsup}/\varepsilon_G$  (également appelé  $U_{swarm}$ ) en fonction de la vitesse superficielle du gaz ( $U_{Gsup}$ ) et identifier les régimes grâce aux changements de pente (valeurs de  $C_1$ ).  $C_1$  sera proche de 1 en régime homogène et augmentera lors de l'apparition du régime

hétérogène (Zuber et Findlay, 1965). En effet, l'apparition de grosses bulles avec un temps de séjour réduit se traduit par une augmentation de  $C_1$ .

En général, le changement de pente des deux dernières méthodes est plus net que le changement de pente du taux de vide.

### 3. Détermination du temps de mélange

Les expériences de temps de mélange sont réalisées en utilisant la méthode conductimétrique, qui consiste à ajouter une solution de NaCl comme traceur et à suivre la conductivité locale du mélange jusqu'à stabilisation. La quantité de NaCl injectée dépend de la densité ( $d$ ) de la phase liquide : 2 mL de NaCl à 20 g.L<sup>-1</sup> ( $d = 1,012$ ) sont utilisés pour l'eau du robinet et les solutions XG (0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) et 1 mL de NaCl à 200 g.L<sup>-1</sup> ( $d = 1,13$ ) est utilisé pour la solution de glycérol à 50 % m/m. La sonde de conductivité est installée en position p5 (Figure II.1). Le conductimètre utilisé est de marque Tacussel (CD 810), avec une fréquence d'échantillonnage de 50 Hz. L'acquisition réalisée avec un programme LabVIEW permet de suivre l'évolution du signal en temps réel jusqu'à atteindre une valeur stable. Le temps de mélange est déterminé pour des vitesses superficielles des gaz, comprises entre 0,002 et 0,040 m.s<sup>-1</sup> pour les quatre fluides (eau du robinet, XG 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup> et glycérol 50 % m/m).

Dans cette thèse, les expériences de temps de mélange sont réalisées par deux méthodes d'injection différentes : injection sur la largeur de la colonne et injection locale.

#### 3.1. *Injection sur la largeur de la colonne*

L'injection sur la largeur de la colonne est réalisée en 4 points d'injection régulièrement répartis sur la largeur (orifices de diamètre 1,5 mm). Ce système d'injection est placé à 17 cm au-dessus de la surface libre du liquide non aéré (Figure II.7a).

#### 3.2. *Injection locale*

L'injection locale est réalisée par le haut de la colonne en un seul point à l'aide d'un tube de diamètre de 1,5 mm. Ce système d'injection est placé à 17 cm au-dessus de la surface libre du liquide non aéré (Figure II.7b).

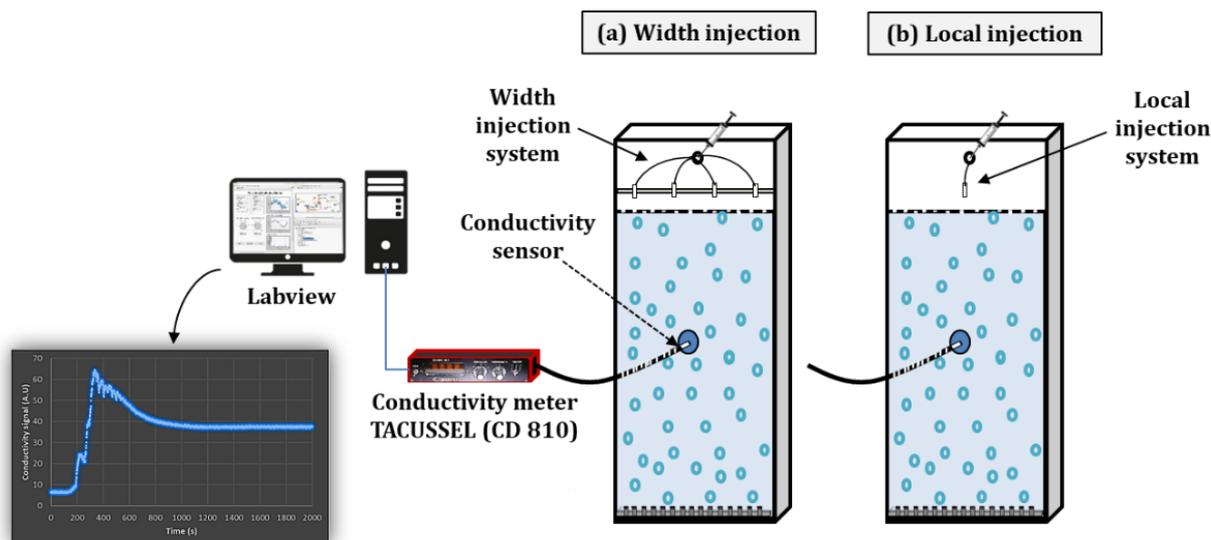


Figure II. 7 : Dispositif expérimental du temps de mélange : (a) injection sur la largeur et (b) injection locale

Afin d'éviter le risque de saturation de l'appareil de mesure par la solution saline, un maximum de quatre injections successives de traceur a été réalisé avant de renouveler la phase liquide. Le choix de la quantité injectée a été fait après l'étape d'étalonnage du conductimètre pour rester dans la gamme linéaire du signal de sortie, ce qui évitera de changer de gamme au cours des expériences (Figure II.8).

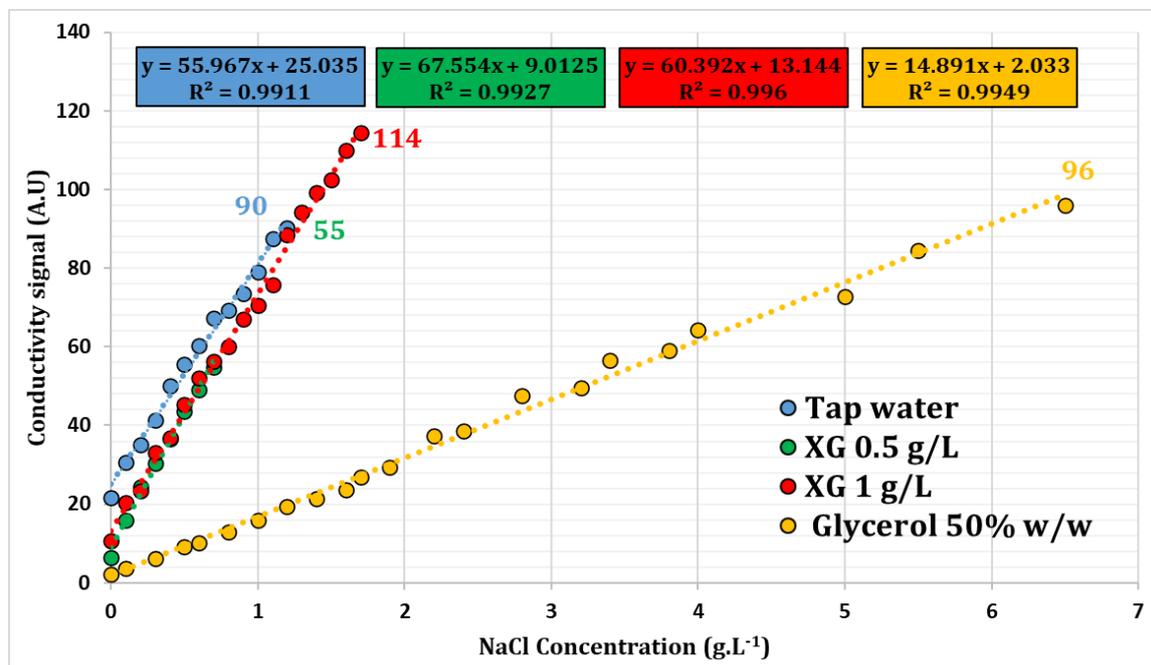


Figure II. 8 : Signal de conductivité en fonction de la concentration de NaCl pour tous les fluides testés

Dans nos expérimentations, des fluctuations du signal de conductivité sont observées et sont dues au passage de bulles à des vitesses superficielles de gaz élevées, notamment en régimes de transition et hétérogène. Un exemple du signal de conductivité normalisé est représenté sur

la figure II.9a, où les lignes vertes et rouges montrent les niveaux minimum et maximum du degré d'homogénéité à  $\pm 10\%$ . Pour résoudre ce problème de fluctuation de la conductivité, le signal a été filtré en moyennant les valeurs instantanées sur 0,5 s (lorsque le signal change rapidement) puis toutes les 2,5 s (lorsque le signal atteint l'état stable) (Figure II.9b).

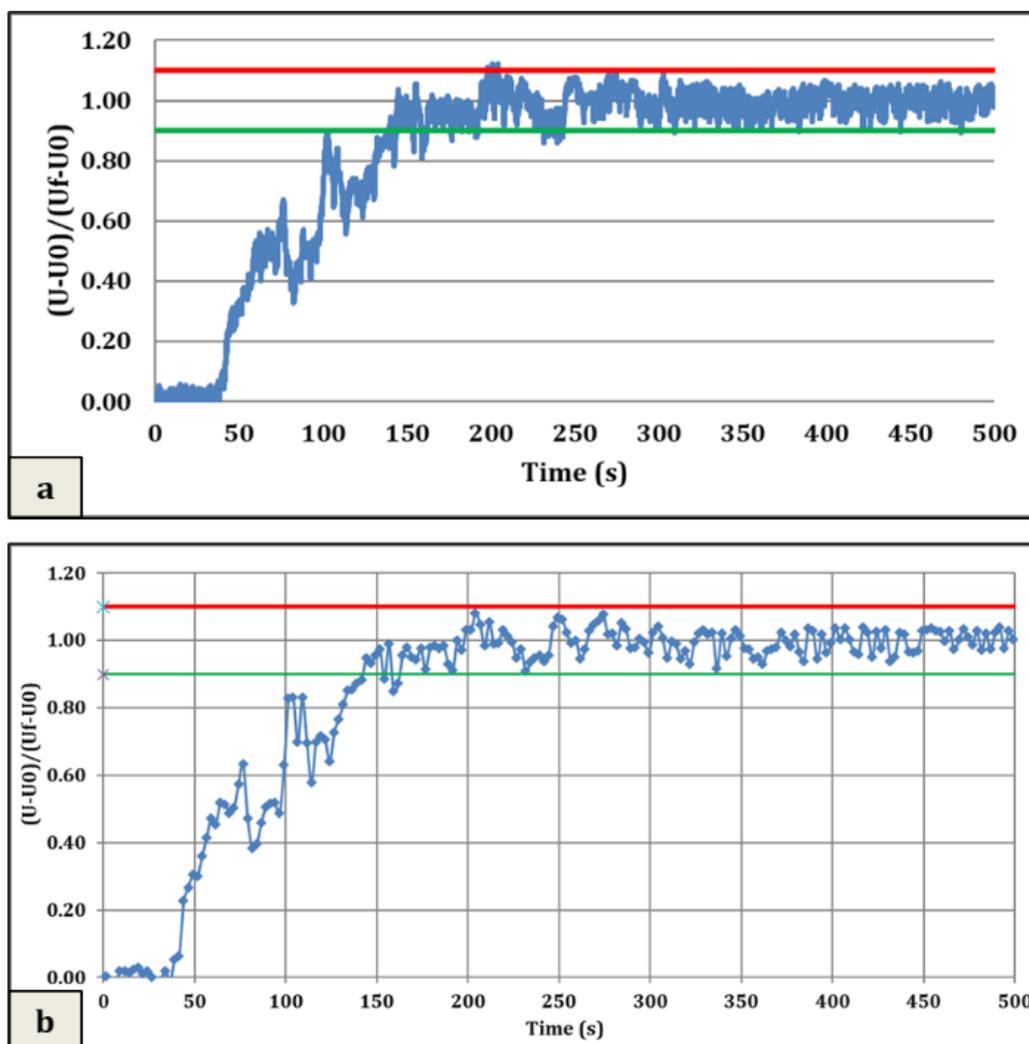


Figure II. 9 : Traitement du signal de temps de mélange : (a) Signal de conductivité normalisé ; (b) Courbe filtrée obtenue dans cette étude pour l'eau du robinet à  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$

#### 4. Détermination de coefficient de transfert gaz-liquide $k_{LA}$

##### 4.1. Estimation de $k_{LA}$ suivant l'hypothèse d'un liquide parfaitement mélangé

Le transfert de matière gaz-liquide à l'échelle du réacteur est caractérisé par des mesures de  $k_{LA}$ , réalisées avec la méthode standard en eau propre : ASCE 1992 ; Norme CE12255 : 15 1998, autrement appelée méthode de désoxygénation-réoxygénation. Dans cette méthode, l'absorption ou la désorption physique de l' $O_2$  permettent d'estimer expérimentalement le

coefficient  $k_{LA}$ . Le principe de cette méthode consiste à éliminer l'O<sub>2</sub> dissous dans la solution en injectant de l'azote N<sub>2</sub> jusqu'à ce que la concentration en O<sub>2</sub> dissous atteigne une valeur inférieure à 1% de celle de la saturation en O<sub>2</sub> (la concentration en O<sub>2</sub> atteint les valeurs minimales proches de zéro, c'est-à-dire 0,1 mg.L<sup>-1</sup>). Ensuite, l'air est injecté et l'augmentation de la concentration en O<sub>2</sub> dissous est suivie dans le temps jusqu'à ce que le liquide soit saturé en O<sub>2</sub> (> 90 % de la saturation en O<sub>2</sub>) (c'est-à-dire 8,7 mg.L<sup>-1</sup> à 20°C) (Figure II.10). La diminution (désoxygénation) et l'augmentation (réoxygénation) de la concentration en O<sub>2</sub> dissous en fonction du temps sont mesurées à l'aide d'une sonde à oxygène (OXROB10-CL4 Pyroscience) installée dans la colonne à la position P5 (Figure II.1). La fréquence d'acquisition est de 1 Hz. La figure II.11 montre le dispositif expérimental détaillé de cette méthode.

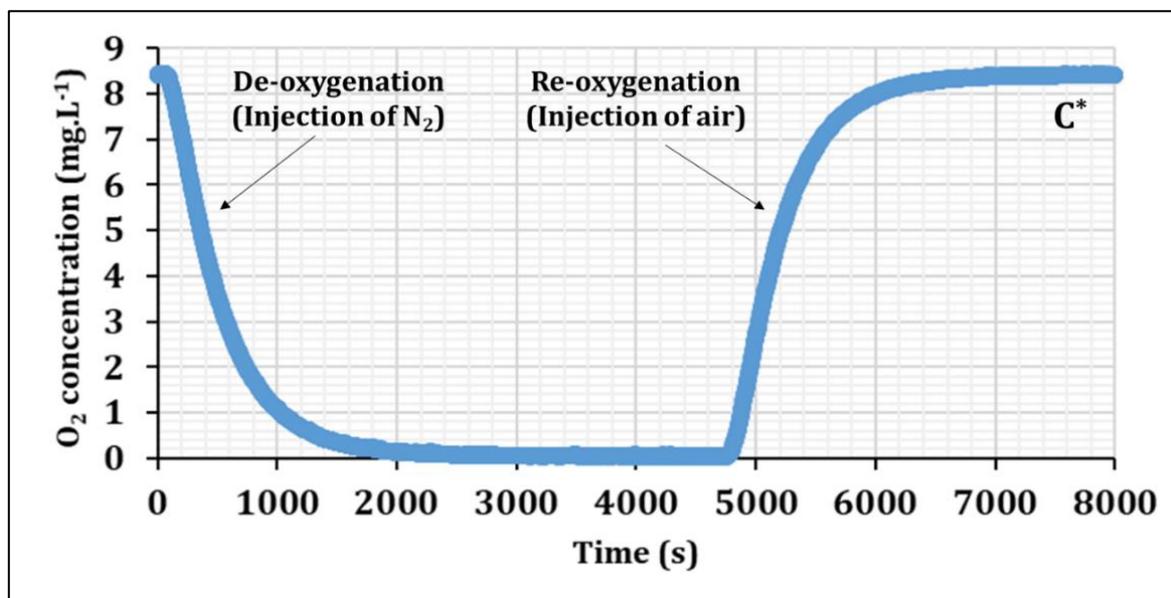


Figure II. 10 : Exemple de courbe Désoxygénation-Réoxygénation

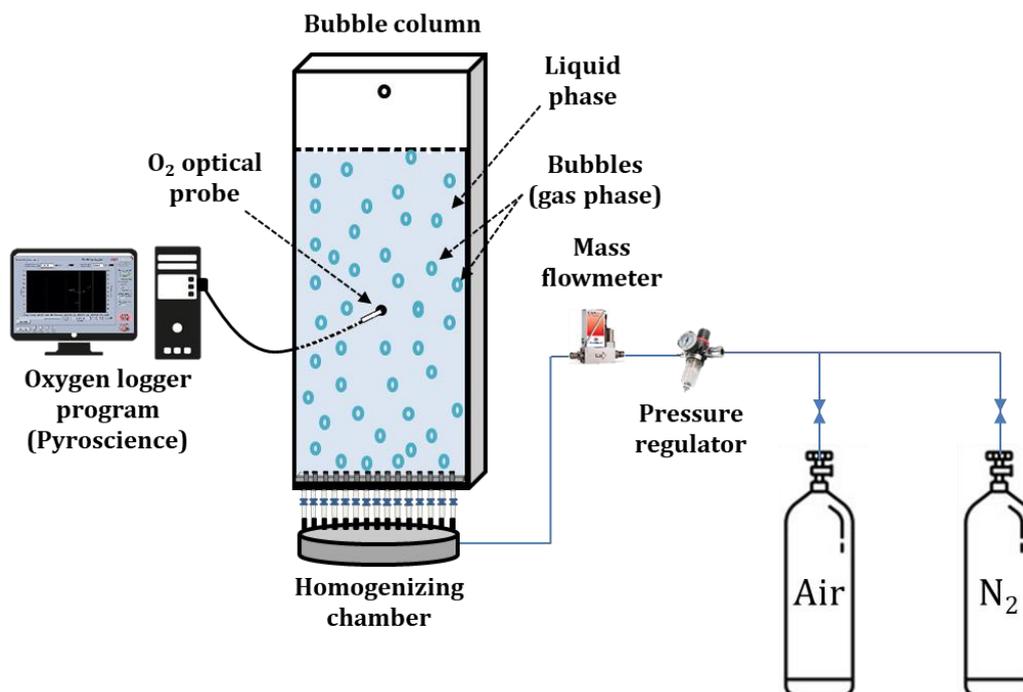


Figure II. 11 : Dispositif expérimental de transfert de matière gaz-liquide

Il est important de connaître le temps de réponse de la sonde d'O<sub>2</sub>. La méthode consiste à placer la sonde dans de l'eau distillée saturée en azote sous agitation magnétique (0% O<sub>2</sub>) puis à la transférer instantanément dans une solution saturée en air atmosphérique (injection d'air) également sous agitation magnétique. Il suffit alors de tracer l'évolution de la concentration d'O<sub>2</sub> en fonction du temps jusqu'à ce qu'elle atteigne la concentration d'O<sub>2</sub> à l'équilibre avec l'eau (8,7 mg.L<sup>-1</sup>). Le temps de réponse de la sonde correspond au temps nécessaire pour obtenir 63% d'O<sub>2</sub> dissous par rapport à la saturation (Figure II.12). Le temps de réponse de la sonde a été déterminé trois fois. Dans notre cas, la sonde d'oxygène présente un temps de réponse de 6 secondes. Ce temps de réponse est considéré comme négligeable par rapport à la dynamique de transfert de matière gaz-liquide. De plus, dans notre cas, le changement entre le bullage d'azote et d'air est très rapide donc le rétablissement de l'hydrodynamique est considéré comme quasi instantané.

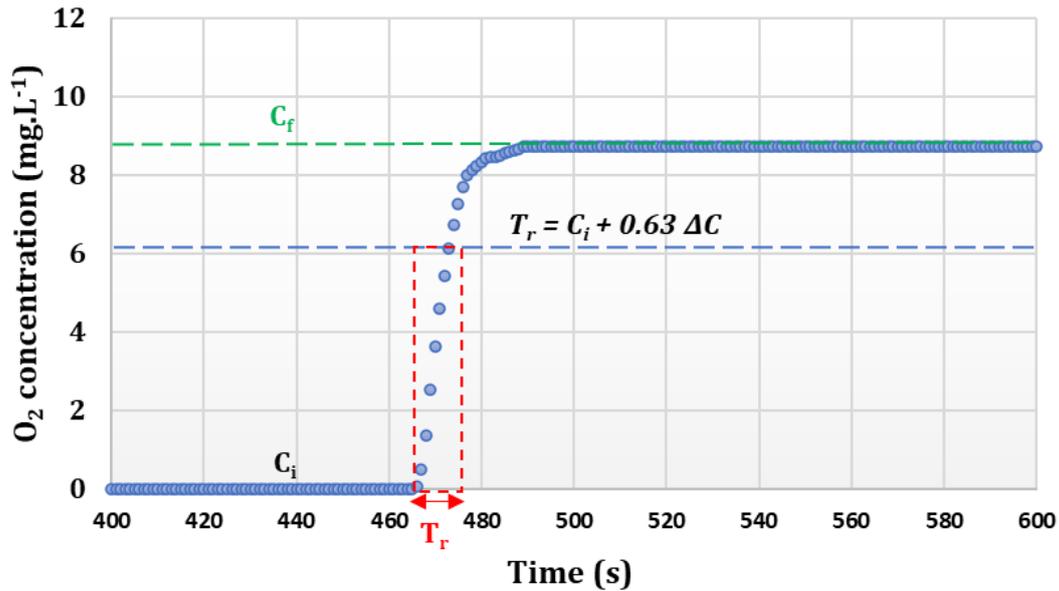


Figure II. 12 : Détermination du temps de réponse de la sonde d'O<sub>2</sub>

Pour déterminer  $k_La$  à partir des signaux de concentration d'O<sub>2</sub> pendant les cycles de désoxygénation ou de réoxygénation, il existe certaines hypothèses pour les deux phases compte tenu de l'hydrodynamique et du mélange dans le système et de la composition des phases. Dans une première approche, le liquide est considéré comme parfaitement mélangé et la composition de la phase gazeuse est supposée uniforme.

Dans le cas des contacteurs gaz-liquide où la résistance de transfert de matière gaz-liquide est située du côté liquide, et où le transfert se fait à travers une interface, le flux massique peut être exprimé comme suit :

$$\Phi = k_L a \times V_L \times \Delta C_L \quad (\text{II.8})$$

où  $a$  désigne la surface d'échange par unité de volume de liquide ( $a = S/V_L$ ) ;  $k_La$ , le coefficient volumique de transfert ( $s^{-1}$ ) et  $\Delta C_L$  ( $kg.m^{-3}$ ) le gradient de concentration ou potentiel d'échange.

En effectuant un bilan massique sur le réacteur gaz-liquide et en supposant des compositions gaz et liquide uniformes, sans réaction et ayant le réacteur batch, on obtient :

$$\Phi = V_L \frac{dC_L}{dt} \quad (\text{II.9})$$

Le transfert de matière volumique est déduit d'un bilan massique d'O<sub>2</sub> sur l'ensemble de la phase liquide :

$$\frac{dC_L}{dt} = k_L a (C_L^* - C_L) \quad (\text{II.10})$$

où  $C_L^*$ , est la teneur en  $O_2$  saturé dans le liquide ( $kg.m^{-3}$ ) et  $C_L$ , la teneur en  $O_2$  dans le liquide ( $kg.m^{-3}$ ).

Par intégration de l'équation différentielle (Equation II.10) sur la période transitoire, l'augmentation de la concentration en  $O_2$  au cours du temps (cycle de réoxygénation) permet d'atteindre le  $k_L a$  :

$$C_L = C_L^* (1 - e^{-(k_L a)t}) \quad (\text{II.11})$$

Après linéarisation, cette équation s'écrit :

$$\ln \frac{(C_L^* - C_L)}{C_L^*} = -k_L a \cdot t \quad (\text{II.12})$$

Le tracé de  $\ln \frac{(C_L^* - C_L)}{C_L^*} = f(t)$  permet d'identifier  $k_L a$  qui correspond à la pente de la courbe (Figure II.13).

Toutes les expériences ont été réalisées deux fois pour chaque fluide et vitesse superficielle de gaz. Quatre valeurs de  $k_L a$  ont ainsi été obtenues pour chaque condition expérimentale, les résultats ont ensuite été moyennés.

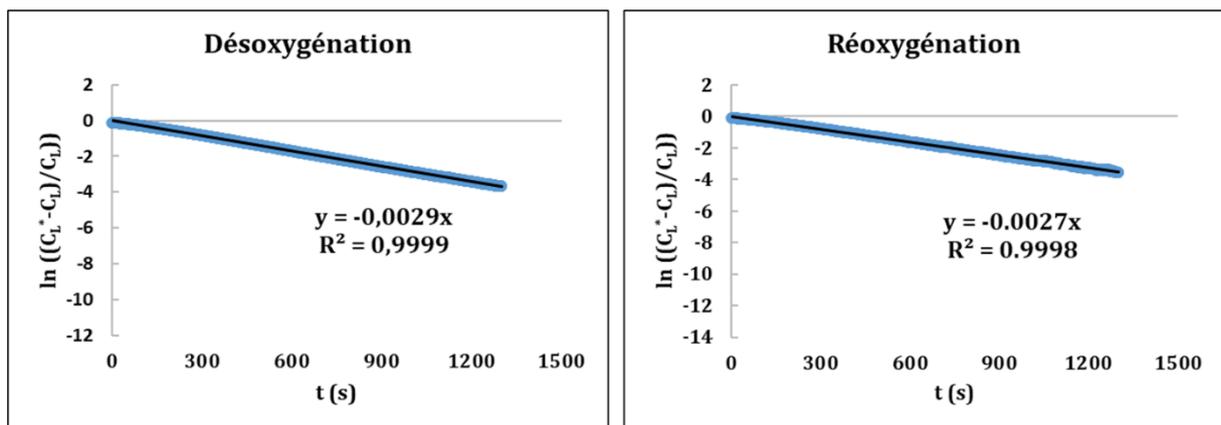


Figure II. 13 : Traitement des données de :  $\ln ((C_L^* - C_L) / C_L^*)$  en fonction du temps pour les phases de désoxygénation et de réoxygénation

Pendant, dans cette étude, la comparaison entre le temps de mélange ( $t_m$ ) obtenu par injection locale et le temps caractéristique de transfert de matière gaz-liquide ( $1/k_L a$ ) montre que l'hypothèse de mélange parfait de la phase liquide n'est pas valable (les résultats du  $t_m$  et

du  $k_{LA}$  sont détaillés dans le chapitre IV). Ceci a été également observé par Almani (2021) dans la colonne à bulles à faible entrefer ( $e = 4$  mm).

Il existe d'autres modèles, outre l'hypothèse du mélange parfait (Álvarez et al., 2000; Li et al., 2012; de Jesus et al., 2017; Thobie et al., 2017; Kumar et al., 2018; Dong et al., 2019; Almani, 2021), tels que la dispersion axiale pour la phase liquide (Dhaouadi et al., 1997, 2008; Gourich et al., 2008) qui est adaptée à la géométrie d'une colonne à bulles. En particulier, étant donné que la détermination du  $k_{LA}$  est faite à partir d'expériences de désoxygénation-réoxygénation, où le gaz est injecté sur toute la surface inférieure du réacteur, il n'y a pas de gradients radiaux de concentration en  $O_2$  dans la phase liquide dans cette expérience et seul un mélange axial imparfait doit être pris en compte. C'est pourquoi nous avons décidé d'analyser les expériences de désoxygénation-réoxygénation avec modèle de dispersion axiale (Gourich et al., 2008) pour la phase liquide.

Pour la phase gazeuse, elle est supposée de composition uniforme et égale à celle d'entrée, du fait de la faible solubilité de l' $O_2$  et du temps de séjour relativement court des bulles (faible hauteur de colonne). L'influence de la différence de pression hydrostatique entre le haut et le bas de la colonne est également négligée.

#### 4.2. Estimation de $k_{LA}$ suivant le modèle de dispersion axiale

Compte tenu des informations ci-dessus, deux codes développés sur Scilab ont été utilisés pour estimer le coefficient de dispersion axiale  $D_{ax}$  et le coefficient de transfert de matière gaz-liquide volumique  $k_{LA}$ . Le premier programme (décrit en 4.2.1) utilise les informations de temps de mélange expérimental obtenues avec des données « d'injection sur la largeur » (concentration de traceur salin en fonction du temps) ainsi que le taux de vide et estime la valeur de  $D_{ax}$ . Le deuxième programme (décrit en 4.2.2) utilise la valeur  $D_{ax}$  obtenue, ainsi que les données expérimentales de réoxygénation (concentration d' $O_2$  dissous en fonction du temps) pour estimer le  $k_{LA}$  global.

##### 4.2.1. Coefficient de dispersion axiale $D_{ax}$

Dans ce travail, le « modèle de dispersion axiale pour la phase liquide » est utilisé. Généralement, il permet de décrire un écoulement de vitesse moyenne  $U$  (dans notre cas, il n'y a pas de vitesse pour la phase liquide,  $U = 0$ ) où la dispersion axiale aléatoire se superpose à l'écoulement convectif. Par analogie à la diffusion moléculaire, ce phénomène est décrit par

un coefficient de dispersion  $D_{ax}$ . Ce coefficient prend en compte tous les phénomènes qui font dévier l'écoulement de l'écoulement purement convectif : profil de vitesse non uniforme sur la section du réacteur, diffusion moléculaire, dispersion turbulente.

Le débit axial  $F$  d'un composant peut ainsi être décrit par :

$$F = U\Omega C - \Omega D_{ax} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (\text{II.13})$$

où  $\Omega$  est la section transversale du réacteur,  $z$  est la position axiale et  $C$  la concentration du composant.

Dans notre cas, la vitesse moyenne du liquide est  $U = 0$  (colonne fermée au liquide), donc :

$$F = -\Omega D_{ax} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (\text{II.14})$$

Le bilan massique du traceur dans la colonne à bulles peut s'écrire comme suit.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{ax} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (\text{II.15})$$

Ce bilan de matière permet de décrire les expériences où le traceur est injecté instantanément et uniformément à la surface supérieure du réacteur, en supposant le modèle de dispersion axiale.

Dans ce cas, les conditions initiales sont :

$$\begin{aligned} C(z, t = 0) &= 0 && \forall z < H \\ C(z = H, t = 0) &= C_0 && \text{pour } z = H \end{aligned} \quad (\text{II.16})$$

où  $H$  est la hauteur de dispersion gaz-liquide dans le réacteur. Et les conditions aux limites sont :

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial z} &= 0 && \text{pour } z = 0 \\ \frac{\partial C}{\partial z} &= 0 && \text{pour } z = H \end{aligned} \quad (\text{II.17})$$

Ce modèle est implémenté dans un programme Scilab qui minimise la « somme des carrés des différences » entre le signal expérimental normalisé en réponse à « l'injection en largeur »

et le modèle pour estimer le coefficient de dispersion axiale dans chaque condition d'écoulement ( $U_{Gsup}$  et fluide). La figure II.14 montre l'estimation  $D_{ax}$  de l'eau à  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$ . Cette figure montre l'ajustement avec les données expérimentales par la méthode des moindres carrés.

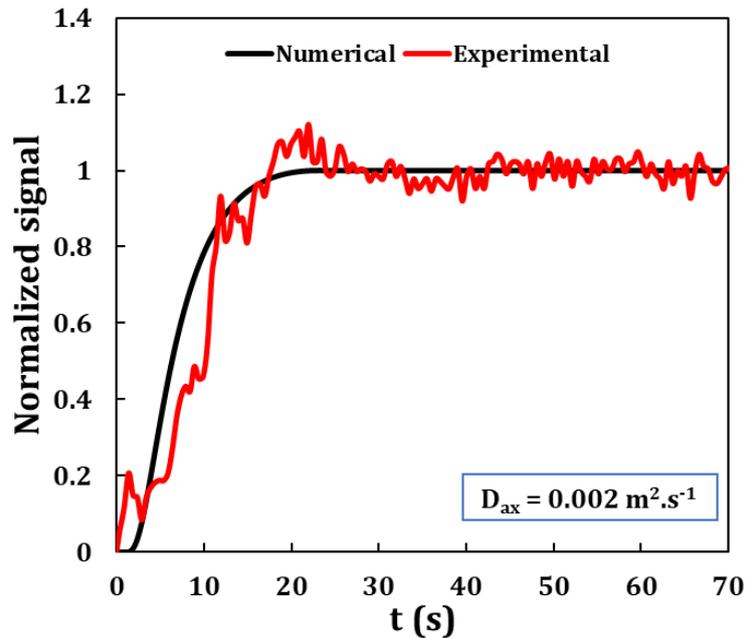


Figure II. 14 : Valeurs expérimentales et numériques pour l'estimation du coefficient de dispersion axiale  $D_{ax}$ ,  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$  pour l'eau

#### 4.2.2. Détermination de $k_L a$ avec le modèle de dispersion axiale

L'équation de transport pour  $O_2$  est la même que pour le traceur salin, sauf qu'un terme correspondant au transfert depuis les bulles (réoxygénation) apparaît par rapport à l'équation II.15 :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = k_L a (C_L^* - C_L) + D_{ax} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (\text{II.18})$$

Avec conditions initiales et aux limites :

$$C(z, t = 0) = 0 \quad \forall z$$

$$\frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad \text{pour } z = 0$$

$$\frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad \text{pour } z = H \quad (\text{II.19})$$

Les résultats obtenus en supposant un mélange parfait et un modèle de dispersion axiale sont comparés aux résultats expérimentaux de la réoxygénation, comme le montre la figure II.15. La racine de l'erreur quadratique moyenne (RMSE) est également calculé pour vérifier le bon accord entre les résultats expérimentaux et numériques.

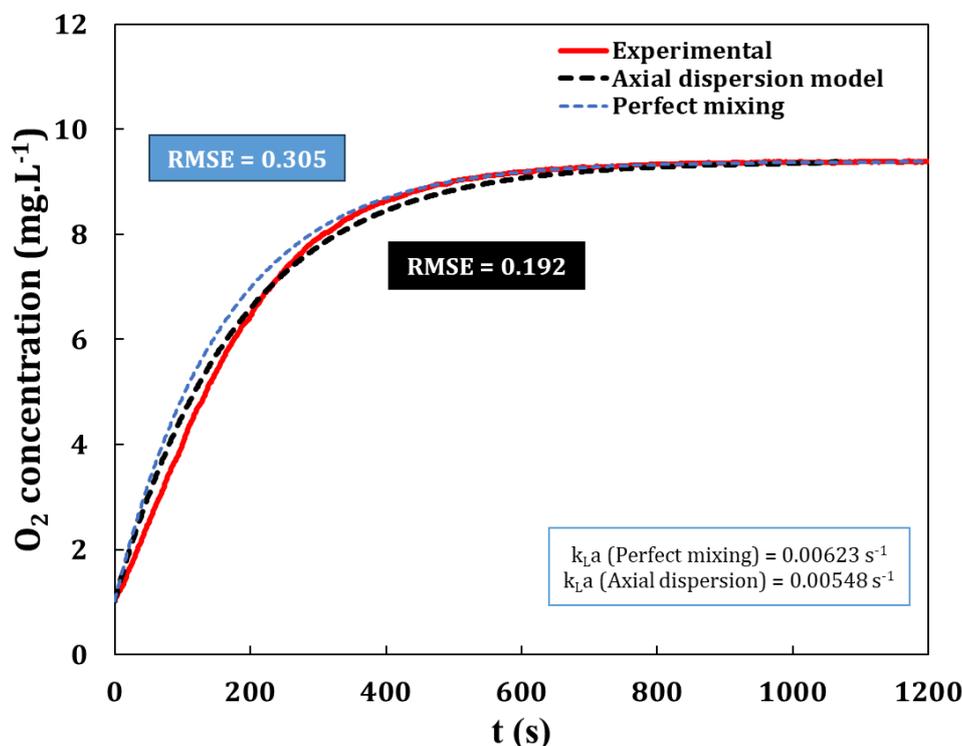


Figure II. 15 : Estimation de  $k_{L,a}$  pour l'eau avec  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$  à l'aide du programme Scilab

## 5. Détermination de la forme, de la taille et de la vitesse des bulles par ombroscopie

Afin de compléter l'étude hydrodynamique globale, la forme, la taille, la vitesse et la trajectoire des bulles ont été déterminées par ombroscopie.

### 5.1. Présentation et principe de la méthode

La méthode d'ombroscopie est une technique optique non intrusive de visualisation de l'écoulement qui consiste à placer le fluide à étudier entre une source lumineuse et un capteur recevant la lumière.

Dans cette étude, le système DANTEC DYNAMICS "ShadowStrobe" est utilisé comme source lumineuse. Ce système consiste à utiliser le laser Nd-Yag pulsé pour illuminer une fibre optique fournissant des impulsions lumineuses extrêmement courtes, de quelques nanosecondes à des centaines de nanosecondes. La caméra (FlowSense M3/E8) est utilisée

dans cette étude pour enregistrer des images à la fréquence de pulsation définie par le système d'éclairage et à l'aide d'un système de synchronisation. La fréquence du laser utilisée dans cette étude est de 20 Hz et le temps entre les impulsions est fixé à 1000  $\mu$ s. La caméra a une résolution de 1600  $\times$  1186 pixels et est équipée d'un objectif à focale fixe de 60 mm et d'une fréquence de 20 Hz. Pour avoir un éclairage uniforme, le système « shadowStrobe » et la caméra sont alignés dans le même axe optique.

### *5.2. Dispositif expérimental*

La caractérisation de la phase gazeuse (les bulles) est réalisée dans la colonne à bulles de 2 mm d'épaisseur. La mesure d'ombroscopie a été faite dans deux zones différentes (zone 1 et zone 2), ayant la même dimension (80  $\times$  113 mm<sup>2</sup>). La zone 1 et la zone 2 sont situées respectivement à une hauteur de 196 mm et 560 mm du bas de la colonne. La distance entre les deux zones est de 284 mm.

Quatre vitesses superficielles de gaz ( $U_{Gsup} = 0,002, 0,003, 0,004$  et  $0,007$  m.s<sup>-1</sup>) sont testées, ces  $U_{Gsup}$  correspondent au régime homogène et au début du régime de transition. A  $U_{Gsup}$  supérieur à 0,007 m.s<sup>-1</sup>, il est difficile de traiter les images du fait de la présence de grosses bulles qui ont un diamètre équivalent supérieur à la zone étudiée.

Ce type de mesure est possible dans notre cas de colonne confinée puisque les bulles sont toujours dans le même plan. Des études antérieures ont confirmé la fiabilité de cette technique (Roudet, 2008). En effet, des images de bulles confinées très nettes ont été observées avec une visualisation bien définie du contour.

Le dispositif expérimental de la méthode d'ombroscopie est présenté dans la figure II.16.

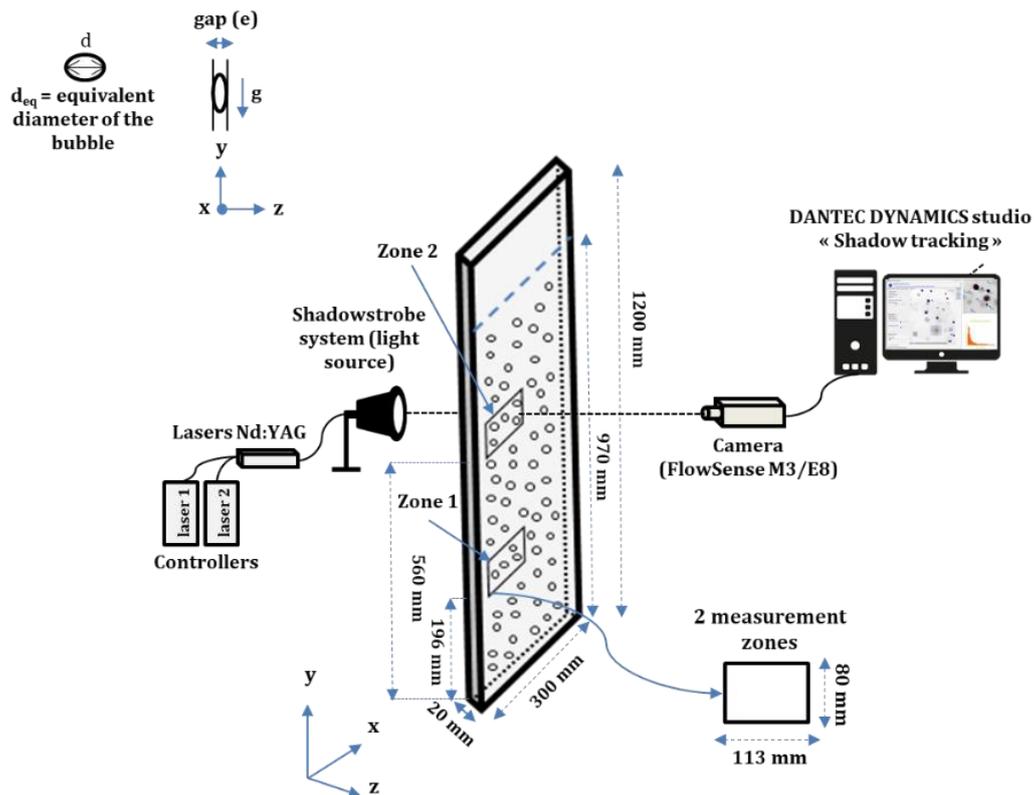


Figure II. 16 : Dispositif expérimental de la technique d'ombroscopie utilisée dans cette étude

### 5.3. Méthodes de calcul : taille, vitesse, trajectoire des bulles et surface spécifique d'échange

Pour chaque configuration (zone, fluide et  $U_{Gsup}$ ), 500 images sont capturées et traitées selon la méthode 'Shadow Tracking' du logiciel DANTEC DYNAMICS.

- Taille des bulles :

Pour chaque bulle détectée, cette méthode estime l'aire projetée dans un plan vertical. Le diamètre équivalent ' $d_b$ ' (mm) des bulles est défini par l'équation suivante :

$$d_b = \sqrt{\frac{4A}{\pi}} \quad (II.20)$$

avec,  $A$ , l'aire projetée ( $mm^2$ ).

Pour caractériser la distribution de la taille moyenne d'une population de bulles, le diamètre de Sauter moyen ' $d_{32}$ ' est calculé par l'équation suivante :

$$d_{sauter} = d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^n d_i^3 n_i}{\sum_{i=1}^n d_i^2 n_i} \quad (\text{II.21})$$

où  $d_i$  est le diamètre équivalent de la bulle 'i' et  $n_i$  est le nombre de bulles de diamètre  $d_i$ .

- Vitesse des bulles :

Les composantes horizontale et verticale de la vitesse de la bulle (respectivement  $u$  et  $v$  en  $\text{m.s}^{-1}$ ) sont déterminées comme les déplacements horizontaux et verticaux du centre de gravité de la bulle entre deux images divisées par le temps entre deux impulsions laser. Ensuite, la norme de la vitesse d'une bulle montante est déterminée par la relation suivante :

$$U = \sqrt{u^2 + v^2} \quad (\text{II.22})$$

- Rapport d'aspect :

La forme de la bulle est caractérisée par le rapport d'aspect de la bulle,  $E$  (rapport entre le petit et le grand axe) :

$$E = \frac{\text{Min axis}}{\text{Major axis}} \quad (\text{II.23})$$

- Facteur de forme :

Le facteur de forme est une mesure de la circularité ou de la compacité de la forme. Ce paramètre est calculé à partir de l'équation II.24 :

$$S_f = \frac{P^2}{4 \times \pi \times A} \quad (\text{II.24})$$

où  $P$  est le périmètre et  $A$  est l'aire projetée.

- Populations des bulles :

Après cela, une analyse statistique est effectuée pour identifier les différentes classes de taille de bulles (bulles formées au distributeur ayant un diamètre moyen ' $d_0$ ', celles résultant de la coalescence de plusieurs bulles et celles dues au phénomène de rupture). Les différentes populations de bulles sont également identifiées en traçant les composantes horizontale, verticale et la norme des vitesses en fonction de leur diamètre équivalent.

Afin de caractériser les différentes classes, la bulle a été considérée comme un cylindre aplati. Ainsi, lorsque deux bulles fusionnent pour former une bulle plus grande, l'aire projetée  $A$  va doubler. L'aire de la nouvelle bulle ( $2A_0$ ) est directement proportionnelle au carré de son diamètre équivalent  $d_b$  ( $2A_0 \sim d_b^2$ ). Alors, le diamètre équivalent de la bulle coalescée doit être égal à  $(\sqrt{2} \times d_0)$  dans le cas de deux bulles,  $(\sqrt{3} \times d_0)$  dans le cas de trois bulles etc. ( $d_0$  et  $A_0$  sont respectivement le diamètre équivalent et l'aire projetée de la bulle formée au capillaire).

- Trajectoire des bulles :

La trajectoire des bulles est tracée en sélectionnant certaines bulles et en suivant leur trajectoire dans plusieurs images. Toutes les images sont traitées avec le programme Image J® qui superpose les images et donne la trajectoire des bulles.

- Détermination de la surface spécifique d'échange 'a' :

Il est intéressant d'estimer indépendamment les influences respectives du ' $k_L$ ' et du ' $a$ ' sur la valeur de  $k_L a$ . Pour cela, la surface spécifique d'échange ' $a$ ' ( $m^{-1}$ ) a été calculée, comme le rapport entre la somme des surfaces des bulles et le volume de la phase liquide (Equation II.25) :

$$a = \frac{\sum_{i=1}^n S_{bulle\ i}}{V_L} \quad (II.25)$$

avec :

$$S_{bulle\ i} = (2 \times \frac{\pi d_i^2}{4}) + (e \times \pi d_i) \quad (II.26)$$

où  $e$  (l'entrefer de la colonne) = 2 mm,  $n$  le nombre de bulles dans la zone et  $V_L$ , en  $m^3$ , le volume de la phase liquide se calcule comme suit :

$$V_L = V_{zone} - V_{Gaz} \quad (II.27)$$

$$\text{où } V_{zone} = 1,81 \times 10^{-5} m^3 \text{ et } V_{Gaz} = \sum_{i=1}^n V_{bulle\ i} = \sum_{i=1}^n (\frac{\pi d_i^2}{4} \times e)$$

Pour les fluides visqueux et non-Newtoniens (Glycérol 50% m/m, XG 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>), une moyenne de 20 images est utilisée pour calculer la valeur de ' $a$ ' et pour l'eau, une moyenne de 100 images est utilisée. Ce choix du nombre d'images vise à garantir un nombre suffisant de

bulles pour un calcul précis de 'a'. Cette différence, en termes de nombre d'images, s'explique par le fait que, dans les fluides visqueux, les bulles traversent plus fréquemment la zone d'étude par rapport à l'eau, nécessitant donc un nombre d'images plus faible par rapport à l'eau pour une analyse précise.

## 6. Mesure des composantes du cisaillement pariétal par la méthode électrochimique

La technique de polarographie (autrement dit méthode électrochimique) est la méthode la plus utilisée pour mesurer le gradient de vitesse pariétal. Les avantages de cette technique incluent la simplicité du circuit électrique et de l'équipement utilisé, la possibilité d'effectuer des mesures à proximité de la paroi d'une façon non intrusive, ainsi que la petite taille des capteurs utilisés.

Dans ce travail, la méthode électrochimique sera utilisée pour mesurer le gradient pariétal de vitesse et donc la contrainte de cisaillement pariétale (force tangentielle par unité de surface exercée par le fluide) dans une colonne à bulles confinée de 2 mm d'épaisseur et pour différentes solutions (Newtoniens et non-Newtoniens).

### 6.1. Introduction

Reiss et Hanratty (1963) ont été les premiers à utiliser la méthode polarographique pour mesurer les cisaillements pariétaux en utilisant des microélectrodes en nickel. En supposant que la vitesse variait linéairement dans la couche limite de concentration massique, ils ont établi une relation entre les fluctuations de courant enregistrées par les électrodes et les fluctuations de vitesse résultant de la réaction chimique suffisamment rapide.

De nombreux auteurs ont utilisé et décrit cette méthode pour étudier localement la contrainte de cisaillement à la paroi (Reiss and Hanratty, 1963; Mitchell and Hanratty, 1966; Sobolik et al., 1998; Rehimy et al., 2006; Blel et al., 2009a, 2009b; Böhm et al., 2013; Thobie et al., 2022b).

### 6.2. Principe de la méthode électrochimique

Cette technique, largement décrite par Reiss and Hanratty (1963), consiste à mesurer le courant limite à la cathode d'une cellule d'électrolyse lors d'une réaction électrochimique résultant d'une différence de potentiel entre l'anode (contre électrode) et la cathode (électrode de travail), afin de déterminer le coefficient de transfert de matière d'un couple oxydo-

réducteur. Ce coefficient est déterminé quand une limitation diffusionnelle au niveau de la surface de transfert étudiée a été établie, de sorte que la concentration des ions réactifs peut être considérée comme nulle à la surface de la petite électrode de travail (Blel et al., 2009a, 2009b). La cathode, qui est l'élément sensible, est de taille très petite pour permettre une étude très locale alors que l'anode, la contre électrode, est de grandes dimensions afin de ne pas limiter le courant circulant dans la cellule. Dans ce cas, étant donné que les courants de la cathode et de l'anode sont égaux, mais ont des densités de courant différentes en raison des dimensions géométriques, les processus anodiques n'affectent pratiquement pas le courant dans le circuit.

Par conséquent, cette méthode permet de déterminer expérimentalement le coefficient de transfert de matière liquide-solide et de remonter au gradient pariétal de vitesse en faisant l'analogie avec le transfert de quantité de mouvement (Blel et al., 2008; Thobie et al., 2022b).

### 6.3. Préparation des solutions électrochimiques

La solution électrochimique utilisée dans ce travail est composée des espèces chimiques impliquées dans la réaction, à savoir, le ferricyanure de potassium ( $25 \text{ mol.m}^{-3}$ ), le ferrocyanure de potassium ( $25 \text{ mol.m}^{-3}$ ) et d'un excès de sulfate de potassium ( $200 \text{ mol.m}^{-3}$ ) qui est un électrolyte inerte utilisé pour annuler l'effet du champ électrique entre les électrodes sur la diffusion de l'espèce chimique.

Avant de commencer les mesures électrochimiques, une mesure de la tension superficielle a été effectuée dans l'objectif de déterminer l'effet des réactifs de la solution électrochimique sur la tension superficielle ( $\sigma$ ) des différentes phases liquides testées. Cette propriété a été mesurée par la méthode de la goutte pendante et a été comparée aux valeurs obtenues dans les solutions sans réactifs électrochimiques. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau II.2.

Tableau II. 2 : Valeurs de la tension superficielle des solutions liquides utilisées avec et sans les réactifs électrochimiques

Fluide	$\sigma$ [ $\text{N.m}^{-1}$ ] (sans réactifs électrochimiques)	$\sigma$ [ $\text{N.m}^{-1}$ ] (avec réactifs électrochimiques)	T° (°C)
Eau déminéralisée	$0,0704 \pm 0,001$	$0,0665 \pm 0,001$	22
Solution de XG ( $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ )	$0,0694 \pm 0,007$	$0,0667 \pm 0,005$	22
Solution de XG ( $1 \text{ g.L}^{-1}$ )	$0,0687 \pm 0,001$	$0,0664 \pm 0,002$	22

Les résultats montrent que les réactifs électrochimiques utilisés pour la caractérisation du cisaillement pariétal modifient peu la tension superficielle (entre 3,3 et 5,5%) et ceci pour l'ensemble des solutions utilisées. Ce résultat est important car la variation de la tension superficielle influence la forme, la taille et le mouvement des bulles dans la phase liquide.

La réaction électrochimique correspond à une réduction cathodique des ions ferricyanure :



Le courant produit au cours de cette réaction chimique dépend de quatre phénomènes : diffusion moléculaire, convection forcée et naturelle et migration dans le champ potentiel. La convection naturelle est négligeable lorsque la contrainte de cisaillement à la paroi est suffisamment élevée. La migration est considérée négligeable en ajoutant un excès d'électrolyte neutre (dans ce cas, le sulfate de potassium) dans la solution de sorte que le transfert des espèces actives de la majeure partie du flux ne soit régi que par la convection forcée (Thobie, 2018). Donc, au voisinage de l'électrode, le transport des ions est uniquement dû aux phénomènes de diffusion et de convection :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{V} \cdot \overrightarrow{grad}(C) = D_{ox} \cdot \Delta C \quad (II.29)$$

où  $C$  désigne la concentration locale instantanée de l'oxydant ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ ),  $D_{ox}$  son coefficient de diffusion moléculaire ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et  $\vec{V}$  la vitesse locale instantanée de l'écoulement ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ).

#### 6.4. Dispositif expérimental

L'acquisition du signal pour les mesures du cisaillement pariétal a été réalisée à l'aide d'un système EDIK développé par l'ICPF (Institute of Chemical Process Fundamentals) de l'Académie des Sciences de la République Tchèque à Prague. Ce système permet de mesurer le courant électrique sur la position de mesure et ce dernier est converti en tension. Puis, les tensions sont envoyées vers la carte d'acquisition NI PCI-6221 (68 pins) AD/DA qui permet le stockage des données. Un programme d'acquisition (EDWork) élaboré sous LabVIEW permet le contrôle des paramètres d'acquisition tels que la durée d'enregistrement, la fréquence d'acquisition, la tension de polarisation, la gamme d'intensité, etc. Dans ce travail, les courants limites de diffusion sont enregistrés avec une fréquence d'acquisition de 1000 Hz pour une période de mesure de 120 secondes. La mesure de contrainte de cisaillement pariétal a été faite dans six positions dans la colonne comme on peut voir dans la figure II.17.

Le traitement du signal a été effectué avec le logiciel Matlab. Les différentes étapes de traitement par le logiciel Matlab sont détaillées dans Blel (2007).

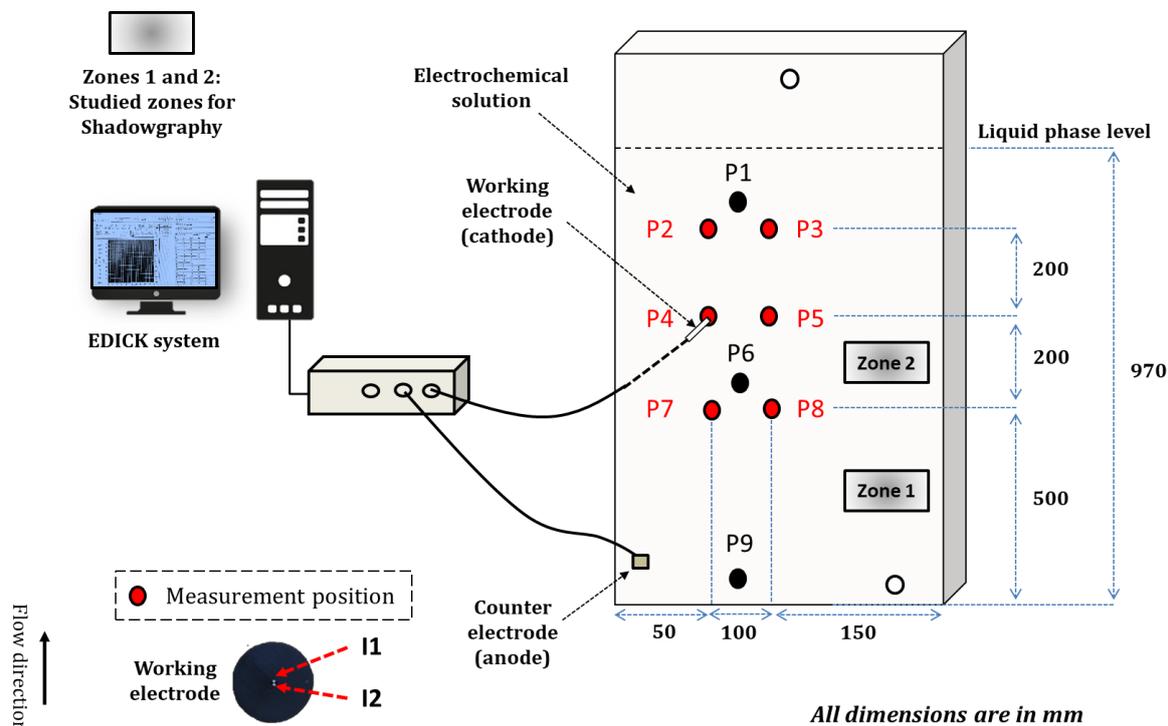


Figure II. 17 : Dispositif utilisé pour la méthode électrochimique et emplacement des différentes positions de mesure sur la colonne à bulles confinée (2 mm d'entrefer)

Dans la présente étude, une sonde formée de deux fils de platine circulaires de diamètre théorique d'environ 0,40 mm pour chacun avec un espacement entre les fils égal à 25  $\mu\text{m}$  est installée en affleurant la paroi de la colonne à bulles confinée. La connaissance du diamètre réel des fils est essentielle car le transfert de matière aura lieu à la surface de chaque fil et est proportionnel à ce dernier. L'étalonnage de cette sonde a été effectué après plusieurs mesures pour s'assurer que la sonde était active (la méthode d'étalonnage est détaillée dans la partie 6.8). Dans ce travail, seuls les résultats obtenus par le fil « I1 » sont présentés.

L'intérêt d'utiliser une sonde de petite taille est de permettre de remonter aux fluctuations du gradient de vitesse à partir des fluctuations du courant électrique (Blel, 2007).

### 6.5. Courant limite de diffusion et détermination de la tension de polarisation

Dans la condition où une limitation diffusionnelle existe au niveau de l'électrode de travail, le courant mesuré est appelé courant limite de diffusion ( $I_{lim}$ ).  $I_{lim}$  est déterminé en traçant l'évolution de l'intensité en fonction du potentiel appliqué, un plateau de diffusion apparait, sa valeur est déterminée comme le centre du plateau de diffusion (Blel, 2007; Thobie, 2018)

(Figure II.18). La figure II.18 montre le plateau de diffusion en régime cathodique pour le couple oxydo-réducteur utilisé dans cette étude. La valeur du courant délivrée par l'électrode est très peu affectée par la variation de la tension de polarisation sur ce plateau. Dans cette condition, la concentration de l'espèce active devient nulle à la surface de l'électrode de mesure. Le centre du plateau détermine la valeur de la tension de polarisation qui vérifie la condition ci-dessus et pour laquelle les sondes sont polarisées. Dans cette courbe (intensité/potentiel), la réaction cathodique n'est pas complète pour des valeurs du potentiel inférieures à celles correspondant au palier. Pour des valeurs supérieures, il y a électrolyse de l'eau (Tisné, 2003).

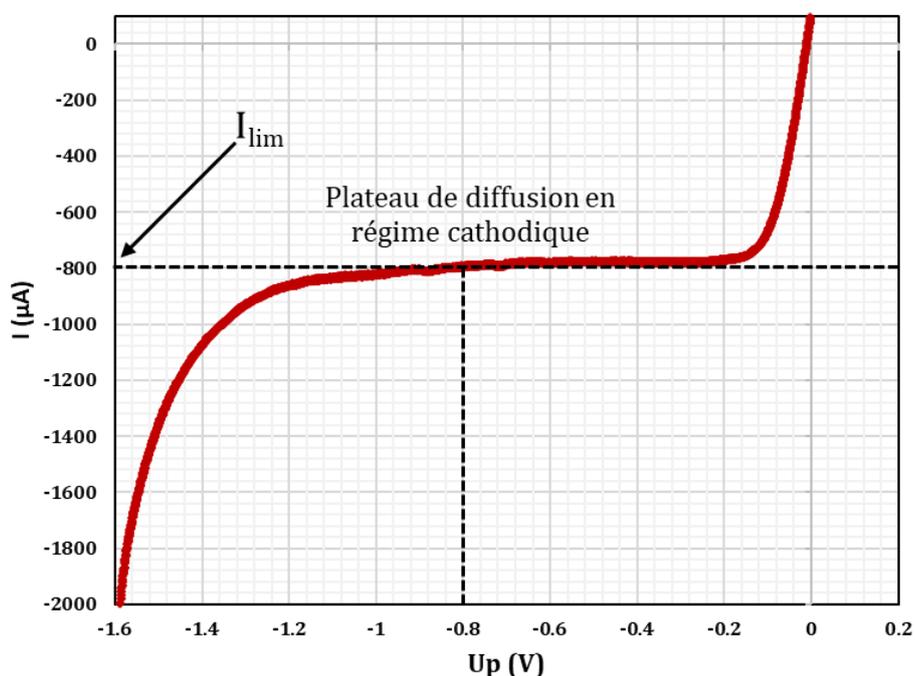


Figure II. 18 : Exemple de courbe de l'intensité en fonction du potentiel

La mesure des intensités limites ( $I_{lim}$ ) permet de déduire le coefficient de transfert de matière ( $k_m$ ) en utilisant la relation suivante :

$$k_m = \frac{I_{lim}}{n_e \cdot F \cdot A_{\text{électrode}} \cdot C_{\infty}} \quad (\text{II.30})$$

Avec  $A_{\text{électrode}}$ , la surface active de la microélectrode ( $\text{m}^2$ ),  $n_e$ , le nombre d'électrons mis en jeu dans la réaction ( $n_e=1$  dans le cas du couple ferri-ferrocyanure de potassium),  $F$ , la constante de Faraday ( $\text{C} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) et  $C_{\infty}$ , la concentration en ions ferricyanure ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ ) (Blel, 2007).

6.6. Détermination du gradient pariétal de vitesse

Il existe trois méthodes pour calculer le gradient pariétal de vitesse à partir des mesures de transfert de matière en régime instationnaire : la solution quasi-stationnaire, les fonctions de transfert et la solution de Sobolík et al. (1987). Dans cette étude, la solution de Sobolík et al. (1987) sera présentée et utilisée. Les écoulements étudiés sont généralement instationnaires avec des fluctuations de différentes amplitudes et fréquences et donc il est préférable d'utiliser la solution de Sobolík et al. (1987) plutôt que la solution quasi-stationnaire (Blel, 2007), puisqu'elle permet une meilleure estimation des fluctuations du cisaillement (Rehimi et al., 2006).

L'équation suivante peut être utilisée dans le cas d'un écoulement bidimensionnel :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + V_x \frac{\partial C}{\partial x} + V_y \frac{\partial C}{\partial y} = D_{ox} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) \quad (\text{II.31})$$

où  $x$ , la direction de l'écoulement moyen,  $y$ , la distance à la paroi,  $V_x$ , la composante de la vitesse dans la direction  $x$  et  $V_y$  la composante de vitesse dans la direction  $y$ .

6.6.1. Solution stationnaire de Lévêque (1928)

La simplification de l'équation de convection-diffusion (Equation II.31), en suivant les hypothèses de Mitchell and Hanratty (1966), permet de déterminer une relation entre le transfert de matière au niveau de la sonde et le gradient pariétal de vitesse. Plus de détails sur les hypothèses de Mitchell and Hanratty (1966) ainsi que les conditions aux limites appliquées dans la méthode électrochimique, sont disponibles dans l'annexe V.

Suite à cette simplification dans le cas d'un régime stationnaire (Annexe V), l'équation II.31 devient :

$$S_0 y \frac{\partial C}{\partial x} = D_{ox} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) \quad (\text{II.32})$$

Par conséquent, la résolution de l'équation II.32 aboutit à la solution de Lévêque qui permet de relier le coefficient de transfert de matière  $k_m$  au gradient pariétal de vitesse moyen  $S_0$  (valeur instantanée sur la surface de la sonde). Pour une électrode circulaire de diamètre  $d_s$ , Reiss and Hanratty (1963) ont exprimé le coefficient de transfert de matière local par l'équation suivante :

$$k_m = \frac{I_{lim}}{n_e \cdot F \cdot A_{\text{électrode}} \cdot C_{\infty}} = 0,862 \left( \frac{D_{ox}^2 \cdot S_0}{d_s} \right)^{1/3} \quad (\text{II.33})$$

L'équation II.33 devient adimensionnelle en faisant intervenir le nombre de Sherwood ( $Sh$ ) moyen qui représente le rapport entre le transfert total de matière sur le transfert par diffusion :

$$Sh = 0.862 \left( \frac{d_s^2 \times S_0}{D_{ox}} \right)^{1/3} \quad (II.34)$$

Ainsi, on peut en déduire le gradient pariétal de vitesse à partir de la valeur du courant limite de diffusion grâce à l'équation II.33 ou II.34.

Pour un fluide Newtonien, la contrainte de cisaillement à la paroi,  $\bar{\tau}_p$  (Pa), est déduite du gradient pariétal de vitesse ( $S_0$ ) selon la relation suivante :

$$\bar{\tau}_p = \mu_L S_0 = \frac{\mu_L}{D_{ox}^2 d_s^5} \left( \frac{I_{lim}}{0,677 n_e F C_\infty} \right) \quad (II.35)$$

où  $\mu_L$  désigne la viscosité dynamique du fluide.

#### 6.6.2. Approche de Sobolik et al. (1987)

L'équation de Lévêque n'est pas universelle pour décrire la diffusion dans tous les écoulements. L'utilisation de cette équation pour les écoulements instationnaires est invalide, car elle conduit à une atténuation et un déphasage dans la fluctuation de la vitesse de frottement enregistrée (Rehimi et al., 2006). C'est le cas des écoulements instationnaires à haute fréquence d'oscillations et/ou lorsque l'effet de la diffusion axiale est significatif. Donc la solution de Lévêque (1928) a été corrigée par Sobolik et al. (1987) qui ont pris en compte les variations de concentration au voisinage de l'électrode. Ainsi, le gradient pariétal de vitesse corrigé par la méthode de Sobolik et al. (1987) s'écrit de la façon suivante :

$$S_{sob}(t) = S_{qs}(t) + \frac{2}{3} t_0 \frac{\partial S_{qs}(t)}{\partial t} \approx S_{qs}(t) + 1.204 \frac{\partial Sh(t)}{\partial t} \quad (II.36)$$

Avec  $Sh$  : le nombre de *Sherwood* moyen et  $S_{qs}$  le gradient pariétal de vitesse calculé par la solution quasi-stationnaire de Lévêque :

$$S_{qs}(t) = \frac{l}{D_{ox}^2 d_s^5} \left( \frac{I(t)}{0,677 n_e F C_\infty} \right)^3 \quad (II.37)$$

Et  $t_0$ , un temps caractéristique lié aux conditions opératoires qui peut être également déterminé à partir de la réponse temporelle à un échelon de polarisation :

$$t_0 = 0,4253 d_s^{2/3} D_{ox}^{-1/3} S_{qs}(t)^{-2/3} \quad (II.38)$$

Dans ce travail, la méthode de Sobolik et al. (1987) sera utilisée pour calculer le gradient pariétal de vitesse à partir des mesures expérimentales.

### 6.7. Détermination du coefficient de diffusion moléculaire $D_{ox}$

Dans ce travail, le coefficient de diffusion de l'ion ferricyanure dans la solution a été déterminé par la méthode de Levich, méthode dite de l'électrode tournante. Un potentiostat OrigaFlex<sup>®</sup> équipé d'une électrode en platine de 5 mm de diamètre et un logiciel Origamaster 5<sup>®</sup> ont été utilisés. Cette méthode consiste à mesurer un courant de diffusion avec une électrode tournante à différentes vitesses de rotation. La résolution de l'équation de diffusion-convection obtenue par Levich permet de relier le courant limite de diffusion et la vitesse de rotation de l'électrode par la relation suivante :

$$I_{lim} = 0.155n_e F D_{ox}^{2/3} \nu^{1/6} C_\infty \pi d_s^2 \omega^{1/2} \quad (\text{II.39})$$

où  $I_{lim}$  désigne le courant mesuré (A),  $n_e$  le nombre d'électrons dans la réaction ( $n_e = 1$  dans le cas du couple ferri-ferricyanure de potassium),  $F$  la constante de Faraday ( $\text{C.mol}^{-1}$ ),  $C_\infty$  la concentration en ions ferricyanure ( $\text{mol.m}^{-3}$ ),  $d_s$  le diamètre de la sonde (m),  $\omega$  la vitesse angulaire de l'électrode ( $\text{rad.s}^{-1}$ ) et  $\nu$  la viscosité cinématique ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ).

En traçant la relation  $I_{lim} = f(\omega^{1/2})$ , une droite de pente  $\alpha_L$  est obtenue et permet de calculer le coefficient de diffusion suivant l'équation II.40 :

$$D_{ox} = \left( \frac{\alpha_L \nu^{1/6}}{0.155 n_e F d_s^2 C_\infty} \right)^{3/2} \quad (\text{II.40})$$

La figure II.19 montre un exemple de courbe obtenue pour la détermination du coefficient de diffusion des ions ferricyanure dans une solution électrochimique à  $25 \text{ mol.m}^{-3}$  en  $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$  et à une température de  $22^\circ\text{C}$ . Dans ce cas,  $\alpha_L$  est égale à  $1,77 \cdot 10^{-4} \text{ A.rad}^{-0.5}.\text{s}^{0.5}$  ce qui correspond à un  $D_{ox}$  de  $5,62 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  pour cette solution électrochimique. Les valeurs de coefficients de diffusion de l'ion ferricyanure de toutes les solutions utilisées dans cette thèse sont reportées dans le tableau II.3.

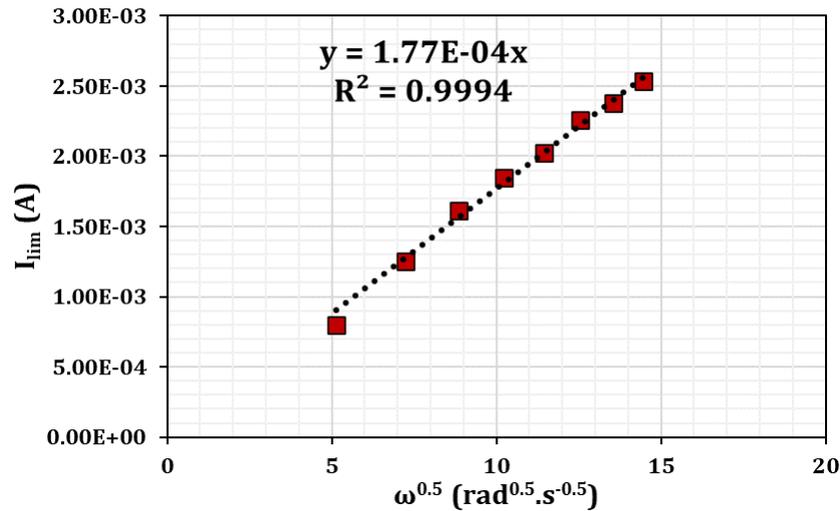


Figure II. 19 : Exemple de courbe obtenue pour la détermination du coefficient de diffusion des ions ferricyanure ( $25 \text{ mol.m}^{-3}$ ) dans une solution électrochimique aqueuse à une température de  $22^\circ\text{C}$

Étant donné que le calcul du coefficient de diffusion utilise la viscosité de la solution liquide analysée, le coefficient de diffusion dans les milieux non-Newtoniens (XG 0,5 et  $1 \text{ g.L}^{-1}$ ) a été calculé en utilisant les équations II.41 et II.42 (Sabiri et al., 2012) :

$$I_{lim} = \alpha_{NN} \cdot \omega^{\frac{1}{n+1}} \quad (\text{II.41})$$

$$\alpha_{NN} = \frac{N(n)}{0,893} n_e F A C_\infty \left(\frac{m}{\rho}\right)^{\frac{-1}{3(n+1)}} R_D^{\frac{1-n}{3(n+1)}} D_{ox}^{2/3} \quad (\text{II.42})$$

où  $N(n) = \left[12a \left(\frac{1+n}{7+5n}\right)^2\right]^{1/3}$  est une constante qui dépend de  $n$ , où  $n$  est l'indice de l'écoulement, «  $k$  » est l'indice de consistance ( $\text{Pa.s}^n$ ) et  $\rho$  est la masse volumique ( $\text{kg.m}^{-3}$ ).

Le coefficient de diffusion pour les fluides non-Newtoniens est ainsi obtenu à partir de la pente de courbe expérimentale  $I_{lim} = f(\omega^{\frac{1}{n+1}})$ . La figure II.20 montre cette courbe dans une solution électrochimique avec un fluide non-Newtonien : solution de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ .

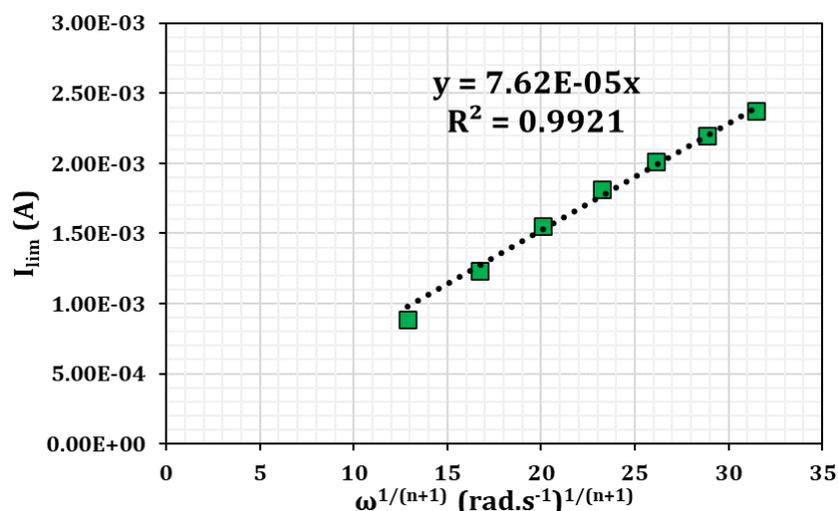


Figure II. 20 : Exemple de courbe obtenue pour la détermination du coefficient de diffusion des ions ferricyanure ( $25 \text{ mol.m}^{-3}$ ) dans une solution électrochimique aqueuse avec XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$  à une température de  $22^\circ\text{C}$

Le tableau II.3 regroupe les valeurs de coefficient de diffusion  $D_{ox}$  obtenues pour tous les fluides ainsi que les différents paramètres utilisés pour le calcul de  $D_{ox}$ .

Tableau II. 3 : Coefficients de diffusion de l'ion ferricyanure des solutions utilisées

Fluide	$\alpha_L \text{ [A.rad}^{-0.5}\text{.s}^{-0.5}\text{]}$	$n \text{ [-]}$	$k \text{ [Pa.s]}$	$N(n)$	$D_{ox} \text{ [m}^2\text{.s}^{-1}\text{]}$
Eau du robinet	$1,77 \times 10^{-4}$	-	-	-	$5,62 \times 10^{-10}$
Solution de XG ( $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ )	$7,62 \times 10^{-5}$	$0,5^{(a)}$	$0,06^{(a)}$	$0,531^{(a)}$	$4,62 \times 10^{-10}$
Solution de XG ( $1 \text{ g.L}^{-1}$ )	$4,80 \times 10^{-5}$	$0,4^{(a)}$	$0,20^{(a)}$	$0,528^{(a)}$	$3,88 \times 10^{-10}$

<sup>(a)</sup>(Greif and Paterson, 1973)

### 6.8. Détermination de la surface active de l'électrode « $A_{\text{électrode}}$ » par la méthode de « Cottrell »

Etant donné que le transfert de matière se fait au niveau de la surface active réelle de la microélectrode et que cette dernière est fonction de la rugosité à la surface qui dépend des conditions de fabrication, la connaissance précise de ce paramètre est donc indispensable. Dans ce travail, la surface active,  $A_{\text{électrode}}$ , a été déterminée en utilisant la technique « Voltage-Step Transient » décrite par Sobolik et al. (1998). Cette technique consiste à suivre la réponse dynamique d'une microélectrode initialement non polarisée à un brusque échelon de tension, passant de zéro à la tension de polarisation précédemment déterminée. Pendant la mesure, les phases liquide et gazeuse sont au repos. Le courant enregistré dans les premiers instants suit l'évolution caractérisée par l'asymptote de Cottrell, appelée aussi le saut de potentiel, qui a pour expression analytique :

$$I(t) = n_e F C_\infty A_{\text{électrode}} \left(\frac{D_{ox}}{\pi}\right)^{1/2} t^{-1/2} = \alpha_c t^{-1/2} \quad (\text{II.43})$$

En traçant la relation  $I(t) = \alpha_c t^{-1/2}$  en échelle logarithmique (Figure II.21), le coefficient  $\alpha_c$  est déduit à partir de l'asymptote de Cottrell. Ensuite, le diamètre des sondes peut être obtenu à partir des équations II.44 et II.45. Le diamètre de sonde a été déterminé à l'aide du système EDICK présent au laboratoire GEPEA en utilisant le logiciel EDWork développé à l'ICPF de l'Académie des Sciences de la République Tchèque à Prague. Si le courant mesuré ne décroît pas linéairement en fonction de  $t^{-1/2}$ , l'électrode utilisée est alors considérée comme défectueuse (Thobie, 2018).

$$A_{\text{électrode}} = \frac{\alpha_c}{n_e F C_\infty \left(\frac{D_{ox}}{\pi}\right)^{1/2}} \quad (\text{II.44})$$

$$d = \sqrt{\frac{4\alpha_c}{n_e \cdot F \cdot C_\infty \cdot \sqrt{D_{ox} \pi}}} \quad (\text{II.45})$$

En théorie, la sonde utilisée est fabriquée à partir de fil de platine de 0,4 mm de diamètre. Néanmoins, l'installation de cette sonde à la paroi de la maquette se fait par collage et polissage, ce qui modifie l'état de surface et donc la surface active exposée à l'écoulement. Dans la figure II.21, le coefficient de cette droite,  $\alpha_c$ , vaut  $5,18 \cdot 10^{-6} \text{ A} \cdot \text{s}^{-1}$  ce qui correspond à un diamètre réel de sonde de 0,45 mm (avec  $D_{ox} = 5,62 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ).

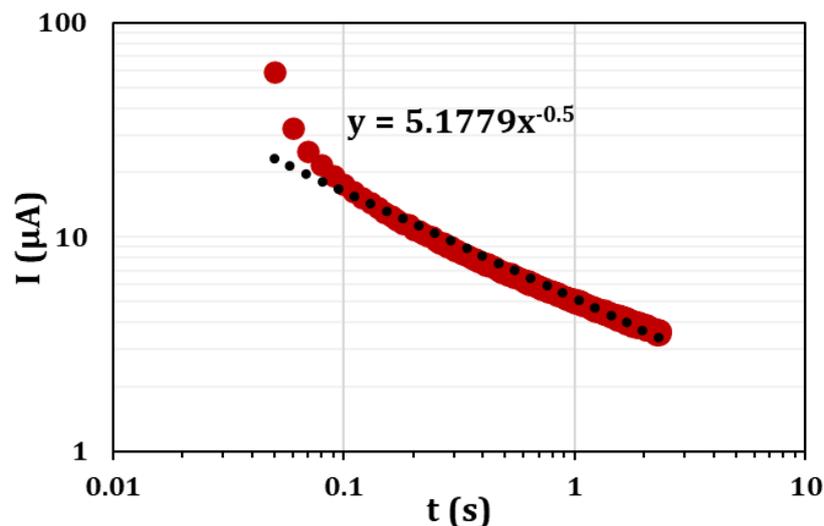


Figure II. 21 : Exemple de l'Asymptote de Cottrell pour déterminer le diamètre réel de la sonde

6.9. *Acquisition des données et méthode d'analyse spectrale*

Acquisition du signal :

L'acquisition du signal a été réalisée à l'aide d'un système EDIK. Après chaque enregistrement, un fichier de données type OSC (Open Street Map Change) est obtenu. Le traitement du signal appliqué à ces données permet, *via* une analyse spectrale élaborée avec le logiciel Matlab (code développé par Blel, 2007), de remonter aux caractéristiques de l'écoulement dans la zone proche de la paroi.

Traitement du signal par la technique d'analyse spectrale :

Les signaux temporels portent en grande partie des informations qualitatives sur le régime d'écoulement correspondant. L'analyse de ces réponses obtenues à partir des sondes de mesure permet de remonter aux phénomènes aléatoires présents dans l'écoulement (Blel, 2007).

En utilisant la transformée de Fourier, il est possible d'obtenir une représentation spectrale des signaux déterministes. Cette dernière exprime la répartition fréquentielle de l'amplitude, la phase, l'énergie ou la puissance des signaux considérés. En effet, le signal temporel  $I(t)$  peut être décomposé en une valeur moyenne  $\bar{I}$ , et une valeur fluctuante  $i'(t)$  en appliquant la décomposition de Reynolds suivante :

$$I(t) = \bar{I} + i'(t) \quad (\text{II.46})$$

L'application de la solution corrigée de Sobolik et al. (1987) sur le signal temporel  $I(t)$ , rend possible de remonter à la vitesse de cisaillement instantanée,  $S_{sob}(t)$  qui peut être aussi décomposée de la façon suivante :

$$S_{sob}(t) = \bar{S} + s'(t) \quad (\text{II.47})$$

Ensuite, l'approche proposée par Quinquis et al. (2007), afin d'effectuer l'analyse spectrale des signaux temporels est appliquée à la composante fluctuante  $s'(t)$ . Plus de détails sur cette approche sont présentés dans l'annexe VI.

L'équation finale du spectre moyen des fluctuations de la vitesse de frottement,  $W_{ss}(f)$  est présentée comme suit :

$$W_{ss}(f) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N W_{ss}^i(f) \quad (\text{II.48})$$

où  $W_{ss}^i(f)$  désigne la densité spectrale de puissance élémentaire.

Enfin, pour calculer l'énergie fluctuante,  $\overline{S'^2}$ , il faut intégrer la densité spectrale de puissance, en tenant compte de la partie symétrique du spectre. Cependant, la valeur obtenue n'est pas représentative du taux de fluctuations réel puisque lors de l'application de la fenêtre de Hanning, les fluctuations sont diminuées d'un facteur 8/3. Ainsi, l'énergie fluctuante du signal mesuré est donnée par :

$$\overline{S'^2} = 2 * \frac{8}{3} \int_0^{f_{max}} W_{ss}(f) df \quad (II.49)$$

où  $f_{max}$  désigne la fréquence maximale du signal.

Le taux de fluctuations du gradient pariétal de vitesse est donné par la relation suivante :

$$TFS = \frac{\sqrt{\overline{S'^2}}}{\bar{s}} \quad (II.50)$$

Les différentes étapes de l'analyse spectrale sont résumées par Blel et al. (2009a) comme on peut le voir dans la figure II.22.

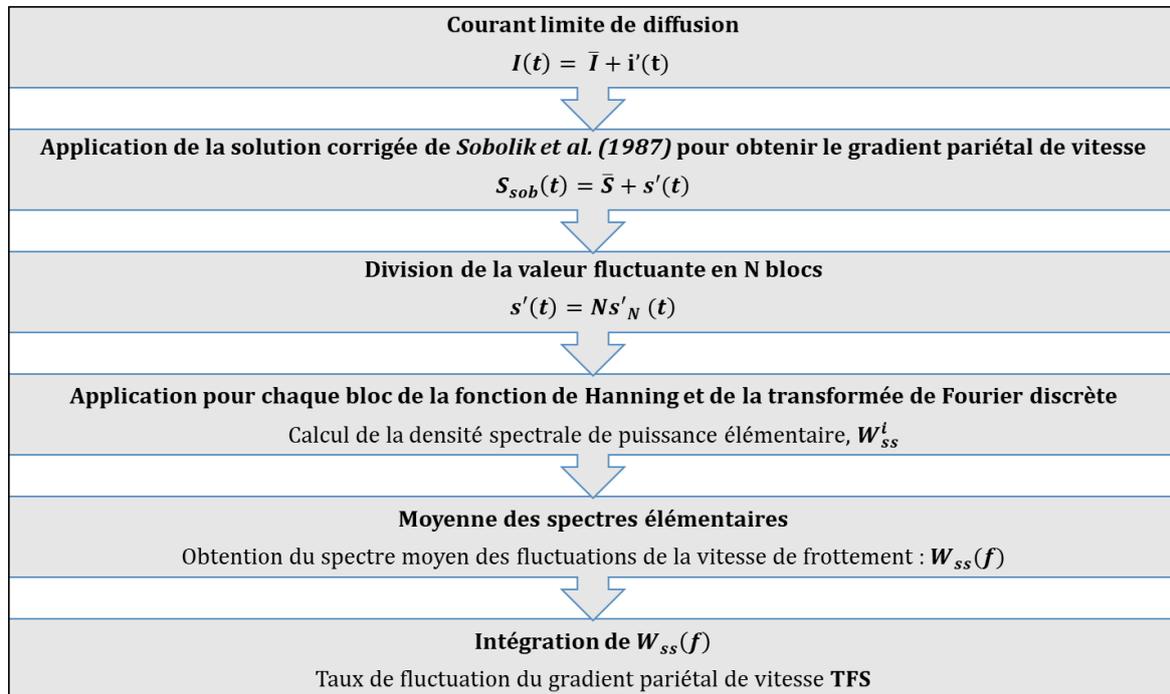


Figure II. 22 : Principales étapes de la détermination des fluctuations du taux de cisaillement (modifiée de Blel et al. (2009a))

### 7. Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs intensifiés

Dans cette partie deux colonnes de bulles confinées ayant des épaisseurs différentes (2 et 4 mm) ont été utilisées pour cultiver la microalgue *Chlorella vulgaris* dans l'objectif d'étudier l'effet du degré de confinement sur la productivité volumique. L'effet de la lumière et le développement du biofilm sont aussi étudiés. Il faut noter que les degrés de confinement des 2 colonnes utilisées conduisent à des configurations différentes en ce qui concerne les bulles : en l'absence de coalescence, les bulles sont aplaties ( $d_b/e' > 1$ ) dans la colonne de 2 mm et non aplaties ( $d_b/e' < 1$ ) dans la colonne de 4 mm. Alors, les objectifs de cette étape sont :

- Appliquer les conditions opératoires garantissant un mélange et un transfert de matière gaz-liquide satisfaisants dans cette phase de culture, en se référant aux résultats obtenus en maquette froide (Chapitres III et IV).
- Vérifier les conditions de bullage limitant le biofilm microalgal, en se référant aux mesures de cisaillement (moyen ou valeurs fluctuantes) à la paroi (Chapitre V).

#### 7.1. Photobioréacteurs utilisés

La culture est réalisée dans deux photobioréacteurs de type colonnes à bulles parallélépipédiques, ayant les mêmes dimensions (sauf l'épaisseur) : la colonne, de 2 mm d'entrefer ( $a_{light} = 500 \text{ m}^{-1}$ ), utilisée tout au long de cette thèse (cf. Figure II.1) et une autre colonne, de 4 mm d'entrefer ( $a_{light} = 250 \text{ m}^{-1}$ ), utilisée et décrite par Thobie et al. (2017) et Almani et al. (2021) durant leurs thèses réalisées au laboratoire GEPEA. La hauteur de culture dans les deux PBRs a été fixée à 90 cm ce qui correspond à un volume de travail total  $V_R$  de 490 mL pour le PBR de 2 mm et 1090 mL pour le PBR de 4 mm.

Ces PBRs sont fabriqués en PMMA pour laisser pénétrer la lumière provenant de panneaux de LEDs. La face arrière de chaque PBRs contient des sondes pour contrôler et réguler les différents paramètres (Figure II.23) :

- L'acquisition et le contrôle du pH/température sont effectués à l'aide d'une sonde (Mettler Toledo InPro4801i/SG/120) reliée à un transmetteur (Mettler Toledo, M300). Le signal électrique obtenu est récupéré par une carte d'acquisition, transféré au logiciel LabVIEW qui enregistre en temps réel le pH de la culture. Cette sonde est installée en bas de chaque PBR à 5 cm de hauteur au-dessus des capillaires (position P9 dans la figure II.1) : le pH consigne est fixé à la valeur optimale 7,5 connue pour *Chlorella vulgaris* et la régulation

du pH dans les PBRs se fait par l'injection de CO<sub>2</sub> gazeux *via* une électrovanne lorsque le pH mesuré dépasse le point de consigne. Le CO<sub>2</sub> a un pouvoir acidifiant et contrebalance l'élévation du pH par la croissance. Cette injection permet également de réaliser l'apport en carbone de la culture. La température à l'intérieur des PBRs est maintenue par le climatiseur de la salle de culture ; la température a varié entre 20 et 25°C suivant l'intensité lumineuse appliquée. Il faut noter aussi que chaque panneau lumineux est équipé de plusieurs ventilateurs pour évacuer la chaleur dans la zone entre le PBR et le panneau lumineux.

- Une sonde à oxygène dissous (Mettler Toledo InPro<sup>®</sup> 6860i) permet de suivre l'évolution de la concentration d'oxygène dissous dans chaque PBR sur la même interface LabVIEW utilisée pour l'acquisition du pH et de la température. La sonde d'O<sub>2</sub> est installée à une hauteur de 55 cm du bas de chaque colonne (position P6 dans la figure II.1).

La densité de flux incident ou PFD (Photon Flux Density) est utilisée pour suivre l'apport de lumière aux microalgues. Elle présente la quantité moyenne de photons reçus par la culture par unité de surface et de temps et elle est exprimée en  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ . La détermination du PFD a été réalisée à l'aide d'un capteur quantique plan (Li-250A, Li-COR, Lincoln, NE) par des mesures effectuées sur la surface optique intérieure de chaque PBR en 12 points. Ces mesures sont ensuite moyennées pour calculer la valeur moyenne du flux incident reçu par la surface de culture. L'étalonnage du panneau de LED a été effectué en faisant varier la tension appliquée au panneau et en déterminant la valeur du PFD correspondante. La tension appliquée au panneau de LED est directement pilotée depuis l'appareil « Laboratory Power supply EA-PS 3032-10 B ». Les panneaux LED utilisés peuvent fournir des flux de photons compris entre 0 et 610  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  pour la colonne de 2 mm et entre 0 et 975  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  pour la colonne de 4 mm.

Le débit d'air est régulé avec les débitmètres massiques (EL-FLOW<sup>®</sup>-BRONKHORST<sup>®</sup>) connectés à l'interface LabVIEW. Dans ces 2 colonnes, l'injection d'air se fait à travers 15 capillaires de diamètre intérieur égal à 1,016 mm uniformément répartis au bas de la colonne (Figure II.1). En début de culture (faible concentration en biomasse), la culture se comporte comme un fluide Newtonien à faible viscosité (comme l'eau), le débit d'air a été fixé à une vitesse superficielle de gaz  $U_{\text{Gsup}} = 0,004 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  correspondant au régime homogène pour l'eau (cf. chapitre III). Cependant, avec l'augmentation de la concentration en biomasse et en raison des mauvais mélange et transfert gaz-liquide en régime organisé avec les fluides visqueux (cf.

chapitres III et IV), la  $U_{Gsup}$  a été modifiée à  $0,007 \text{ m.s}^{-1}$ , ce qui correspond au début de régime transitoire dans le cas des fluides visqueux (plus de détails dans le chapitre VI).

Afin d'éviter toute contamination biologique, les PBRs doivent être stérilisés, avant chaque lancement, pendant 45 min à l'aide d'une solution d'acide peroxyacétique (5 mM) et rincés trois fois avec de l'eau déminéralisée stérile. Toutes les connectiques des PBRs sont aussi à autoclaver avant la mise en culture. Lorsque les PBRs ainsi que toutes les entrées gaz et liquide sont stériles, les PBRs peuvent être inoculés avec une préculture de la souche d'étude.



Figure II. 23 : Image des PBRs de type colonnes à bulles utilisée dans cette étude : (a) PBR d'épaisseur de 2 mm, (b) PBR d'épaisseur de 4 mm

### 7.2. Souche de microalgue étudiée et milieu de culture utilisé

La microalgue *Chlorella vulgaris* (CCAP 211/19) a été choisie comme espèce modèle de cette thèse. C'est en effet une espèce bien documentée, et largement utilisée aussi bien en laboratoire que dans l'industrie. Elle est de forme ronde ou ellipsoïde, d'un diamètre moyen de  $5 \mu\text{m}$ . Elle possède un chloroplaste pariétal contenant de la chlorophylle a et b ainsi que des caroténoïdes comme pigments accessoires, un pyrénoloïde, des thylakoïdes, des grains d'amidons et du matériel génétique. L'amidon est la réserve majeure de glucides de la cellule.

Dans cette partie, *Chlorella vulgaris* a été cultivée dans un milieu de culture autotrophe basé sur la composition du milieu BBM (Bold's Basal Medium) (Bold, 1949). Le milieu de culture est composé de macroéléments et d'une solution de microéléments (principalement les métaux) (Tableau II.8).

La préparation de ce milieu doit se faire en deux étapes. Tous les composés ont été dissous à froid dans de l'eau ultrapure (Milli-Q), puis ils ont été ajoutés par l'intermédiaire d'un filtre liquide dans une bouteille stérile (autoclavée à 121°C pendant 20 minutes). Le but de cette étape est d'éviter tout risque de précipitation du milieu de culture et de désorption du carbone lors de l'autoclavage.

### 7.3. Suivi de la culture et du flux lumineux

#### 7.3.1. Mesure de la matière sèche

La concentration en biomasse sèche  $C_x$ , a été mesurée en filtrant sous vide un volume de culture donné à travers un filtre en fibre de verre (Whatman GF/F, taille de pore de 0,47  $\mu\text{m}$ , VWR, France) pré-séché et pré-pesé. Les filtres ont été ensuite séchés à 105°C pendant au moins 24 h puis repesés après avoir été refroidis dans un dessiccateur pendant 10 à 15 min. Toutes les mesures sont réalisées en triplicat et la concentration est obtenue en divisant la masse sèche filtrée par le volume de l'échantillon (Equation II.51).

$$C_x = \frac{m_{\text{filtre}}(\text{après filtration}) - m_{\text{filtre}}(\text{avant filtration})}{V_{\text{filtré}}} \quad (\text{II.51})$$

#### 7.3.2. Mesure de la teneur en pigments et de l'indice de stress

Lors de cette analyse, la teneur de trois types de pigments est mesurée : la chlorophylle a (chl 'a'), la chlorophylle b (chl 'b') et les caroténoïdes de photoprotection (PPC). Pour commencer, un volume  $V_1$  de la culture est centrifugé à 13400 rpm pendant 10 minutes à l'aide d'une centrifugeuse Eppendorf MiniSpin. Ensuite, le culot est mélangé avec un volume  $V_2$  de méthanol et est placé à l'obscurité pendant environ 45 minutes à 44°C pour extraire les pigments sans dégrader la chlorophylle. Les débris cellulaires sont ensuite éliminés par centrifugation pendant 10 minutes à 13400 rpm, et la quantité de pigments est mesurée dans le surnageant (DO) à l'aide d'un spectrophotomètre « JASCO V-630 » à 480, 652, 665 et 750 nm. Les concentrations de pigments sont calculées en utilisant les équations suivantes (Ritchie 2006; 2008; Strickland et Parsons 1968) :

$$C_{chl-a} = [-8.0962(DO_{652} - DO_{750}) + 16.5169(DO_{665} - DO_{750})] \times \frac{V_2}{V_1}$$

$$C_{chl-b} = [27.4405(DO_{652} - DO_{750}) - 12.1688(DO_{665} - DO_{750})] \times \frac{V_2}{V_1}$$

$$C_{PPC} = [4(DO_{480} - DO_{750})] \times \frac{V_2}{V_1} \quad (II.52)$$

Ainsi, pour vérifier si la culture est stressée ou non, ces mesures journalières de pigments ont permis de remonter après à l'indice de stress (SI). Ce dernier est défini comme le rapport des densités optiques (DO) de l'extrait de pigment des cellules aux longueurs d'onde 480 et 665 nm (Heath et al., 1990). C'est un indicateur du « statut nutritif » des cellules tel que proposé par Heath et al. (1990). C'est une mesure indirecte du rapport des caroténoïdes (PPC) sur la chlorophylle 'a' (Heath et al., 1990).

### 7.3.3. Dosage des éléments nutritifs par chromatographie ionique

La chromatographie ionique (CI) est une chromatographie échangeuse d'ions avec détection par conductimétrie, permettant la détection et la quantification d'ions inorganiques ou organiques. L'appareil est constitué de deux colonnes chromatographiques spécifiques contenant la phase stationnaire (dans le cas des anions, cette colonne est dite anionique et pour les cations, cette colonne est dite cationique), un détecteur conductimétrique, un suppresseur pour la colonne cationique ainsi qu'un passeur d'échantillons. Les caractéristiques des colonnes cationique et anionique et du passeur d'échantillons de l'appareil sont détaillées en annexe VII.

Tout d'abord, le niveau des éluants de chaque colonne ainsi que du régénérant anionique ( $H_2SO_4$  à 17 mM pour la colonne cationique,  $Na_2CO_3$  à 7,7 mM/ $NaHCO_3$  à 1,3 mM pour la colonne anionique et  $H_2SO_4$  à 25 mM pour le régénérant anionique) est vérifié. Ensuite, l'appareil est mis en route et les chromatographes et le passeur sont connectés via le logiciel Chromoléon® 7.

Pour la préparation des échantillons : après centrifugation des milieux de culture (8 min à 11 000 tours/min), les surnageants sont récupérés et filtrés par des filtres 0,2  $\mu m$  afin de ne pas obstruer les colonnes par des molécules organiques telles que de la chlorophylle ou des caroténoïdes, ou bien des polymères tels que des protéines ou des EPS.

Après filtration, les surnageants sont dilués afin de se situer dans la gamme d'étalonnage mais également parce que les colonnes ne peuvent supporter qu'une certaine limite de concentration de chaque espèce ionique (Tableau II.4). Les dilutions sont effectuées dans des vials de 5 ml. Les vials sont disposés dans le passeur, qui prélève l'échantillon et le fait passer dans la colonne anionique ou la colonne cationique, ou les deux, selon la méthode utilisée.

Tableau II. 4 : Limites de concentration en cations et en anions supportés par la colonne

	<b>Ion</b>	<b>Limite supportée par la colonne [mg.L<sup>-1</sup>]</b>
Cations	Na <sup>+</sup>	550
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	-
	K <sup>+</sup>	230
	Mg <sup>2+</sup>	100
	Ca <sup>2+</sup>	250
Anions	F <sup>-</sup>	500
	Cl <sup>-</sup>	3900
	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	500
	Br <sup>-</sup>	500
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	500
	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	1000
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2000

Avant de réaliser les mesures expérimentales sur les surnageants de culture récupérés quotidiennement, l'étalonnage de l'appareil a été vérifié : les gammes d'étalonnage de tous les cations et les anions ont été effectuées, puis des faux inconnus (FI) réalisés à partir de solutions standards de concentrations connues ont été analysés. Pour doser les cations, la solution standard contenant les cations est diluée dans de l'éluant (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> à 17 mM) (Tableau II.5) et pour doser les anions, la solution standard contenant les anions est diluée dans de l'eau milliQ (Tableau II.6).

Tableau II. 5 : Détermination de l'incertitude de l'appareil pour chaque cation par mesures de faux inconnus réalisés à partir d'une solution standard contenant les différents cations en concentration connue, diluée dans l'éluant (acide sulfurique à 17 mM)

<b>Cations</b>	<b>Na<sup>+</sup></b>	<b>NH<sub>4</sub><sup>+</sup></b>	<b>K<sup>+</sup></b>	<b>Mg<sup>2+</sup></b>	<b>Ca<sup>2+</sup></b>
<b>FI 1</b>	405.50	25.61	424.69	106.39	429.25
<b>FI 2</b>	407.21	25.59	426.95	107.13	432.32
<b>FI 3</b>	402.80	25.66	422.27	106.27	427.96
<b>Moyenne</b>	405.17	25.62	424.64	106.60	429.84
<b>Ecart-type</b>	2.22	0.04	2.34	0.47	2.24
<b>Incertitude</b>	0.55%	0.14%	0.55%	0.44%	0.52%

Tableau II. 6 : Détermination de l'incertitude de l'appareil pour chaque anion par mesures de faux inconnus réalisés à partir d'une solution standard contenant les différents anions en concentration connue, diluée dans l'eau milli-Q

Anions	F <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	Br <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	[PO <sub>4</sub> ] <sup>3-</sup>	[SO <sub>4</sub> ] <sup>2-</sup>
FI 1	29.22	465.91	302.49	240.33	282.78	558.84	285.34
FI 2	26.42	460.72	303.65	233.40	283.77	565.16	289.56
FI 3	29.83	466.40	304.53	235.49	282.61	572.63	284.79
Moyenne	28.49	464.34	303.56	236.41	283.06	565.54	286.56
Ecart-type	1.82	3.14	1.02	3.55	0.63	6.91	2.61
Incertitude	6.38%	0.68%	0.34%	1.50%	0.22%	1.22%	0.91%

Les mesures de concentration des faux inconnus montrent que l'incertitude de reproductibilité de l'appareil pour les cations est de maximum 0,55%. Pour les anions, l'incertitude est de maximum 1,5%, hormis le fluor qui présente une incertitude plus élevée du fait de sa concentration théorique très faible. Une différence de concentration entre deux faux inconnus, même faible, influence donc plus fortement l'incertitude.

Après vérification de la fiabilité de l'appareil, les surnageants de culture ont été analysés. Tout d'abord, les concentrations théoriques de chaque espèce ionique ont été calculées afin de déterminer les dilutions à effectuer sur chaque échantillon, pour éviter d'abimer les colonnes de la chromatographie comme déjà mentionné ci-dessus. Le calcul des concentrations théoriques a également permis de déterminer les rapports théoriques entre les nitrates, les phosphates et les sulfates nécessaire pour la méthode de reformulation du milieu de culture qui sera développée par la suite.

### 7.3.4. Dosage des exopolysaccharides (EPS)

Le principe du dosage des exopolysaccharides (EPS) consiste en un dosage colorimétrique au phénol selon la méthode de Dubois (DuBois et al., 1956). En présence d'acide sulfurique concentré à 98%, les EPS sont hydrolysés en monosaccharides. Les monosaccharides obtenus sont déshydratés et réarrangés pour former des composés de coloration jaune par condensation avec le phénol et l'absorbance à 483 nm est mesurée.

Tout d'abord, une gamme étalon est réalisée à partir d'une solution de glucose à 0,1 g.L<sup>-1</sup> (Tableau II.7). Ensuite, les surnageants de culture (récupérés après centrifugation) sont dilués de sorte à se situer dans la gamme étalon. Pour chaque échantillon (gamme étalon et surnageant de culture), un volume de 500 µL est préparé. 500 µL de phénol sont ensuite ajoutés dans chaque tube. Un chronomètre est lancé et 2,5 mL d'acide sulfurique sont ajoutés, puis les tubes

sont bouchés et laissés à incuber à température ambiante. A la fin du chronomètre, chaque tube est vortexé 10 s et les tubes sont incubés 15 min à température ambiante puis 30 min au bain-marie à 35°C.

L'absorbance est mesurée à 483 nm et le blanc utilisé est un échantillon qui ne contient pas de glucose. Ensuite, une droite d'étalonnage ( $DO_{483}$  en fonction des concentrations des solutions étalons) est tracée et la pente de cette droite, nommée  $k$ , sera utilisé pour mesurer la concentration en EPS (en  $g.L^{-1}$ ) de chaque échantillon selon l'équation II.53:

$$[EPS] = \frac{DO_{483 \text{ nm}}}{k \times V_{\text{échantillon}}} \times \text{facteur de dilution} \quad (II.53)$$

Tableau II. 7 : Gamme étalon pour le dosage des sucres, à différentes concentrations en glucose entre 0 et 0,1  $g.L^{-1}$

Solutions tampons	Concentration [ $g.L^{-1}$ ]	Volume de glucose [mL]	Volume d'eau [mL]
1	0	0	0,5
2	0,025	0,125	0,375
3	0,05	0,250	0,250
4	0,075	0,375	0,125
5	0,1	0,5	0

### 7.3.5. Méthode d'adaptation de la lumière avec la croissance

Le MRPA ou  $\langle \mathcal{A} \rangle$  est un paramètre crucial pour travailler dans des conditions optimales en lumière incidente (en régime luminostat). Ce paramètre peut être calculé de deux manières : soit en résolvant entièrement le champ de rayonnement, soit en utilisant une méthode plus simple basée sur le bilan de la phase photonique dans le réacteur. Dans cette dernière méthode, il suffit de mesurer le flux lumineux moyen sortant du réacteur ( $q_L$ ) à l'aide d'un quantum mètre LI-COR. En connaissant le flux de photons entrant ( $q_0$ ) et la concentration de biomasse sèche ( $C_x$ ), on peut alors calculer le MRPA :

$$\langle \mathcal{A} \rangle = \frac{a_{light}}{C_x} (q_0 - q_L) \quad (II.54)$$

Artu (2016) a montré que la productivité maximale en biomasse est observée pour une gamme de MRPA comprise entre 6 et 15  $\mu\text{mol}_{hv}.g^{-1}.s^{-1}$  pour une culture de *Chlorella vulgaris*. Dans cette thèse, la lumière incidente sera adaptée manuellement en fonction de la concentration en biomasse  $C_x$  dans les PBRs pour avoir toujours un MRPA constant égal à 8  $\mu\text{mol}_{hv}.g^{-1}.s^{-1}$  dans le mode de culture semi-continu, en se référant à l'équation II.54.

7.4. Présentation de la stratégie de culture pour avoir des concentrations élevées

La première étape consiste à lancer les deux PBRs en mode semi-continu jusqu'à atteindre une concentration en biomasse proche de 30 g.L<sup>-1</sup> (correspondant à un comportement rhéologique non-Newtonien) avant de passer en mode continu.

Au démarrage de la culture, 30% du volume total de chaque PBR ont été inoculés avec la souche *Chlorella vulgaris*. Le reste du volume a été complété avec du milieu BBM permettant d'atteindre une concentration en biomasse de 2 à 3 g.L<sup>-1</sup> (voir la composition dans le tableau II.8). La culture a été démarrée, en mode batch, à une concentration cellulaire d'environ 0,8 g.L<sup>-1</sup>. Avec l'augmentation de la concentration en biomasse, la concentration du milieu de culture ajouté a progressivement été augmentée, c'est-à-dire qu'après que la culture a atteint 2 g.L<sup>-1</sup> de biomasse (Tableau II.8), 25% du volume total ont été prélevés et remplacés par du milieu nutritif permettant d'atteindre 8 g.L<sup>-1</sup> de biomasse (Tableau II.8). Lorsque cette concentration en biomasse est atteinte, un nouveau prélèvement de 25% du volume du réacteur est effectué et ce volume est remplacé par du milieu neuf plus concentré, permettant d'atteindre 16 g.L<sup>-1</sup> (Tableau II.8) en biomasse microalgale, et ainsi de suite jusqu'à l'ajout d'un milieu BBM permettant d'atteindre 32 g.L<sup>-1</sup> de biomasse (Tableau II.8). Ces quantités ont été adaptées selon la composition élémentaire de la biomasse (Tableau II.9), en se basant sur la stœchiométrie de la microalgue.

Tableau II. 8 : Composition du milieu de culture BBM

	Nutriment [g.L <sup>-1</sup> ]	Concentration cible			
		2 g.L <sup>-1</sup>	8 g.L <sup>-1</sup>	16 g.L <sup>-1</sup>	32 g.L <sup>-1</sup>
Milieu BBM	NaNO <sub>3</sub>	1,50	7,15	14,30	21,45
	MgSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	0,23	0,72	1,44	2,16
	CaCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,03	0,15	0,30	0,45
	EDTANa <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,05	0,40	0,80	1,20
	FeSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	0,01	0,08	0,16	0,24
	K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	0,15	0,80	1,60	2,40
	KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	0,12	0,64	1,28	1,92
	NaHCO <sub>3</sub>	1,00	2,00	2,00	2,00
	Additif 1	1 mL	8 mL	16 mL	32 mL
	Additif 2	1 mL	8 mL	16 mL	32 mL
Additif 1	ZnSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O			0,22	
	Co(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , 6H <sub>2</sub> O			0,04	
	CuSO <sub>4</sub>			0,08	
	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>			2,86	

	MnCl <sub>2</sub> , 4H <sub>2</sub> O	1,81
Additif 2	Na <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	0,26

Tableau II. 9 : Composition élémentaire de la microalgue *Chlorella vulgaris* (Souliès, 2014)

Elément	C	H	O	N	S	P	K	Mg	Ca
Fraction massique	0,480	0,070	0,264	0,089	0,008	0,009	0,011	0,003	0,002
Composition C-molaire	1	1,742	0,413	0,158	0,006	0,008	0,0073	0,0036	0,0013

Pendant la culture en mode semi-continu, 5% du volume total de chaque PBR sont prélevés quotidiennement pour servir aux différentes analyses (biomasse, pigments et chromatographie ionique) et remplacés par du milieu neuf. Ce volume est suffisant pour faire les analyses, en évitant le lessivage de la culture. Plusieurs mesures ont été faites : la biomasse sèche, les pigments (et l'indice de stress), la composition du milieu par chromatographie ionique ainsi que le suivi de l'évolution de la concentration en O<sub>2</sub> dissous en fonction du temps. La lumière incidente a été modifiée manuellement avec l'évolution de la biomasse dans le but d'atteindre la concentration en biomasse ciblée. Cependant, pendant la croissance, plusieurs types de limitations sont possibles :

- Une inhibition de la croissance causée par une accumulation importante d'O<sub>2</sub> (la concentration critique d'O<sub>2</sub> est 30-35 mg.L<sup>-1</sup> (Kazbar et al., 2019)) : dans ce cas, une des solutions possibles est d'augmenter instantanément le débit d'air pour désorber l'O<sub>2</sub> tout en restant dans la gamme de vitesse superficielle de gaz correspondant au milieu de régime transitoire pour éviter le stress cellulaire. Le but de cette action est d'essayer de revenir au niveau de concentration en O<sub>2</sub> où la productivité en biomasse est maximale (début de culture par exemple) ;
- Une limitation en éléments nutritifs : cette limitation est plus probable en semi-continu qu'en continu. Pour éviter cette limitation, un suivi de la composition du milieu dans le réacteur est fait avec les analyses journalières en chromatographie ionique. En cas de limitation, un ajout instantané d'un ou plusieurs éléments limitants est faite.
- Une limitation par la lumière : le risque d'avoir cette limitation est très légère vu qu'un MRPA optimal est toujours maintenu dans les PBRs avec une vérification de  $q_0$  et  $q_L$  pendant la culture.

Au cours du mode semi-continu, des analyses journalières par chromatographie ionique ont été effectuées pour essayer d'adapter la composition du milieu de culture ajouté périodiquement. L'objectif a également été de récolter des données qui permettront de développer, par la suite, une stratégie de prédiction permettant d'adapter la formulation du milieu selon les besoins des microalgues. Pour cela, à partir de la concentration des nutriments qui composent le milieu de culture de base (cf. Tableau II.8), les rapports théoriques entre chacun sont calculés, puis comparés avec les rapports expérimentaux (obtenus après analyse). Le milieu est ensuite reformulé de sorte que les concentrations relatives en nutriments dans la culture soient celles du milieu de culture de base (BBM modifié).

Une fois que les cultures atteignent une concentration en biomasse souhaitée (proche de 30 g.L<sup>-1</sup>), elles sont conduites en mode continu. Dans un système de culture qui fonctionne en mode continu, l'obtention d'une productivité maximale nécessite de fonctionner à un taux de dilution optimal  $D_{opt}$  (en plus des conditions de culture conventionnelles optimales : pH, température, milieu, etc.). Le milieu frais est alimenté en continu vers les PBRs, à l'aide d'une pompe péristaltique (Ismatec, Reglo Digital MS-2/6, ISM 831-C, Wertheim, Allemagne) et les cultures sont récoltées par surverse des PBRs dans une bouteille stérile rendant constant le volume du réacteur.

L'objectif de cette étape est donc de conduire une culture en continu dans des PBRs intensifiés (2 et 4 mm d'épaisseur) afin d'obtenir la productivité volumique,  $P_v$ , maximale en testant différentes intensités lumineuses  $q_0$  (320, 400, 500 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et pour un taux de dilution fixe et optimal pour la microalgue *Chlorella vulgaris* ( $D_{opt} = 0,03 \text{ h}^{-1}$  d'après Le Borgne (2011)). Cependant, une intensité lumineuse trop élevée peut conduire à une diminution de la productivité volumique à cause du phénomène de photoinhibition (ou le phénomène de saturation de la photosynthèse), durant lequel la photosynthèse décroît avec l'augmentation de l'irradiance reçue par les microalgues. Alors, le but de cette partie est d'identifier également la valeur de cette intensité lumineuse à partir de laquelle la productivité volumique diminue à cause de la photoinhibition.

Pour chaque intensité lumineuse testée, une fois que la biomasse est stabilisée en état stationnaire (environ une semaine), la productivité volumique moyenne est calculée. Pour étudier une autre intensité lumineuse, la culture est remise en mode batch pendant deux jours, puis elle est repassée en mode continu avec la nouvelle intensité lumineuse à tester.

7.5. *Suivi de biofilm*

La formation de biofilm sur les surfaces transparentes entraîne une diminution de la luminosité. Ainsi, évaluer l'intensité lumineuse s'avère être un moyen efficace pour appréhender l'impact du biofilm. Par conséquent, à la fin de culture, des mesures d'intensité lumineuse sont effectuées en prenant en compte la présence du biofilm sur les deux faces du PBR. Sur la face arrière du PBR, 25 points de mesure ont été sélectionnés pour couvrir la majeure partie du volume de culture. À chaque position, une mesure d'intensité lumineuse a été effectuée à l'aide d'un appareil Quantum mètre LI-COR (Figure II.24), à la fois avec le biofilm et sans biofilm (après le nettoyage) pour déterminer la perte de flux lumineux entrant causée par le développement du biofilm. Dans chaque position, l'intensité lumineuse incidente,  $q_0$ , a été variée entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ .

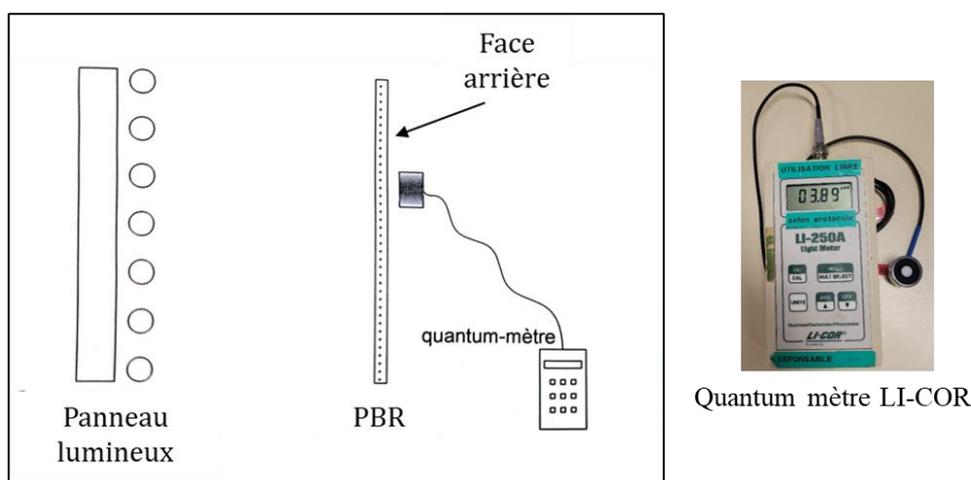


Figure II. 24 : Mesure de l'intensité lumineuse à l'aide de Quantum mètre LI-COR sur la face arrière des PBRs

## *Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange*

---

---

### Introduction

Les colonnes à bulles se caractérisent par une hydrodynamique complexe, impliquant des phénomènes tels que la déformabilité des bulles, leur rupture, leur coalescence, ainsi que différents régimes d'écoulement difficiles à prédire. Des études antérieures ont démontré que cet écoulement diphasique est fortement influencé par les propriétés physico-chimiques des fluides (Loubière and Hébrard, 2004; Mouza et al., 2005), la géométrie du réacteur et du diffuseur (Sarrafî et al., 1999; Ruzicka et al., 2001; Simonnet, 2005), et les conditions opératoires (Wilkinson et al., 1992; Reilly et al., 1994; Letzel et al., 1997; Vial, 2000). Malgré cette complexité, des études expérimentales et numériques sur les colonnes à bulles ont conduit à une compréhension satisfaisante de l'hydrodynamique (Olmos et al., 2003a) et à des prédictions fiables du comportement de l'écoulement (Olmos et al., 2001; Talvy et al., 2007; Simonnet et al., 2008) et ceci pour certaines conditions de fonctionnement standard (phase liquide Newtonienne, colonne classique *i.e.* non confinée, faible pression et température).

Comprendre et prédire le comportement hydrodynamique des colonnes à bulles de faible entrefer, en particulier en présence d'une phase liquide non-Newtonienne, est crucial, car les caractéristiques de mélange et de transfert peuvent varier considérablement entre les différents régimes d'écoulement (cf. Chapitre I). Dans la littérature, un nombre limité d'études ont été menées sur les colonnes à bulles confinées. Parmi ces études, Thobie et al. (2017) et Almani (2021) ont travaillé sur une colonne à bulles de faible entrefer (4 mm) et un rapport de confinement ' $d_b/e$ ' inférieur à 1. Ces auteurs ont étudié différents paramètres, notamment le taux de vide, les régimes d'écoulement et leurs transitions, le temps de mélange, etc. Les résultats obtenus avec cette colonne ont été comparés à ceux des colonnes conventionnelles afin d'étudier l'effet du confinement sur les phénomènes de transfert et de mélange.

Dans ce chapitre, une caractérisation de l'hydrodynamique globale est effectuée dans une colonne à bulles de faible entrefer ( $e = 2$  mm) et donc un rapport de confinement ' $d_b/e$ ' supérieur à 1. Des fluides Newtoniens (eau du robinet, solutions aqueuses de glycérol) et non-

### **Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange**

Newtoniens (solutions de gomme de xanthane XG) ont été utilisés comme phase liquide, tandis que l'air a été utilisé comme phase gazeuse. La concentration des solutions de glycérol et de XG est ajustée pour reproduire la viscosité des suspensions de microalgues d'une concentration égale à 42 g.L<sup>-1</sup>. L'étude couvre une large gamme de vitesses superficielles de gaz, englobant les différents régimes d'écoulement.

La première partie de ce chapitre (Partie A) met l'accent sur l'évolution du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle du gaz. Une comparaison des résultats des différents fluides (effet de la rhéologie de la phase liquide) et avec les résultats de la littérature dans les colonnes classiques (non confinées) a été effectuée. Les régimes d'écoulement et leurs transitions ont été également identifiés à l'aide de différentes méthodes. Ce travail a fait l'objet d'un article publié dans la revue "*Chemical Engineering and Technology*" :

Haydar, A., Blel, W., Marec, H. and Gentric, C. (2023), Gas Holdup and Flow Regimes in a Thin-Gap Bubble Column with Newtonian and Non-Newtonian Liquid Phase. *Chem. Eng. Technol.*, 46: 1218-1227. <https://doi.org/10.1002/ceat.202200561>

La caractérisation des régimes d'écoulement est un paramètre important dont le but est d'identifier les conditions de fonctionnement dans une colonne à bulles qui permettent d'avoir un bon mélange et transfert gaz-liquide. La caractérisation du mélange est abordée dans la deuxième partie de ce chapitre (Partie B). Les résultats obtenus sont comparés à ceux disponibles dans la littérature. Cette analyse comparative vise à révéler les caractéristiques spécifiques associées au confinement en termes d'hydrodynamique globale. L'effet des propriétés rhéologiques de la phase liquide sur le mélange est aussi étudié dans cette partie.

#### **PART A: Gas holdup and flow regimes in a thin-gap bubble column with Newtonian and non-Newtonian liquid phase**

##### Abstract

The influence of confinement and rheological properties of the liquid phase on the gas holdup and flow regimes in a 2 mm gap bubble column intended as an intensified photobioreactor at high cell concentration is investigated. The results indicate that at a given superficial gas velocity ( $U_{Gsup}$ ), the gas holdup is higher with viscous or non-Newtonian (nN) fluids than in water and also in a thin-gap column than in an unconfined one. This behavior increases when confinement ratio increases. Regime transitions occur at lower  $U_{Gsup}$  for nN

fluids compared to water and for a thin-gap column compared to classical columns. This information constitutes a first step toward the identification of optimal operating conditions for efficient operation of microalgae culture.

**Keywords:** Flow regimes, Gas holdup, Hydrodynamics, Photobioreactor, Thin-gap bubble column

## 1. Introduction

Vertical gas-sparged photobioreactors (PBRs) operating as airlifts or bubble columns are often used to cultivate microalgal biomass, as they allow both good mixing and efficient gas-liquid mass transfer. Nevertheless, technological advances are still needed to reduce production costs and environmental impacts and increase energy efficiency. In this context, intensification by the increase of the culture concentration for a given illuminated surface represents a promising way to achieve optimized and eco-efficient cell production. To ensure light availability to the culture, it is then necessary to increase the specific illuminated surface by reducing the culture thickness ( $e$ ).

Thin-gap bubble columns with a low culture thickness, typically of a few millimeters, theoretically make it possible to increase volume productivity inversely proportional to the culture thickness. However, it should be noted that important modifications occur in such PBRs in comparison with conventional bubble columns with a thickness of a few centimeters: (i) a drastic modification of the liquid phase properties is observed when biomass concentration increases, i.e., viscosity increases and rheology may become non-Newtonian (nN); (ii) bubble coalescence which is favored by confinement and increase of biomass concentration; (iii) biofilm development which is also increased in such configuration [1]. These potential problems will impact the formation and the behavior of bubbles and subsequently the hydrodynamics in the PBR [2, 3].

In conventional bubble columns, there are essentially three flow regimes, namely, homogeneous, transition, and heterogeneous. PBRs are often operated in homogeneous regime to avoid excessive shear stress which could inhibit the growth of microalgae. It must be noticed that hydrodynamics, mixing, and mass transfer characteristics vary significantly between regimes. For these reasons, the identification of flow regimes and their transitions reveals of great importance. Various empirical or semi-empirical methods are applied in the literature to

identify the transitions between flow regimes. One of the commonly used methods is to analyze the evolution of the gas holdup ( $\varepsilon_G$ ) with the superficial gas velocity ( $U_{Gsup}$ ) [4].

Numerous experimental and numerical studies have been carried out in classical bubble columns: they allow at present a good characterization of hydrodynamics and satisfactory predictions of the flow behavior [4]. These studies showed that the two-phase flow behavior is mainly influenced by the physical properties of the continuous phase [5], the operating conditions [6], and the design parameters [7]. Recently, research about confined bubble columns has focused on the local study of a single bubble or a bubble swarm rising in Newtonian fluids, providing sound basic knowledge on hydrodynamics for 2D high-Reynolds number bubbles. Under these conditions, a specific and original hydrodynamics is then observed due to the essentially 2D movement of the bubbles, the presence of a liquid film between the bubble and the walls of the column, the decrease of agitation, and the increase in bubble/wall interactions [8, 9].

But, to the authors' knowledge, global studies of hydrodynamics in 2D bubble columns have been little addressed in the literature. Indeed, in a thin-gap bubble column (4 mm gap) and a confinement ratio ' $d_b/e$ ' lower than 1, global hydrodynamics has been characterized by Thobie et al. [5] and Almani [10] using Newtonian fluids (tap water and glycerol solutions) and nN fluids (xanthan gum (XG) and carboxymethyl cellulose (CMC) aqueous solutions), respectively. In these studies, the effect of confinement has been highlighted showing a higher gas holdup in the homogeneous regime in comparison to conventional bubble columns. This higher  $\varepsilon_G$  has been explained in terms of the lower terminal velocity of the bubbles in the confined column due to more wall frictions than that observed in unconfined ones. Moreover, they showed that regime transitions appear at much lower  $U_{Gsup}$  in confined bubble columns than in classical ones.

The purpose of this paper is to study the global hydrodynamics in a 2D bubble column having 2 mm of gap for different gas flow rates and for several liquid phases. Water is used as a reference fluid with a Newtonian behavior and a low viscosity. Aqueous solutions of glycerol (50 wt %) and XG (0.5 and 1 g L<sup>-1</sup>) are used as highly viscous Newtonian and nN liquids, respectively, and allow to mimic the rheological behavior of *Chlorella vulgaris* cultures at concentrations of around 42 g L<sup>-1</sup>. Thus, the respective influences of the confinement and the rheological properties of the liquid phase can be highlighted.

## 2. Materials and Methods

### 2.1. Experimental setup

The experimental setup consists of a thin-gap bubble column (Fig. III.1) made of two polymethylmethacrylate (PMMA) plates, 120 cm high and 30 cm wide, separated by a thin-gap  $e = 2$  mm. The unaerated level of the liquid phase in the reactor is set at a height of 97 cm for all experiments. Air is used as the gas phase and is injected through 15 capillaries with an internal diameter of 1.016 mm uniformly distributed at the bottom. A mass flow meter (EL-FLOW®-BRONKHORST®) is used to monitor and regulate the gas flow rate. The range of superficial gas velocities used is  $0.002\text{--}0.040\text{ m s}^{-1}$ , which makes it possible to cover all flow regimes. Before entering the capillaries, the gas passes through a homogenizing chamber allowing all capillaries to have a uniform gas supply pressure. The front face of the column has six locations (P2–P5 and P7, P8) which can be used to introduce different sensors. In the present study, a piezoresistive differential pressure sensor (KELLER PD23) is employed to measure the differential pressure DP between the two positions P1 and P9 and to deduce the gas holdup between these positions.

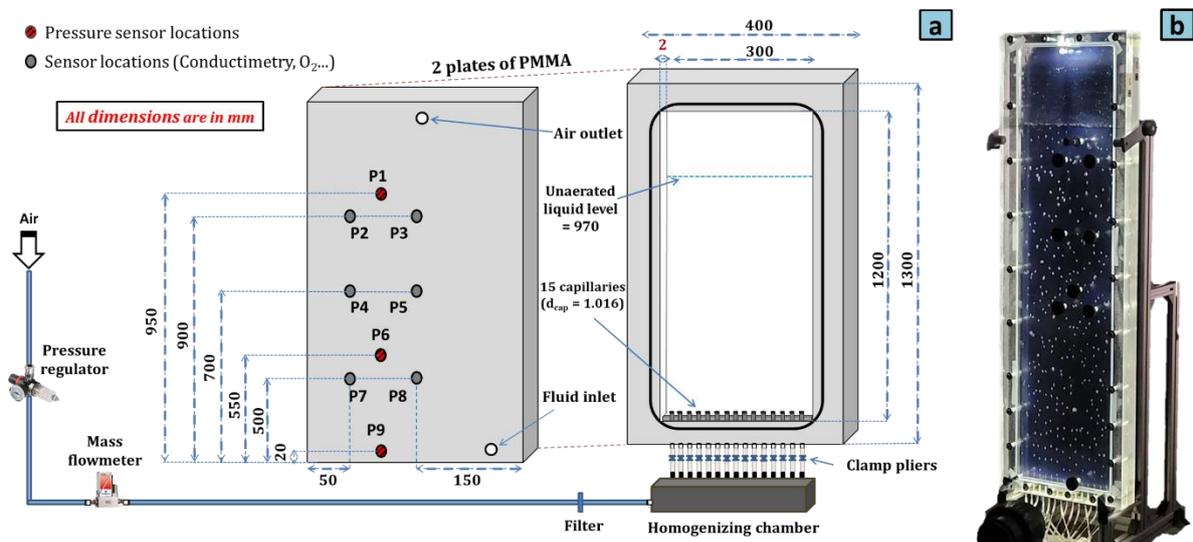


Figure III. 1 : Experimental setup: (a) schematic representation, (b) image of the thin-gap bubble column (2 mm thickness) used in this study

### 2.2. Fluid characteristics

Hydrodynamics in the thin-gap bubble column is characterized using model fluids, i.e., aqueous solutions of XG (SIGMA life sciences) at  $0.5\text{ g L}^{-1}$  (0.05 wt %) and  $1\text{ g L}^{-1}$  (0.1 wt %) and aqueous solutions of glycerol at 50 wt % (Fisher Chemical). Tap water is used as a

***Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange***

reference fluid. A Milli-Q Advantage A10<sup>®</sup> purification system is employed to provide ultrapure water (conductivity < 0.1  $\mu\text{S cm}^{-1}$ ) for the preparation of XG and glycerol solutions. XG solutions were made by dissolving the necessary amount of polymers in deionized water under agitation at room temperature for 24 h. The glycerol solution was prepared by diluting the pure glycerol in deionized water. Densities were measured with a gravity hydrometer (Fisher Scientific-LABOSI). Surface tensions were determined using the Krüss-DSA30 tensiometer with the hanging-drop method. The physicochemical properties of the considered liquid phases are given in Tab. III.1.

For the *Chlorella vulgaris* suspension, the rheogram (Fig. III.2) was obtained from [1] and for XG solutions (0.5 and 1  $\text{g L}^{-1}$ ) from [11].

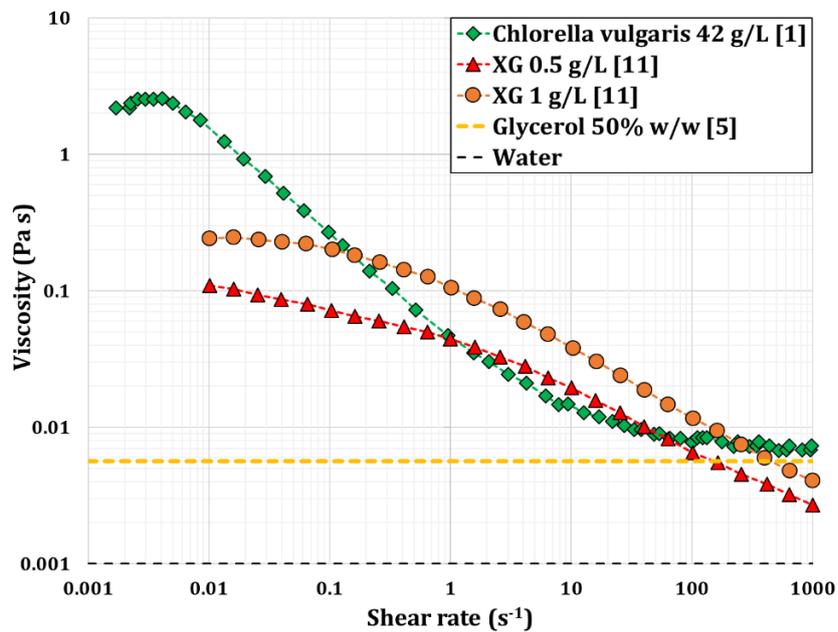


Figure III. 2 : Comparison of the apparent viscosity vs. shear rate for 50 wt % glycerol solution, XG (0.5 and 1  $\text{g L}^{-1}$ ) and *Chlorella vulgaris* suspension at 42  $\text{g L}^{-1}$

Table III. 1 : Physical properties of the liquid phases

Fluid	$\rho_L$ [ $\text{kg m}^{-3}$ ]	$\sigma$ [ $\text{N m}^{-1}$ ]	$\mu$ [ $\text{Pa s}$ ]	$T$ [ $^{\circ}\text{C}$ ]
Demineralized water	$1000 \pm 1$	$0.0703 \pm 0.001$	0.001	22
XG solution (0.5 $\text{g L}^{-1}$ )	$999 \pm 1$	$0.0694 \pm 0.007$	-	22
XG solution (1 $\text{g L}^{-1}$ )	$998.5 \pm 1$	$0.0687 \pm 0.001$	-	22
50% w/w Glycerol solution	$1145 \pm 1$	$0.0635 \pm 0.001$	0.006 <sup>(a)</sup>	22

<sup>(a)</sup> see [5].

### 2.3. Gas holdup determination

The gas holdup  $\varepsilon_G$  is defined as the ratio between the volume of gas and the total volume. It can be determined from the differential pressure as follows:

$$\varepsilon_G = 1 - \frac{\Delta P}{\rho_L \cdot g \cdot \Delta h} \quad (\text{III.1})$$

where  $\rho_L$  is the density of the liquid phase ( $\text{kg m}^{-3}$ ),  $g$  is the gravity acceleration ( $\text{m s}^{-2}$ ),  $\Delta P$  and  $\Delta h$  are the differential pressure (Pa) and the distance between the two pressure sensor inputs located at P1 and P9 (m), respectively.

The differential pressure sensor used in this study is a piezoresistive sensor (KELLER PD23) with a measuring range from 0 to 200 mbar and an accuracy of  $\pm 0.2\%$ . An acquisition card connected to a LabVIEW program allows to record the differential pressures measured over time with a frequency of 500 Hz. The time average differential pressure over 180 s is considered for the calculation of the gas holdup.

### 2.4. Identification of flow regimes

Three different methods are used in this work to determine the transitions between regimes. The first and most commonly used method consists of studying the evolution of the gas holdup ( $\varepsilon_G$ ) as a function of the superficial gas velocity ( $U_{Gsup}$ ) and identifying slope changes as regime transitions [4]. But sometimes it can be difficult to identify the transitions with this method when the slope changes gradually. For this, another method was developed by Zuber and Findlay [12]. It consists in plotting the swarm velocity  $U_{swarm}$ , which corresponds to the ratio between  $U_{Gsup}$  and  $\varepsilon_G$ , as a function of  $U_{Gsup}$ , according to Eq. (III.2):

$$U_{swarm} = \frac{U_{Gsup}}{\varepsilon_G} = f(U_{Gsup}) \quad (\text{III.2})$$

The third method, which is called the drift-flux method, was developed by Wallis [13]. This method is based on the study of the average relative motion of one phase with respect to the other one. The drift-flux equation (Eq. (III.3)) can be written as:

$$\langle J_{G-L} \rangle = U_{Gsup} \times (1 - \varepsilon_G) \quad (\text{III.3})$$

After that, it is necessary to plot this average dispersion flux  $\langle J_{G-L} \rangle$ , given by Eq. (III.3), as a function of  $\varepsilon_G$  and to spot the changes in the evolution profile to determine the transition between regimes.

### 3. Results and discussion

#### 3.1. Gas holdup

##### 3.1.1. Influence of fluid rheology on gas holdup

For the four liquids tested, the gas holdup vs. the superficial gas velocity is depicted in Fig. III.3. This figure shows that the gas holdup increases with  $U_{Gsup}$  for all fluids.

For  $U_{Gsup}$  lower than  $0.005 \text{ m s}^{-1}$ , the gas holdups in water and glycerol solution at 50 wt % are quite similar. In fact, there is no interaction between the bubbles at low  $U_{Gsup}$  and collisions between the bubbles are rare, hence the coalescence is negligible for both fluids. These results are consistent with those obtained by Thobie et al. [5] in a 4 mm thin-gap bubble column, i.e., with ' $d_b/e$ ' < 1. For  $U_{Gsup} > 0.005 \text{ m s}^{-1}$ , bubble coalescence is important for water and negligible for the glycerol solution. Consequently, the gas holdup increase is less important for water with a lower slope than that in the case of glycerol. This finding remains until  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m s}^{-1}$  and corresponds to the beginning of transition regime for the glycerol solution. During this latter regime, the gas holdup of glycerol rises more slowly due to the increase of coalescence phenomenon, i.e., the proportion of large bubbles increases. In the heterogeneous regime (at  $U_{Gsup} = 0.031 \text{ m s}^{-1}$ ), the slope of the curve is constant for glycerol solution due to the stabilization of global bubble population, i.e., the proportion of large (coalesced bubbles) and small bubbles remains the same (see Fig. III.5b).

For the same  $U_{Gsup}$ , the gas holdup in nN liquids (XG at 0.5 and  $1 \text{ g L}^{-1}$ ) is higher than that in tap water (Fig. III.3). This result is inconsistent with those presented in the literature [2, 6] for conventional columns operating with nN fluids, where the gas holdup in water is higher than that of nN solutions. This result is mainly due to the effect of bubble confinement, which will reduce the average rise velocity of bubbles in comparison to that in water; therefore, a longer bubble residence time is observed with XG solutions.

The gas holdup for nN fluids remains higher compared to glycerol solution up to  $U_{Gsup} = 0.012 \text{ m s}^{-1}$ . After this  $U_{Gsup}$ , the absence of coalescence in the case of glycerol has the consequence that the gas holdup is higher compared to the two nN solutions in transition and

heterogeneous regimes. The comparison between the two concentrations of XG at 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup> shows that the gas holdup is higher in the “organized regime” (see Sect. 3.2) for the more concentrated solution, i.e., 1 g L<sup>-1</sup> (Fig. III.3). Indeed, by increasing the concentration of XG, the viscosity rises, subsequently reducing the bubbles rise velocity in the column, which explains the higher gas holdup for the XG at 1 g L<sup>-1</sup> in the organized regime. At higher U<sub>Gsup</sub>, the viscosity of the XG solution at 1 g L<sup>-1</sup> promotes more coalescence, which explains why the gas holdup of XG at 1 g L<sup>-1</sup> solution becomes lower than that of XG at 0.5 g L<sup>-1</sup> solution. In heterogeneous regime, bubbles in both solutions have apparently the same behavior (shape and distribution of bubbles), the two curves are then superimposed.

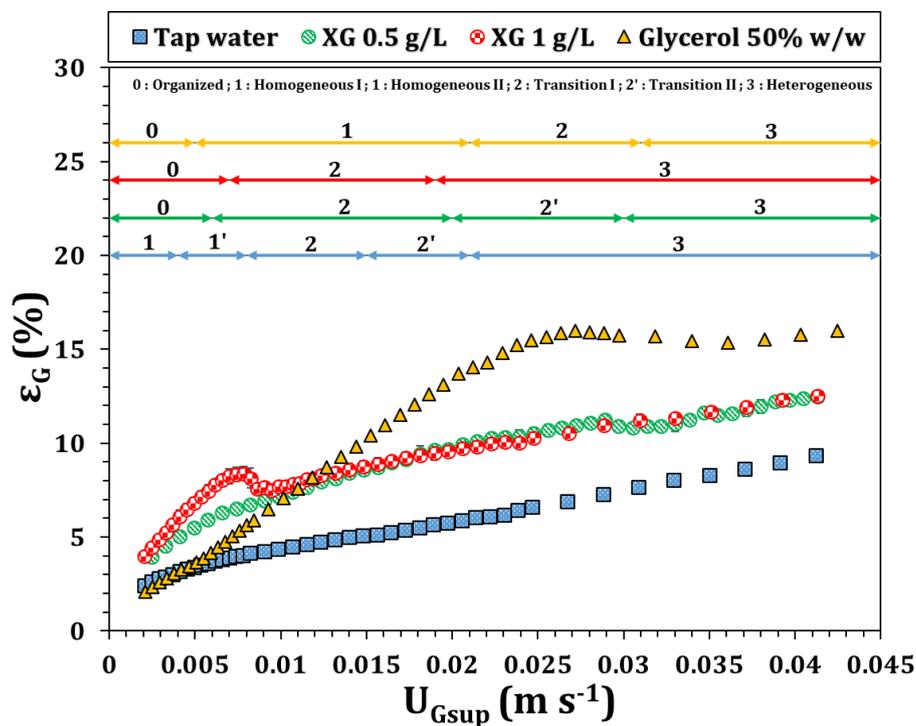


Figure III. 3 : Evolution of the global gas holdup with the superficial gas velocity for all tested fluids

### 3.1.2. Comparison of gas holdup results in the thin-gap bubble column with literature results in classical 3D columns or columns with larger gaps

Fig. III.4 shows the evolution of the gas holdup as a function of the superficial gas velocity for tap water (Fig. III.4a), 50 wt % glycerol solution (Fig. III.4b), and XG 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup> solutions (Fig. III.4c), in a thin-gap bubble column in comparison with the other studies on conventional columns [2, 4, 6, 14–17] and on a confined column with lower degree of confinement than this study [5, 10]. Tab. III.2 summarizes the different studies used in the comparison.

For water (Fig. III.4a), these results show that the gas holdup is higher in this confined column than in conventional bubble columns for the homogeneous regime. This can be explained by the lower bubble rise velocity in thin-gap bubble columns, which increases the residence time of the bubbles and then the gas holdup. On the other side, the comparison with the study of Almani [10] indicates that the gas holdup seems somewhat higher in our study in the homogeneous regime (homogeneous I – see Sect. 3.2 – for tap water,  $U_{Gsup} < 0.004 \text{ m s}^{-1}$ ). Indeed, in homogeneous regime and for a given bubble size, due to the high confinement degree ( $'d_b/e' = 2.04$ ), the terminal velocity of bubbles is expected to be lower in comparison with Almani [10] ( $'d_b/e' = 0.82$ ). This lower terminal velocity will increase the residence time of bubbles and consequently the gas holdup. For  $U_{Gsup} > 0.004 \text{ m s}^{-1}$ , the gas holdup in the confined column still increases but more slowly than that in the homogeneous I, then the gas holdup becomes lower than in other columns. This may be due to the coalescence tendency which is greater under confined conditions and which increases with the degree of confinement.

For glycerol solutions, results obtained in the present study are compared to the ones reported by Olivieri et al. [14] and Mouza et al. [17] in conventional bubble columns (Fig. III.4b). At the same time, the results of this study are compared to the study of Thobie et al. [5] in a thin-gap bubble column (4 mm gap) where the confinement ratio  $'d_b/e'$  was lower than in this study and the number of capillaries was twice smaller (eight capillaries) for the same column dimensions, except the gap. For all  $U_{Gsup}$ , the gas holdup in this study is higher than that of the literature results. For  $U_{Gsup} < 0.006 \text{ m s}^{-1}$ , the gas holdup is slightly higher than that obtained by Thobie et al. [5] and this parameter is very high in comparison to the other studies carried out on classical bubble columns. This can be explained by the lower terminal velocity in this study in comparison with the other studies, so the residence time of the bubbles is longer. By increasing the  $U_{Gsup}$  and due to the lower capillary number, the transition regime starts early in the study of Thobie et al. [5] ( $U_{Gsup} = 0.006 \text{ m s}^{-1}$ ), due to the coalescence phenomenon, then the gas holdup is lower than that obtained in this study as can be seen in Fig. III.4b. In fact, the decrease of the capillary number causes the increase of the frequency of bubble detachment and also of the bubble size as formed at the capillary since the gas flow rate at each capillary is quite doubled at a given  $U_{Gsup}$ . Thus, the interactions between bubbles are more important in the case of eight capillaries, subsequently promoting the phenomenon of coalescence. In this study, the glycerol solution remains in the homogeneous regime over a large range of superficial gas velocities, namely, up to  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m s}^{-1}$  (see Sect. 3.2); therefore, the gas holdup keeps increasing linearly with an important slope due to the absence of coalescence

phenomenon, which explains why the gas holdup is higher than in the compared literature studies for all  $U_{Gsup}$ .

For nN fluids (XG at 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup>) (Fig. III.4c), the gas holdup results are compared with those available in the literature for conventional columns [2] and for a thin-gap bubble column with lower confinement ratio ( $d_b/e' = 0.83$ ) [10]. These results demonstrate that, at a given  $U_{Gsup}$ , the gas holdup of nN solutions in the confined column (this study) is higher than in classical ones and it also increases with the degree of confinement, for all flow regimes. This may be due to the fact that at this degree of confinement ( $d_b/e' = 2.2$  for XG solutions) more friction occurs at the wall in comparison with the other studies, which slows down the bubbles and subsequently increases the bubble residence times. So, this effect can explain that the gas holdup is higher in our study at all  $U_{Gsup}$ : in the homogeneous regime where the size of the bubbles is governed by the distributor but also in the transition and heterogeneous regimes where the bubbles can be larger due to coalescence.

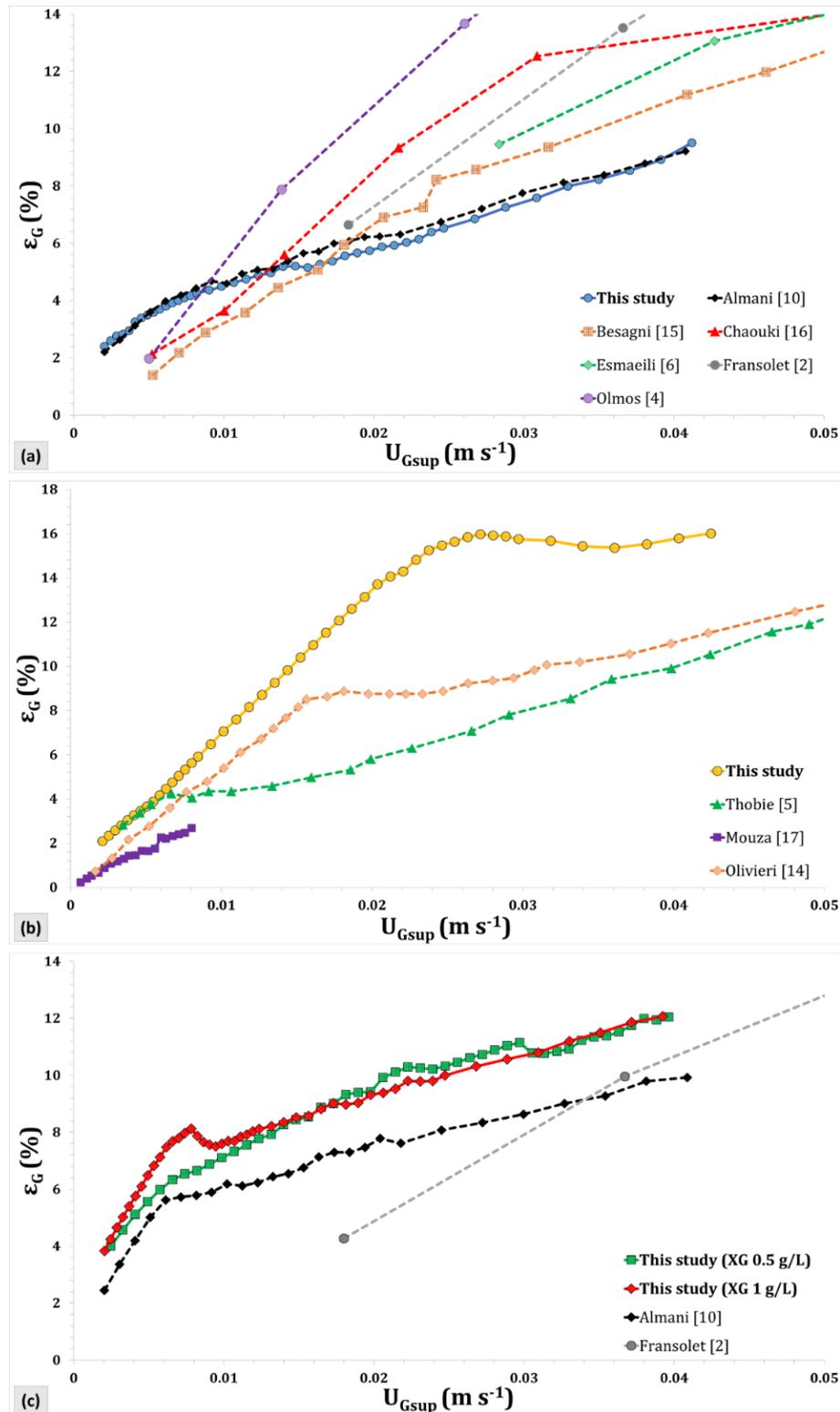


Figure III. 4 : Comparison of the gas hold-up obtained in the confined bubble column used in this study with data from the literature for conventional bubble column and confined column with ' $d_b/e' < 1$ : (a): Tap water, (b): glycerol solution at 50% wt % and (c): XG 0.5 and 1 g  $L^{-1}$

**Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange**

Table III. 2 : Studies used to compare the gas holdup results obtained in this study with literature

Reference	Fluid	Bubble column	$L_c$ [m]	$H_L$ [m]	$e$ [mm]	Gas injection system
This study	Tap water (Fig. III.4a) and XG 1 g/L (Fig. III.4c)	Parallelepipedic	0.3	0.97	2	Capillaries 15*1.016 mm
Almani [10]	Tap water (Fig. III.4a) and XG 1 g/L (Fig. III.4c)	Parallelepipedic	0.3	0.95	4	Capillaries 15*1.016 mm
Besagni and Inzoli [15]	Demineralized Water	Cylindrical	0.24	5.3	-	Sparger (stainless steel tube) 0.07 m*0.340 m*orifice = 3.5 mm)
Mokhtari and Chaouki [16]	Tap water	Cylindrical	0.292	2.7	-	Perforated plate (94*1 mm)
Esmacili et al. [6]	Tap water	Cylindrical	0.292	2.7	-	Perforated sparger (94*1 mm)
Fransolet et al. [2]	Demineralized water (Fig. III.4a) and XG 1 g/L (Fig. III.4c)	Cylindrical	0.24	2.75	-	Multihole sparger (203*1 mm)
Olmos et al. [4]	Tap water	Cylindrical	0.1	1.35	-	Porous (mean diameter of pore = 10-16 $\mu$ m)
Thobie et al. [5]	Glycerol 50% wt %	Parallelepipedic	0.3	0.95	4	Capillaries 8*0.508 mm
Olivieri et al. [14]	Glycerol 50% wt %	Cylindrical	0.12	0.8	-	Porous plate 128*0.4 mm
Mouza et al. [17]	Glycerol 50% wt %	Parallelepipedic	0.1	0.8	100	Porous disks ( $d_{pore} = 0.04$ mm)

### 3.2. Identification of flow regimes and their transitions

#### 3.2.1. Visual observation

Fig. III.5 presents the different flow regimes observed in the 2 mm thin-gap bubble column operated with Newtonian (tap water and aqueous solution of glycerol at 50 wt %) and nN shear-thinning fluids (XG 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup>) for increasing gas superficial velocities. Compared to classical bubble columns, where three main flow regimes (homogeneous, transition, and heterogeneous regimes) can be identified [5, 10], visual observation reveals here that those

three regimes can still be observed but also that new flow structures depending both on the properties of the liquid phase (viscosity/rheology, surface tension, etc.) and the gas flow rate can appear.

*Newtonian Fluids:*

For tap water (Fig. III.5a), visual observation shows the presence of two homogeneous regimes (I and II). Homogeneous regime I is characterized by the presence of small bubbles ( $d_b \approx 4$  mm), a uniform spatial distribution of gas retention, and a narrow bubble size distribution. In this regime, there is no interaction between bubbles, their movement is more or less vertical with the absence of coalescence phenomenon. In homogeneous regime II, in addition to the presence of small bubbles, the phenomenon of coalescence appears at a height of approximately 40 cm from the bottom of the reactor. This coalescence results only from vertical interactions between bubbles: when the vertical distance between bubbles reduces, the suction of bubbles in the wake of those that precede them is observed, the trajectories of the bubbles remaining more or less vertical with slight oscillations (no flow macrostructure).

It must be pointed out that homogeneous regime II is absent in classical 3D columns where homogeneous regime means no interaction between bubbles and is immediately followed by the transition regime which begins when both vertical and lateral collisions occur leading to coalescence and the appearance of a flow macrostructure. Fig. III.5a also shows the existence of two transition regimes (I and II) for tap water, as they were described by [5].

Transition regime I presents four regions: a “central plume region” with a swinging movement surrounded by “two fast bubble flow regions” composed of coalesced bubbles or cluster of bubbles, then, “vertical flow regions” composed of descending vortices are observed, and finally, near the sidewalls a “descending flow region” takes place. It can be noticed that in regime transition I coalescence begins significantly above a height of 15 cm. In that case, it results mainly from lateral collision of bubbles. Transition regime II is only composed of three regions since the two fast bubble flow regions merge at higher flow rates. In the heterogeneous regime, coherent structures have disappeared.

For the glycerol solution at 50 wt % (Fig. III.5b), the first regime at the lowest  $U_{Gsup}$  has never been observed for unconfined columns. It can be called “organized”: it presents periodically organized bubbles which conserve the memory of the injection (size, frequency of formation). They are of uniform size, with constant distance between them, and rise with

rectilinear trajectories and absence of coalescence. Then, in the homogeneous regime, the strong influence of the sparger is relatively attenuated, so the bubble trajectory is no longer perfectly rectilinear. A disorder in trajectories starts at 20 cm from the bottom of the column, in this case at  $U_{Gsup} = 0.005 \text{ m s}^{-1}$ , and the height of the vertical trajectories reduces gradually as  $U_{Gsup}$  increases. In this regime, the coalescence phenomenon is completely absent, consequently the number of bubbles increases rapidly with the gas flow rate.

Once  $U_{Gsup}$  becomes greater than  $0.021 \text{ m s}^{-1}$ , the transition regime begins. During this phase, there is little bubble coalescence, but lateral interactions between bubbles are important leading to the appearance of a flow macrostructure with higher gas holdup near the column centerline. After a critical point (at  $U_{Gsup} = 0.031 \text{ m s}^{-1}$ ), the heterogeneous regime is established. The bubble coalescence is very important at this stage and the presence of a large number of small bubbles (non-coalescing bubbles coming from the distributor) is also observed in this regime.

#### *Non-Newtonian Fluids:*

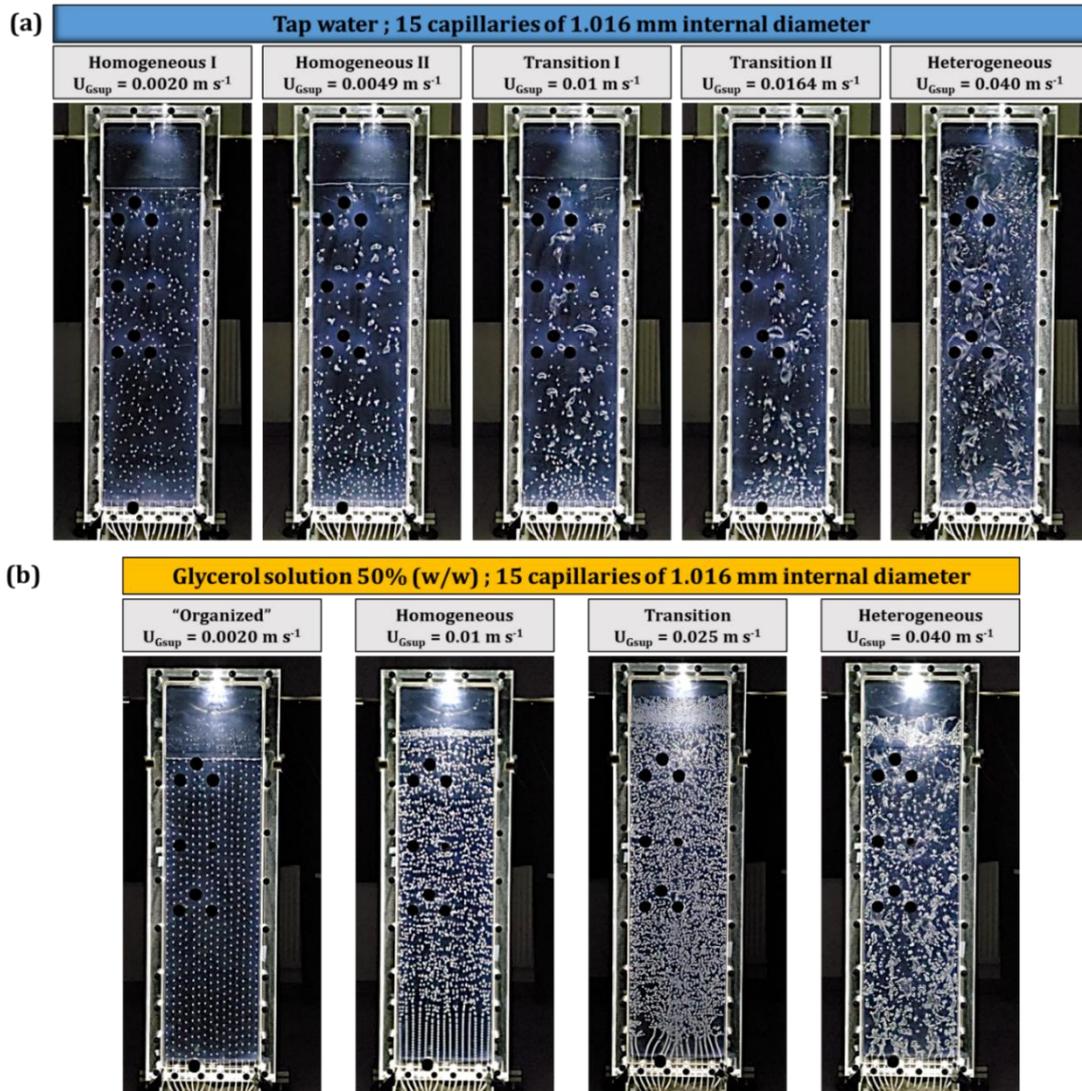
Similar to the case of glycerol solution, the organized regime is also present at low gas flow rates, for the XG solutions ( $0.5$  and  $1 \text{ g L}^{-1}$ ) (Figs. III5c and d) and has a similar structure (see the description in the previous paragraph). However, the difference compared to glycerol is that for XG solutions the homogeneous regime is not observed here, since coalescence starts directly after the organized regime, indicating the appearance of the transition regime. This coalescence is the result of important lateral interactions between bubbles. The XG  $0.5 \text{ g L}^{-1}$  solution has two transition regimes, but only one transition regime is observed for the XG  $1 \text{ g L}^{-1}$ . The first transition regime (present for the two XG solutions) is characterized by two flow structures. The first zone corresponds to the bubbles close to the sparger which are of uniform size with a vertical rise and no coalescence and the other zone starts at 20 cm (XG  $1 \text{ g L}^{-1}$ ) or 30 cm (XG  $0.5 \text{ g L}^{-1}$ ) from the bottom of the column and presents polydispersed bubbles due to the coalescence phenomenon, i.e., the height of the vertical trajectories reduces gradually as the  $U_{Gsup}$  increases.

In the second transition regime (for XG  $0.5 \text{ g L}^{-1}$ ), the bubble coalescence and breakup phenomena become important. Besides, in the heterogeneous regime (Figs. III5c and d), larger bubbles are observed in nN fluids compared to Newtonian fluids. The appearance of very small

***Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange***

bubbles is also detected in nN fluids, their hydrodynamics in the column being imposed by the liquid circulation.

The flow regimes and their transitions described above by visual observation are confirmed by the three methods of regime transition identification (see Sect. 3.2.2).



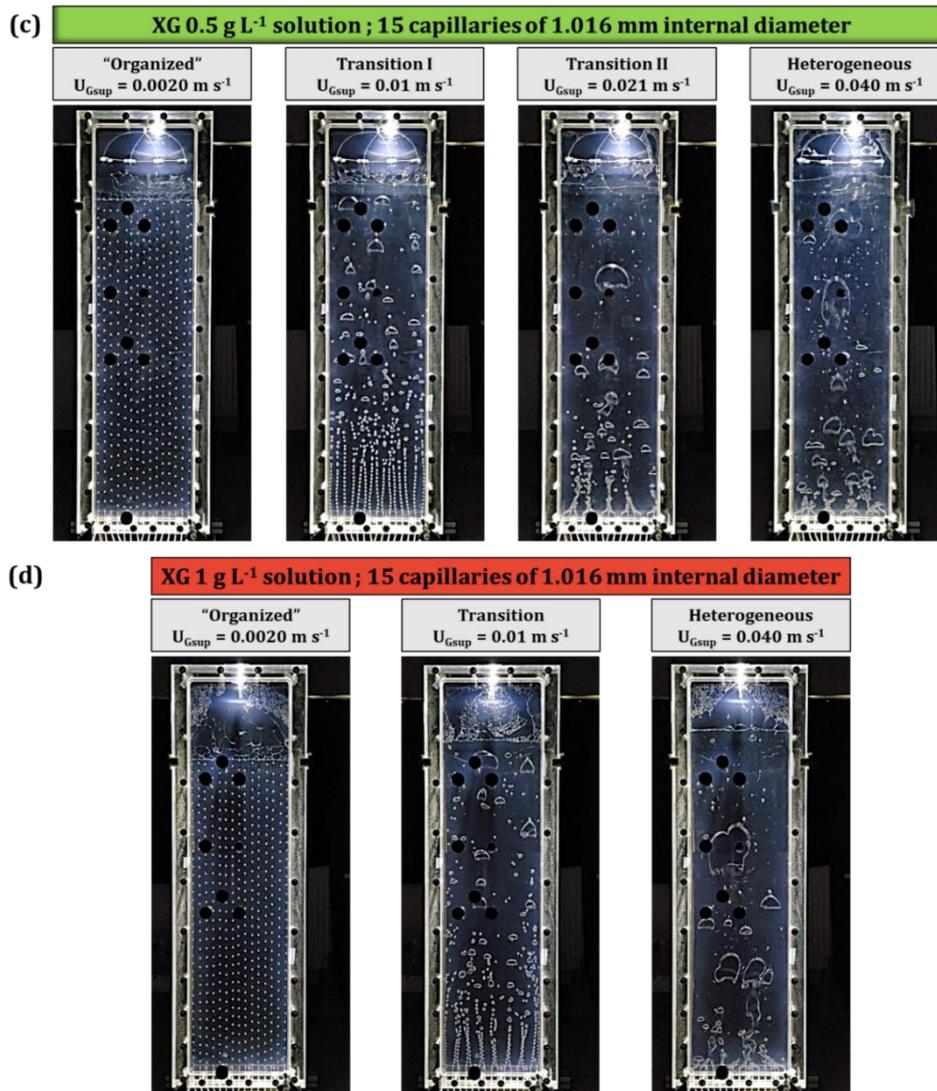


Figure III. 5 : Bubble patterns for the different flow regimes with four liquid phases in the 2 mm thin gap bubble column. (a, b) Newtonian fluids; (c, d) non-Newtonian fluids

### 3.2.2. Determination of regime transitions by three methods

Tab. III.3 summarizes the results of regime transition identification with the three methods (see Sect. 2.4) for all solutions. As already found by visual observation, the results of the three methods also indicate that tap water presents two homogeneous regimes I and II, marked by a change in slope at  $U_{Gsup} = 0.004 \text{ m s}^{-1}$ . For tap water and XG 0.5 g L<sup>-1</sup> solution, Tab. III.3 shows the existence of two transition regimes, marked by two changes in slope. For tap water, transition I appears at  $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m s}^{-1}$  and the second at  $U_{Gsup} = 0.015 \text{ m s}^{-1}$ . These two transition regimes have already been observed in the classical bubble columns by Lin et al. [18] and in confined bubble column with 4 mm gap ( $d_b/e' < 1$ ) by Thobie et al. [5] and Almani [10]. For the XG solution at 0.5 g L<sup>-1</sup>, the first transition regime starts at  $U_{Gsup} = 0.006 \text{ m s}^{-1}$  and the second at  $U_{Gsup} = 0.020 \text{ m s}^{-1}$ .

**Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange**

It can also be noted that the regime transitions occur at a lower  $U_{Gsup}$  for nN fluids (XG at 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup>) compared to tap water. For example, the transition from organized to transition regimes appears at  $U_{Gsup} = 0.006$  m s<sup>-1</sup> for XG at 0.5 and 1 g L<sup>-1</sup> against 0.007 m s<sup>-1</sup> for tap water (Tab. III.3). In fact, it has already been shown for conventional columns that the increase in the viscosity of the fluid increases the tendency to coalescence, which then favors the appearance of transition and heterogeneous regimes at a  $U_{Gsup}$  which is lower than in the case of water [14].

The comparison with literature also demonstrates that the transitions between the regimes occur at lower  $U_{Gsup}$  in the confined column than in conventional columns and in a 4 mm gap column. For instance, for tap water, the transition regime appears at 0.007 m s<sup>-1</sup> in the present case against 0.026, 0.125, 0.055, 0.048, and 0.008 m s<sup>-1</sup> in the studies of Besagni et al. [15], Esmaili et al. [6], Fransolet et al. [2], Olmos et al. [4], and Almani [10], respectively.

Similarly, for nN fluids, the comparison with the conventional column [2] indicates also that the regime transition occurs at 0.006 m s<sup>-1</sup> in confined column against 0.050 m s<sup>-1</sup> for Fransolet et al. [2]. This could be explained by the fact that confined configuration favors coalescence since bubbles can only move in a plane and not in 3D. On the other side, no significant effect of confinement ratio on the regime transition of XG solution can be reported in comparison with Almani [10].

*Table III. 3 : Transition of regimes with different methods for all fluids.  $U_{Gsup0-1}$ : Transition between the organized and homogeneous regime ;  $U_{Gsup1-2}$ : Transition between the homogeneous and transition regime ;  $U_{Gsup2-3}$ : Transition between the transition and heterogeneous regime ;  $U_{Gsup0-2}$ : Transition between the organized and transition regime ;  $U_{Gsup1-1}$ : Transition between the homogeneous regimes I and II ;  $U_{Gsup1-2}$ : Transition between the homogeneous II and the transition I regimes ;  $U_{Gsup2-2}$ : Transition between the transition regimes I and II ;  $U_{Gsup2-3}$ : Transition between the transition II and heterogeneous regimes*

Fluid	Method	$U_{Gsup 1-1} [m s^{-1}]$	$U_{Gsup 1-2} [m s^{-1}]$	$U_{Gsup 2-2} [m s^{-1}]$	$U_{Gsup 2-3} [m s^{-1}]$
Tap Water	$\varepsilon_G = f(U_{Gsup})$	0.0037	0.0071	0.0151	0.0211
	$U_{swarm} = f(U_{Gsup})$	0.0040	0.0090	0.0156	0.0216
	$\langle J_{G-L} \rangle = f(\varepsilon_G)$	0.0037	0.0082	0.0142	0.0214
	Visual	0.0041	0.0061	0.0164	0.0189
	Mean	0.0039	0.0076	0.0153	0.0207
XG 0.5 g L <sup>-1</sup>			$U_{Gsup 0-2} [m s^{-1}]$	$U_{Gsup 2-2} [m s^{-1}]$	$U_{Gsup 2-3} [m s^{-1}]$
	$\varepsilon_G = f(U_{Gsup})$		0.0062	0.0202	0.0293
	$U_{swarm} = f(U_{Gsup})$		0.0082	0.0194	0.0293
	$\langle J_{G-L} \rangle = f(\varepsilon_G)$		0.0062	0.0206	0.0293
	Visual		0.0070	0.0206	0.0305

***Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange***

	Mean	0.0069	0.0202	0.0296
		$U_{Gsup\ 0-2} [m\ s^{-1}]$		$U_{Gsup\ 2-3} [m\ s^{-1}]$
XG 1 g L <sup>-1</sup>	$\varepsilon_G = f(U_{Gsup})$	0.0062		0.0184
	$U_{swarm} = f(U_{Gsup})$	0.0077		0.0214
	$\langle J_{G-L} \rangle = f(\varepsilon_G)$	0.0074		0.0206
	Visual	0.0066		0.0165
	Mean	0.0070		0.0192
		$U_{Gsup\ 0-1} [m\ s^{-1}]$	$U_{Gsup\ 1-2} [m\ s^{-1}]$	$U_{Gsup\ 2-3} [m\ s^{-1}]$
Glycerol 50% wt %	$\varepsilon_G = f(U_{Gsup})$	0.0055	0.0215	0.0311
	$U_{swarm} = f(U_{Gsup})$	0.0058	0.0223	0.0289
	$\langle J_{G-L} \rangle = f(\varepsilon_G)$	0.0059	0.0215	0.0311
	Visual	0.0051	0.0212	0.0319
	Mean	0.0056	0.0216	0.0307

#### 4. Conclusion and perspectives

The global hydrodynamics in a 2 mm gap bubble column (with high confinement degree ' $d_b/e$ ') intended as an intensified PBR is investigated experimentally, using different solutions (Newtonian and non-Newtonian), having rheological properties close to those of microalgae *Chlorella vulgaris* suspensions at high concentrations (up to 42 g L<sup>-1</sup>). The respective influences of the confinement and the rheological properties of the liquid phase have been highlighted. In particular, gas holdup, flow regimes, and their transitions were characterized.

The regime characterization results, performed using various methods, put into evidence different flow regimes and bubble interactions in comparison with a classical bubble column depending on the properties of the liquid phase and the confinement degree ' $d_b/e$ '. The results also indicated that at low  $U_{Gsup}$  the gas holdup is higher with a viscous or nN fluids than in the case of water. It is also higher in a thin-gap column than in a classical one and increases with the degree of confinement, due to an increment of wall friction and bubble residence times.

In addition, the regime transitions appear for much lower  $U_{Gsup}$  in nN fluids than in water and in thin-gap column than in classical columns. Thus, an important consequence at the scale of the PBRs will be that, if it is desired to operate in homogeneous regime (recommended regime for microalgae culture), the superficial gas velocity range will be very limited which will also affect gas holdup, mass transfer, and mixing efficiency. Characterization of all these parameters will allow to identify the optimal operating conditions for efficient operation of high-concentration microalgae cultures.

### Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange

Further studies will investigate the influence of confinement on gas-liquid mass transfer. Furthermore, the wall shear stress will also be measured to better quantify its influence on the possible delay of biofouling or detachment of biofilm depending on the gas sparging. Finally, cultivation of the microalgae *Chlorella vulgaris* will be performed. The objectives of this step will be to adopt operating conditions guaranteeing satisfactory mixing and gas-liquid mass transfer and to implement sparging conditions limiting biofouling, and finally to verify if the characteristics of mixing, coalescence, and mass transfer under culture conditions are comparable to the results of model fluids.

#### Acknowledgment

The authors gratefully acknowledge ANR (Agence Nationale de la Recherche) for financial support of A. Haydar's Ph.D.

*The authors have declared no conflict of interest.*

#### Symbols used

$d_b$	[m]	bubble equivalent diameter
$e$	[m]	gap width
$g$	[m s <sup>-2</sup> ]	gravity acceleration
$\Delta h$	[m]	distance between the two pressure sensors
$H_L$	[m]	liquid phase height
$\langle J_{G-L} \rangle$	[m s <sup>-1</sup> ]	drift flux
$L_c$	[m]	column width
$\Delta P$	[Pa]	differential pressure
$T$	[°C]	temperature
$U_{Gsup}$	[m s <sup>-1</sup> ]	superficial gas velocity
$U_{swarm}$	[m s <sup>-1</sup> ]	swarm velocity

#### Greek letters

$\varepsilon_G$	[-]	global gas hold-up
-----------------	-----	--------------------

### Chapitre III : Caractérisation globale de l'hydrodynamique dans une colonne à bulles confinée : taux de vide, régimes d'écoulement et temps de mélange

$\mu$	[Pa s]	fluid viscosity
$\rho_L$	[kg m <sup>-3</sup> ]	liquid density
$\sigma$	[N m <sup>-1</sup> ]	surface tension

#### Abbreviations

CMC	carboxymethyl cellulose
nN	non-Newtonian
PBR	photobioreactor
XG	xanthan gum

#### References

- [1] A. Soulies, J. Pruvost, J. Legrand, C. Castelain, T. I. Burghilea, *Rheol. Acta.* **2013**, *52* (6), 589–605
- [2] E. Fransolet, M. Crine, P. Marchot, D. Toye, *Chem. Eng. Sci.* **2005**, *60* (22), 6118–6123. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.03.046>
- [3] N. Jamshidi, N. Mostoufi, *Exp. Therm Fluid Sci.* **2018**, *94*, 34–48. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2018.01.034>
- [4] E. Olmos, C. Gentric, N. Midoux, *Chem. Eng. Sci.* **2003a**, *58* (10), 2113–2121. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(03\)00013-7](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(03)00013-7)
- [5] C. Thobie, E. Gadoin, W. Blel, J. Pruvost, C. Gentric, *Chem. Eng. Process. Process Intensif.* **2017**, *122*, 76–89. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cep.2017.10.009>
- [6] A. Esmaili, C. Guy, J. Chaouki, *Chem. Eng. Sci.* **2015**, *129*, 193–207. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.01.071>
- [7] G. Besagni, F. Inzoli, T. Ziegenhein, *ChemEngineering.* **2018**, *2*, 13. DOI: <https://doi.org/10.3390/chemengineering2020013>
- [8] A. Filella, P. Ern, V. Roig, *J. Fluid Mech.* **2015**, *778*, 60–88. DOI: <https://doi.org/10.1017/jfm.2015.355>
- [9] J. Ruiz-Rus, P. Ern, V. Roig, C. Martínez-Bazán, *J. Fluid Mech.* **2022**, *944*, A13. DOI: <https://doi.org/10.1017/jfm.2022.492>
- [10] S. Almani, *Experimental and Numerical Study of the Hydrodynamics and Gas-Liquid Mass Transfer in a Thin Gap Bubble Column in Presence of Newtonian or Non-Newtonian Liquid Phase*, These de doctorat, Nantes **2021**.

- [11] A. S. Haase, J. A. Wood, L. M. J. Sprakel, R. G. H. Lammertink, *Phys. Rev. E.* **2017**, 95 (2), 023105. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.95.023105>
- [12] N. Zuber, J. A. Findlay, *J. Heat Transfer.* **1965**, 87 (4), 453. DOI: <https://doi.org/10.1115/1.3689137>
- [13] G. B. Wallis, *One-Dimensional Two-Phase Flow*, McGraw-Hill, New York, NY **1969**.
- [14] G. Olivieri, M. Elena Russo, M. Simeone, A. Marzocchella, P. Salatino, *Chem. Eng. Sci.* **2011**, 66 (14), 3392–3399. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.01.027>
- [15] G. Besagni, F. Inzoli, *Chem. Eng. Sci.* **2016**, 145, 162–180. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2016.02.019>
- [16] M. Mokhtari, J. Chaouki, *Chem. Eng. J.* **2019**, 358, 831–841. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.10.067>
- [17] A. A. Mouza, G. K. Dalakoglou, S. V. Paras, *Chem. Eng. Sci.* **2005**, 60 (5), 1465–1475. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.10.013>
- [18] T.-J. Lin, J. Reese, T. Hong, L.-S. Fan, *AIChE J.* **1996**, 42 (2), 301–318. DOI: <https://doi.org/10.1002/aic.690420202>

## **PART B: Determination of the mixing time**

This part focuses into investigating the impact of superficial gas velocities, confinement and rheological parameters on the mixing time. Several fluids with different viscosities and rheologies have been used, given that PBRs that operate with high microalgae concentrations often encounter challenges in achieving proper mixing due to elevated viscosity.

Mixing time experiments are conducted through the conductimetric method, employing a NaCl solution as a tracer and monitoring the local conductivity within the mixture. The conductivity probe is positioned at the location p5 (Figure III.1). Over a range of superficial gas velocities between 0.002 to 0.040 m.s<sup>-1</sup>, mixing time is determined for all four solutions. Two distinct injection methods are employed for the mixing time experiments: one involves injecting the tracer from the top at a single position, while the other utilizes a width injector at the top (along the entire width of the column) (cf. Figure II.7).

First, the results obtained by local injection (top of the column) are presented and then these results are compared with the ones obtained with the width injection system.

1. Influence of the liquid phase rheology on the mixing time (local injection)

A semi-logarithmic scale graph is used to show differences between closely spaced points (Figure III.6). This figure shows a decrease in mixing times ( $t_m$ ) with increasing superficial gas velocity for the four fluids used. The  $t_m$  for tap water decreases rapidly during the homogeneous regime (up to  $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ) and then remains quite constant for the higher values of superficial gas velocities (variation between 13 et 33 seconds). For the viscous solutions (XG and glycerol solutions), the  $t_m$  is very high (at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $t_m$  equal to 225, 750 and 408 min, respectively, for XG 0.5, 1  $\text{g.L}^{-1}$  and glycerol 50 wt% solutions) and decreases only slowly with  $U_{Gsup}$  during the organized regime. This can be attributed to the influence of the high viscosity, leading to a rectilinear trajectory for bubbles without interaction (see the visual observation, Figure III.5b,c and d). The decrease in  $t_m$  becomes more significant as the  $U_{Gsup}$  increases more than  $0.007 \text{ m.s}^{-1}$ , corresponding to the appearance of the transition regime (bubble coalescence) for the XG 0.5 and 1  $\text{g.L}^{-1}$  solutions and the homogeneous regime for the glycerol solution (for this fluid, bubble trajectory is no longer perfectly rectilinear but without coalescence up to  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m.s}^{-1}$ ; more details in the part A, section 3.2.1).

The comparison of the mixing times between water and the viscous solutions (glycerol and XG solutions) shows that this parameter is higher in the latter case especially at low  $U_{Gsup}$ : for instance, at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $t_m$  (XG 1  $\text{g.L}^{-1}$ ) = 750 min,  $t_m$  (XG 0.5  $\text{g.L}^{-1}$ ) = 225 min,  $t_m$  (Glycerol 50 wt %) = 408 min and  $t_m$  (Tap water) = 9 min (Figure III.6). This phenomenon can be explained by the bubble dynamics in the continuous phase at low viscosity (water), which generates vorticities, resulting from wakes of bubbles, with quite high intensity from the lowest gas flow rates. At higher flowrates, strong fluctuations, interactions between bubbles and several deformations are observed in water (Figure III.5a). Thus, the bubbles change shape continuously during their ascent, which contribute to favoring small mixing times. On the other hand, for viscous solutions, the mixing capacity is much lower than water due to the high viscosity of the medium. In fact, for these fluids, the shape of the bubbles does not change during their displacement and remains ellipsoidal without wobbling. These observations lead to longer mixing times for viscous fluids than for water.

In the organized regime, the comparison between the two XG solutions shows that the  $t_m$  is higher for the more concentrated XG solution (1  $\text{g.L}^{-1}$ ), primarily because of its higher viscosity (Figure III.6). Likewise, when comparing XG at 1  $\text{g.L}^{-1}$  with the glycerol solution, the  $t_m$  is higher for the XG solution. This finding could be explained by the rheological properties of

these two fluids where the viscosity of XG at 1 g.L<sup>-1</sup> seems to be more important over the whole range of the shear rate (cf. Figure III.2). On the other side, the  $t_m$  is lower for XG 0.5 g.L<sup>-1</sup> in comparison with glycerol solution, especially in the organized regime: for example, at  $U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}$ , (XG 0.5 g.L<sup>-1</sup>) = 85 min and  $t_m$  (Glycerol 50 wt %) = 202 min. Indeed, the visual observation analysis (Figures III.5b and c) highlights that these two fluids exhibit comparable flow patterns characterized by a straight and minimally oscillatory path during the organized regime. However, the shadowgraphy study (presented in chapter IV and Annexures IX and X) reveals a slight difference between them, primarily in terms of the bubble average rise velocities which are higher for the XG solution at 0.5 g.L<sup>-1</sup> (with a vertical velocity ' $v$ ' equal to 0.11 m.s<sup>-1</sup> for a range of  $0.002 < U_{Gsup} < 0.004 \text{ m.s}^{-1}$ ), as compared to the glycerol solution ( $v$  equal to 0.95 m.s<sup>-1</sup> for the same  $U_{Gsup}$  range); this slight difference in bubble velocities can be responsible of this difference in mixing time between these two fluids.

Considering the application to photobioreactors, which are predominantly operated at low  $U_{Gsup}$  (homogeneous regime in classical bubble column), the mixing times can be quite poor, which potentially impacts the even distribution of nutrients and dissolved gases. To illustrate, within the organized regime, the observed mixing time values are up to 407 times higher compared to those observed within the heterogeneous regime for XG solution at 1 g.L<sup>-1</sup>. When comparing the homogeneous and heterogeneous regimes, this ratio stands at 22 for the tap water. Consequently, these poor mixing times within organized regime, using XG and glycerol solutions (corresponding to microalgae at higher concentration), hold the potential for adverse consequences that could impact the culture's growth.

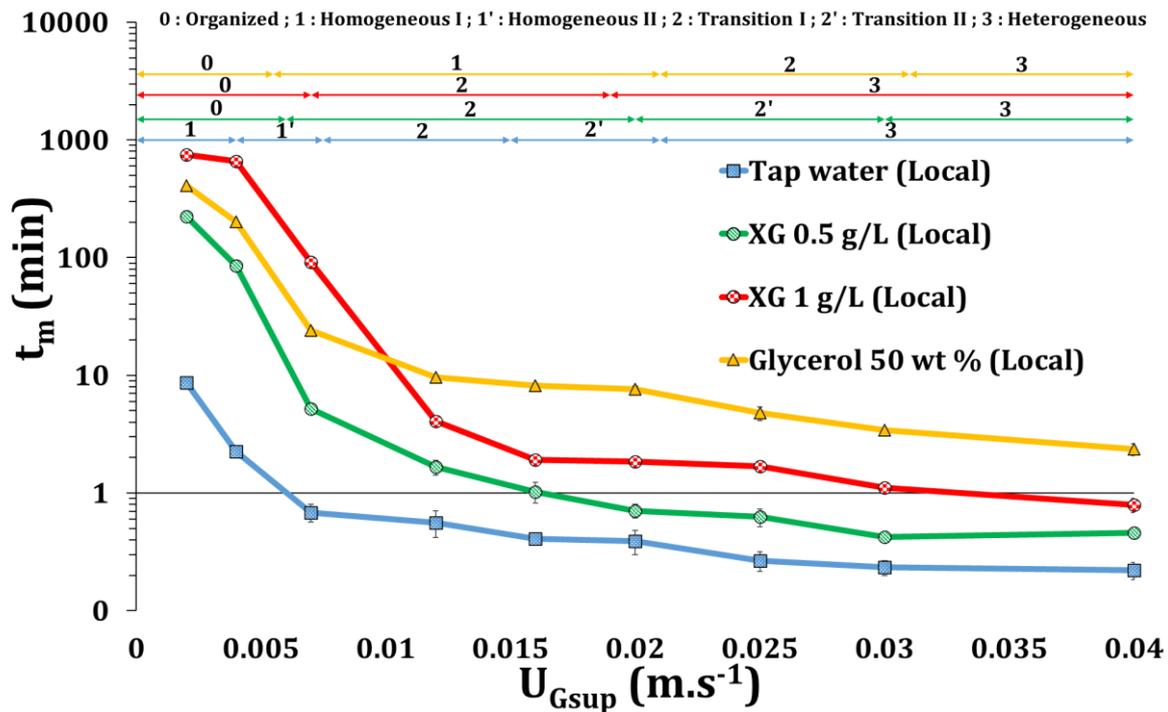


Figure III. 6 : Mixing time (Local injection) vs superficial gas velocity for the four fluids used

## 2. Influence of liquid phase rheology on the mixing time (width injection)

In the previous part, it was observed that the  $t_m$  is very high with local injection. This may be attributed to the particularity of the column which only allows to have a mixture in 2D given the confinement, in comparison with a conventional column. Thus, the width injection is used which can ensure a uniform supply of tracer over the entire width of the column so that only the axial mixing is quantified. The mixing time results with the width injection method are compared with those obtained by the local injection method (Figure III.7). Mixing time is determined by injecting NaCl solution using a width injector having 4 holes with an inner diameter of 1.5 mm. This width injector is placed at 17 cm above from the free surface of the unaerated liquid (cf. Figure II.7).

Figure III.7 shows that mixing times at low  $U_{Gsup}$ , are greater with the local injection method for all fluids. For example, at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ , the ratio between the two types of injection is 1.1, 3.9, 3.3 and 4.5 respectively for water, glycerol 50 wt %, XG 0.5 and  $1 \text{ g.L}^{-1}$ . This decrease in mixing times observed using the width injection method emphasizes the poor “radial” mixing (i.e., in the width direction) at low  $U_{Gsup}$ . In the transition and heterogeneous regimes, the mixing times using the width injection method remain shorter than that with the local method, especially for viscous fluids, but the difference is lower than for small  $U_{Gsup}$ ,

showing that radial and axial mixing both play a role in mixing times. For instance, at  $U_{Gsup} = 0.025 \text{ m.s}^{-1}$ , the ratio between the two types of injection becomes 1.2, 1.14, 1.18 and 1.9 respectively for water, glycerol 50 wt %, XG 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup> (Figure III.7).

After verifying the mixing times within this thin-gap bubble column using both injection methods, it was established that the poor mixing times cannot be exclusively attributed to poor “radial” mixing since these high mixing times were not only observed during experiments with local injection but also in experiments involving tracer injection across the entire width of the reactor.

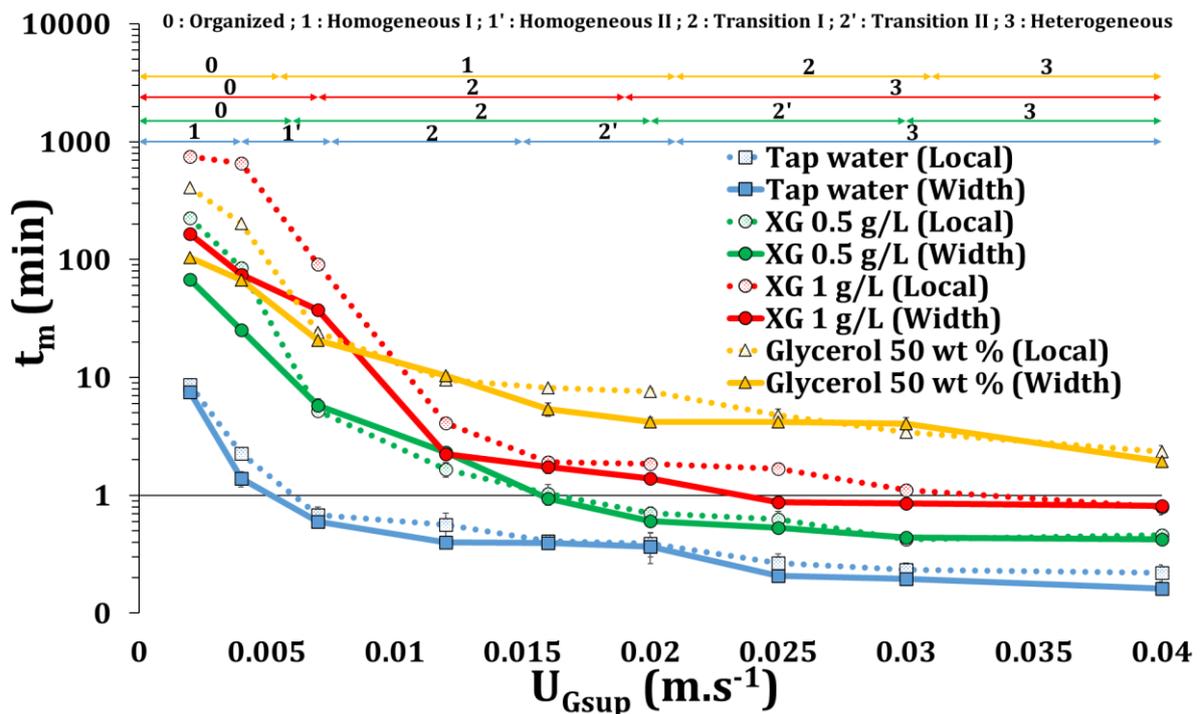


Figure III. 7 : Mixing time vs superficial gas velocity with both tracer injection methods: local and width injection for all tested fluids

### 3. Influence of confinement on the mixing time (local and width injection)

Comparing the mixing times of confined bubble columns and conventional ones is challenging due to various factors. These include differences in column geometry, gas injection size and type, range of superficial gas velocities, tracer injection mode and injection location (McClure et al., 2015). As observed in the above section in confined column (Figure III.7), conventional ones exhibit a similar behavior: lower superficial gas velocities lead to longer mixing times, whereas higher superficial gas velocities decrease the mixing time (Almani, 2021). Additionally, when comparing solutions with different viscosities, it was found that

mixing time is higher in viscous solutions compared to water. Ravinath et al. (2008) investigated the viscosity impact of CMC solutions, on mixing times in a classical bubble column with an internal diameter of 0.2 m. They discovered that the effect of viscosity on mixing time is more pronounced at lower  $U_{Gsup}$  compared to higher velocities. Furthermore, McClure et al. (2015) conducted a study on the influence of tracer injection and measurement location, revealing notable differences in mixing times based on these parameters.

Our study yielded similar results, with significant decreases in mixing time values up to the transition regime, similar to conventional bubble columns. Beyond the transition regime, the mixing time remains quite constant for the higher values of  $U_{Gsup}$ , due to the increased agitation in the flow (Figure III.7).

In confined bubble column (4 mm gap and ' $d_b/e$ ' < 1), mixing time analyses were carried out by Almani (2021) with two injection methods: local injection at the bottom of the column and width injection above the free surface and using tap water and non-Newtonian fluids including a XG solution at 1 g.L<sup>-1</sup>. The comparison with the study of Almani (2021) (Figure III.8) shows that whatever the type of injection, the mixing time  $t_m$  increases with the degree of confinement ' $d_b/e$ ', especially in XG at 1 g.L<sup>-1</sup>.

For instance, for the local injection (Figure III.8a), at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $t_m$  is 1.35 times higher in this study for tap water (8.7 min vs 6.4 min) and 75 times higher for XG 1 g.L<sup>-1</sup> (750 min vs 10 min) in comparison with Almani (2021) results. For the width injection (Figure III.8b),  $t_m$  is 2.4 times higher in this study for tap water (7.6 min vs 3.2 min) and 15 times higher for XG 1 g.L<sup>-1</sup> (167 min vs 11 min) in comparison with Almani (2021) results.

For transition and heterogeneous regimes ( $U_{Gsup} > 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), the mixing time for XG 1 g.L<sup>-1</sup> remains always higher in this study and for the two injection methods (Figure III.8a and b): for example, at  $U_{Gsup} = 0.016 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $t_m$  is 1.9 min in this study vs 0.7 min in Almani (2021) for the local injection; for the width injection,  $t_m$  is 1.7 min in this study vs 1.2 min in Almani (2021). However, for tap water, by increasing the  $U_{Gsup}$ ,  $t_m$  becomes lower in this study than that obtained by Almani (2021) especially in the homogeneous regime (II) ( $U_{Gsup} > 0.004 \text{ m.s}^{-1}$ ). For this case, the phenomenon of coalescence appears earlier in confined column (see Table III.3) due to the vertical interactions between bubbles, subsequently favoring the mixing mechanism in comparison with the study of Almani (2021). Also, it is important to note that up to 0.007 m.s<sup>-1</sup>, no coalescence phenomenon was observed by Almani (2021) for tap water.

This finding remains until  $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$  for the local injection (Figure III.8a). However, for width injection,  $t_m$  seems to be always lower in this study for tap water at all  $U_{Gsup}$  with some differences in the mixing (Figure III.8b). These results can demonstrate that the confinement effect (described above), characterized by the earlier occurrence of the coalescence phenomenon in a confined geometry ( $d_b/e' > 1$ ), predominantly impacts “radial” mixing.

This rather high mixing time observed in this study can be explained by the reduction of the agitation capacity with confinement, in particular, the shear induced by the walls. These wall-induced effect can attenuate the flow disturbances generated by the bubbles and prevents the development of turbulence and agitation associated with 2D bubble movement. This contrast becomes particularly pronounced when comparing our results to those in a classical bubble column (where 3D bubble movement occurs) or to confined columns with lower degrees of confinement, such as Almani (2021) study, where the bubble is not flattened in the gap, unlike this study.

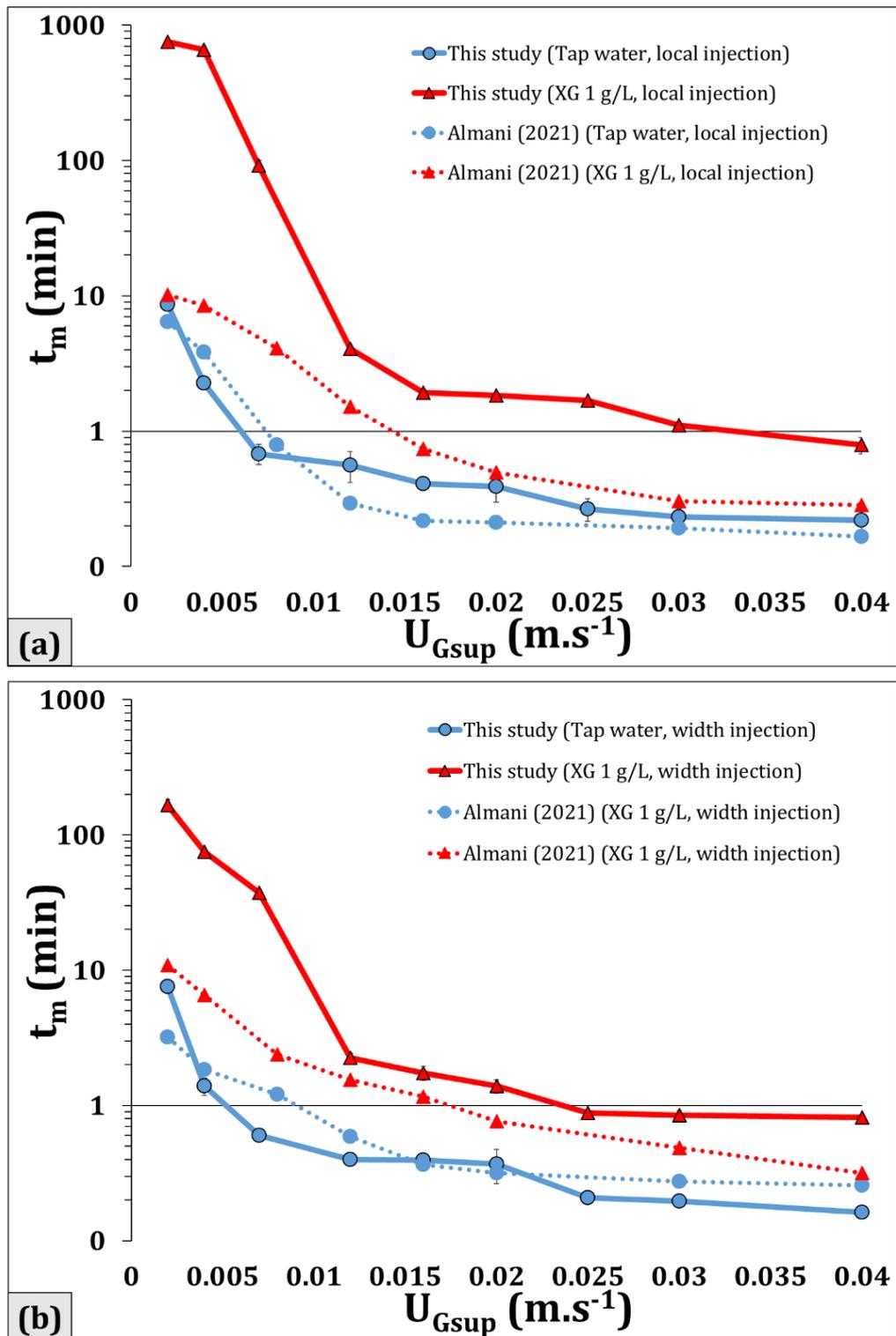


Figure III. 8 : Comparison between mixing time values in the two thin-gap bubble columns (2 mm and 4 mm) in tap water and XG at 1 g.L<sup>-1</sup> with two tracer injection methods: a) Local injection and b) Width injection

## Conclusion and perspectives

In light of the potential use of bubble columns for cultivating microalgae with enhanced productivity, this study characterizes the global hydrodynamics (gas holdup, flow regimes and mixing time) under various superficial gas velocities within a 2 mm-gap bubble column.

The characterization of hydrodynamics begins by quantifying overall gas holdup. Notably, at low superficial gas velocity, gas holdup is found to be higher in viscous and non-Newtonian liquids than in the case of water and this parameter is found to be higher in thin-gap bubble column than in classical one. This latter result is related to longer residence times in the confined geometry. The increased gas holdup observed in this confined geometry may potentially enhance gas-liquid mass transfer in the intensified PBR.

Evaluating flow regimes and identifying transitions between them using different methods reveals the appearance of new flow regimes and bubble interactions in comparison with those observed in a classical bubble column. These differences are influenced by the properties of the liquid phase and the confinement degree represented by the ratio ' $d_b/e$ '. In addition, the results showed that regime transitions appear for much lower  $U_{Gsup}$  in non-Newtonian fluids than in water and in thin-gap column than in classical columns (since bubbles can only move in a plane and not in 3D, favoring their coalescence). Consequently, this holds significant implications for the scale of PBRs, especially when the objective is to operate within the preferred homogeneous regime for microalgae cultivation: this will lead to a limited range of superficial gas velocities, subsequently impacting gas holdup, mass transfer, and mixing effectiveness.

The investigation of mixing times utilizes two different methods: local injection and width injection of the tracer. Both methodologies demonstrate poor mixing in viscous and non-Newtonian liquids at low  $U_{Gsup}$ , particularly within the organized regime, with values ranging from 407 to 120 times higher compared to those observed in the heterogeneous regime, respectively for each method. Additionally, a significant increase in mixing time with increased viscosity is observed. A comparison between mixing times of water and viscous/non-Newtonian fluids reveals consistently longer mixing times in the latter case. This phenomenon can be explained by the dynamics of bubbles within low-viscosity Newtonian fluids, which generate vorticity that subsequently promotes more effective mixing. The comparison with the study of Almani (2021) in 4 mm-gap bubble column and ' $d_b/e$ ' < 1, shows that whatever the

type of injection, the mixing time increases with the degree of confinement, especially at low  $U_{Gsup}$ . This high mixing time in confined geometry can be explained by the reduction of agitation capacity with confinement (2D bubble motion versus 3D bubble motion).

To summarize, it is evident that confinement and rheological properties of the liquid phase significantly influence hydrodynamics and mixing within the thin-gap bubble column. By characterizing all the above parameters, it becomes feasible to determine the best operational conditions for efficiently cultivating microalgae cultures at high concentrations: in homogeneous regime, the mixing is quite poor, which can cause a challenged issue inside the PBR (nutrient and light distribution etc...); In the same time, increasing the gas flowrate, in order to improve mixing, can lead to coalescence, potentially reducing the 'a' value and, consequently, the  $k_La$  value. Utilizing the beginning of transition regime ( $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ) might offer a promising strategy to enhance mixing within the PBR, with minimal impact on mass transfer. By employing this  $U_{Gsup}$ , a substantial reduction in mixing time is achievable, resulting in a 12-fold decrease in water (9.7 min vs. 0.7 min), a 45-fold decrease in XG at 0.5  $\text{g.L}^{-1}$  (225 min vs. 5 min), an 8-fold decrease in XG at 1  $\text{g.L}^{-1}$  (750 min vs. 92 min), and a 17-fold decrease in glycerol at 50 wt% (408 min vs. 24 min), all while considering the local injection method and by increasing the  $U_{Gsup}$  from 0.002 to 0.007  $\text{m.s}^{-1}$ .

The next chapter in this thesis will investigate the gas-liquid mass transfer in this confined bubble column. The objective is to understand the impact of confinement and rheological properties of liquid phase on the  $k_La$  value.

Finally, there exists a necessity to conduct liquid flow analysis surrounding bubbles through Particle Image Velocimetry (PIV). This effort is crucial for achieving a deeper comprehension of the complex phenomena occurring in such geometry.

## ***Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide***

---

---

### Introduction

La culture de microalgues en mode autotrophe nécessite l'apport d'une source de carbone inorganique par l'injection d'air enrichi en CO<sub>2</sub>. Dans un PBR intensifié, lorsque la concentration en biomasse augmente, la viscosité de la phase continue augmente également, entraînant l'apparition d'un comportement rhéologique non-Newtonien (Souliès et al., 2013). Ce phénomène pourrait potentiellement influencer l'apport en CO<sub>2</sub> et son transfert au sein du milieu de culture. Par conséquent, l'aération doit être suffisante pour éviter que le transfert de matière ne limite la croissance. De plus, elle doit être suffisante pour empêcher l'accumulation d'O<sub>2</sub> dans le réacteur, car une accumulation excessive pourrait inhiber la croissance des microalgues (Pruvost et al., 2017). Une compréhension approfondie des mécanismes de transfert de matière gaz-liquide à l'intérieur de ce PBR est donc essentielle.

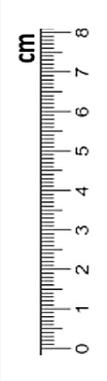
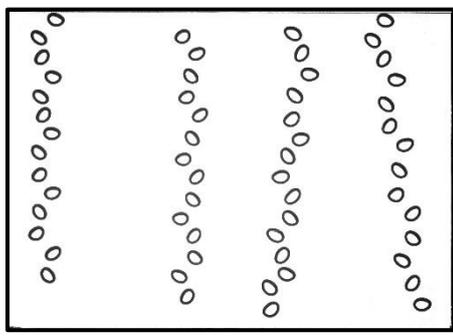
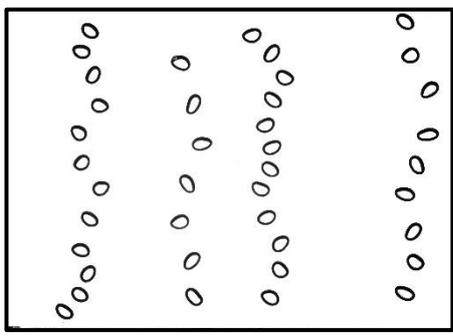
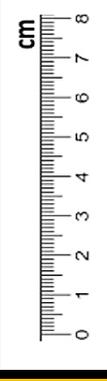
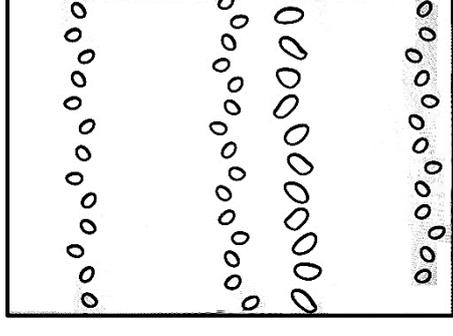
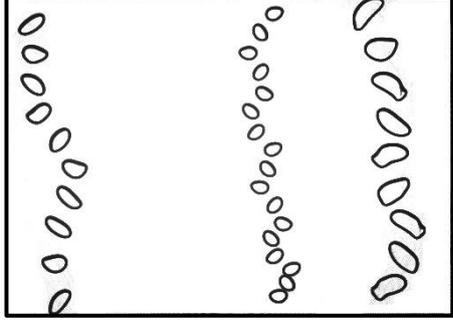
Ce chapitre traite de l'hydrodynamique locale (phase gazeuse) ainsi que du transfert de matière gaz-liquide dans une colonne à bulles de 2 mm d'épaisseur, sous différents débits de gaz et pour des phases liquides Newtoniennes, à faible et forte viscosité (eau et glycérol à 50% m/m), et non-Newtoniennes (solutions de XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>). La méthode d'ombroscopie est utilisée pour caractériser la phase gazeuse, permettant d'obtenir la distribution de tailles et de vitesses des bulles. La distribution des tailles des bulles a permis de déterminer la surface spécifique d'échange ' $a$ ', qui joue un rôle crucial dans la capacité du transfert de matière gaz-liquide. Le coefficient volumique de transfert de matière,  $k_{La}$ , est calculé à partir de l'analyse des courbes de désoxygénation-réoxygénation à l'aide d'une approche basée sur le modèle de dispersion axiale de la phase liquide. L'objectif est de comprendre les influences respectives du coefficient de transfert de matière ' $k_L$ ' et de la surface spécifique d'échange ' $a$ ' sur les valeurs de  $k_{La}$ . L'effet du confinement sur le transfert gaz-liquide est également étudié dans cette colonne à bulles confinée.

**PART A: Characterization of the gaseous phase by shadowgraphy measurements**

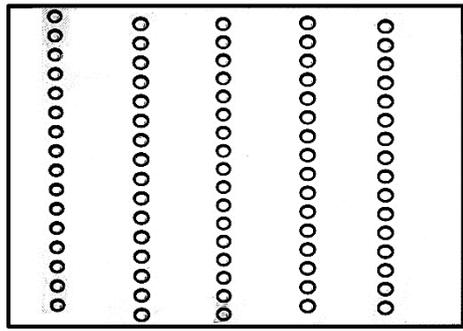
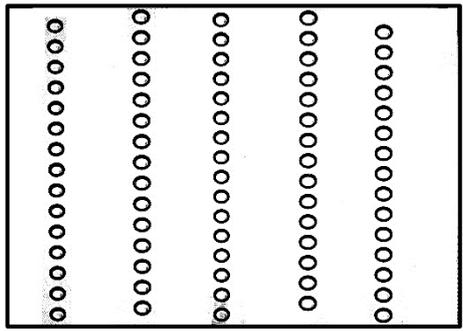
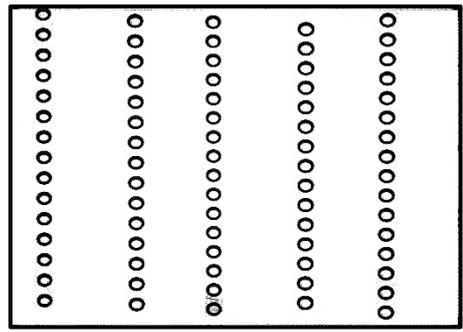
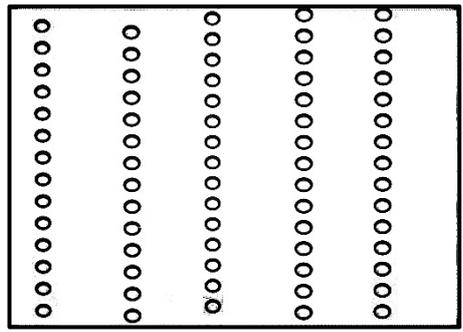
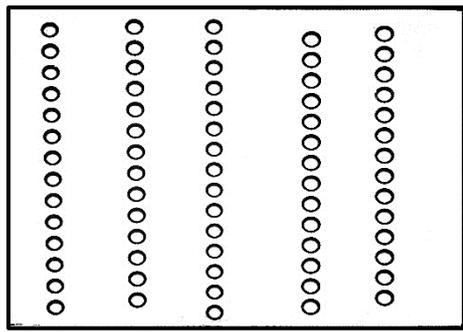
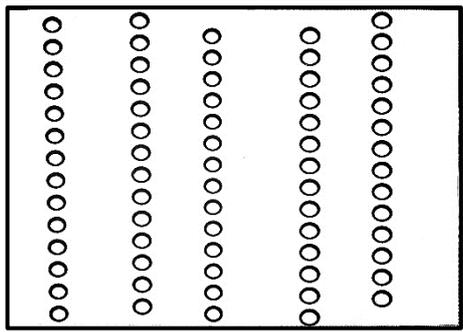
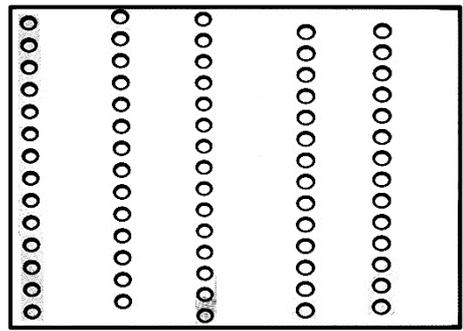
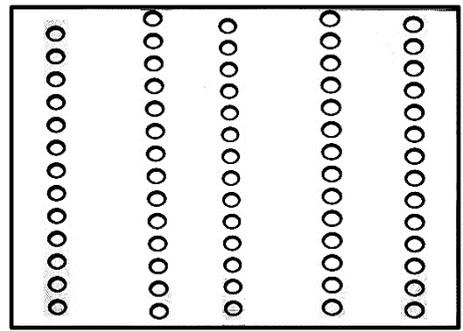
1. Trajectory of bubbles in 2D confined column

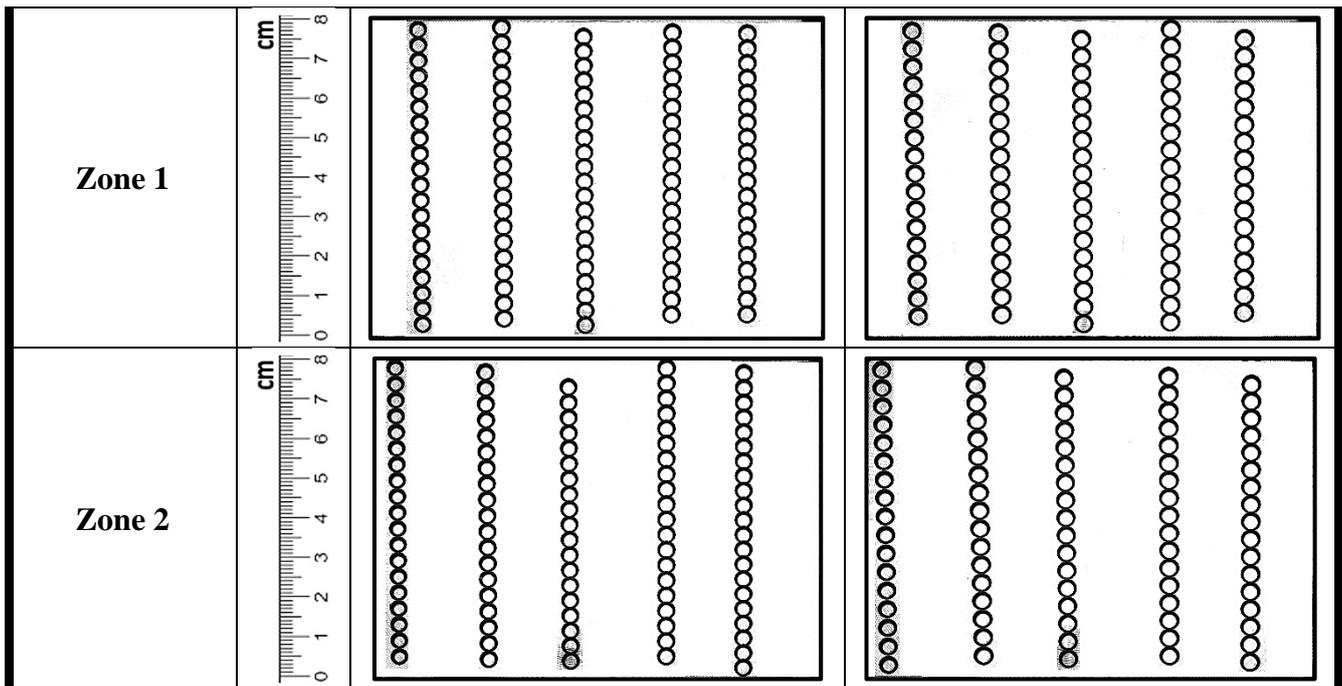
Table IV.1 shows the trajectory of different bubbles for tap water (a), glycerol (b) and two XG solutions (c and d), for two  $U_{Gsup}$  corresponding to homogeneous (I and II) regimes (tap water) and organized regime (viscous solutions) within two measurement zones (zones 1 et 2). The purpose of having two sufficiently distinct measurement zones is to check whether there is a change in the bubbles size during their rising by break-up or coalescence. For air-water system (Table IV.1a), oscillating trajectories are observed in all tested conditions ( $U_{Gsup}$  and zones). In this fluid, the influence of viscosity forces on the bubble's ascent is negligible. In the case of glycerol and the two XG solutions, viscosity forces exert a significant influence, thus keeping the trajectory linear during the organized regime (Table IV.1b,c and d).

Table IV. 1 : Bubble trajectories in the 2 mm-gap column with different fluids and superficial gas velocities within two measurement zones (Frequency between two bubble images = 20 Hz)

<b>(a) Tap water</b>		$U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$	$U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}$
<b>Zone 1</b>			
<b>Zone 2</b>			
<b>(b) Glycerol (50 wt%)</b>		$U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$	$U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}$

**Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide**

Zone 1			
Zone 2			
<b>(c) XG at 0.5 g.L<sup>-1</sup></b>		<b><math>U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}</math></b>	<b><math>U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}</math></b>
Zone 1			
Zone 2			
<b>(d) XG at 1 g.L<sup>-1</sup></b>		<b><math>U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}</math></b>	<b><math>U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}</math></b>



## 2. Characterization of the bubble size distribution (in number) in Newtonian and non-Newtonian liquid phases

The shadowgraphy measurements are carried out for superficial gas velocities ranging from 0.002 to 0.007 m.s<sup>-1</sup> in two zones (zones 1 and 2). The objective is to identify the bubble size distribution in number, especially for the homogeneous and the beginning of transition regimes. For  $U_{Gsup} > 0.007$  m.s<sup>-1</sup>, measurements become unfeasible due to the bubble diameter surpassing the studied zone. Also, a statistical analysis is conducted to identify the various bubble size classes (bubbles formed at the distributor with an average diameter ' $d_0$ ', those resulting from the coalescence of multiple bubbles, and those due to the break-up phenomenon) for different configurations. Bubble class determination involves a two-step process. First, we plot the bubble size distribution in terms of the % in number of bubbles vs. their equivalent diameter ( $d_b$ ) for each experimental condition ( $U_{Gsup}$ , zone and fluid). Then, we define a fixed range of equivalent diameters as a bubble class based on the peaks observed for each class.

### 2.1. Bubbles rising in Newtonian fluids

For water (Figure IV.1), in zone 1, at low superficial gas velocity ( $U_{Gsup} = 0.002$  m.s<sup>-1</sup>), the population is mostly monomodal, even if some bubbles seem to have coalesced given that a small peak (3% in number of the total population) is observed; the first pic (97% in number) corresponds to the bubbles generated by the distributor, having an average equivalent diameter

of  $4.02 \pm 0.12$  mm and the other pic (3% in number) corresponds to the class of coalesced bubbles, having an average diameter of  $5.64 \pm 0.14$  mm. The ratio between these two diameters is close to  $\sqrt{2}$ , which indicates that this latter class can be the result of the coalescence of two bubbles. By increasing  $U_{Gsup}$  in the same zone, the main class begins to widen towards larger diameters (Figure IV.1). For example by increasing  $U_{Gsup}$  from 0.002 to 0.007 m.s<sup>-1</sup> in zone 1,  $d_0$  (bubble diameter at the injection) increases from  $4.02 \pm 0.12$  mm to  $4.41 \pm 0.15$  mm. Similarly, in zone 2,  $d_0$  increases from  $4.12 \pm 0.14$  mm to  $4.45 \pm 0.24$  mm as  $U_{Gsup}$  is increased (more gas volume is being pushed into the capillaries, which can make the bubbles larger at the distributor). These results highlight also that, at a given  $U_{Gsup}$ , there are no significant differences in  $d_0$  between the two zones ( $4.02 \pm 0.12$  mm compared to  $4.12 \pm 0.14$  mm at  $U_{Gsup} = 0.002$  m.s<sup>-1</sup>).

On the other hand, the percentage of the main bubble class number decreases when the  $U_{Gsup}$  increases from 0.002 to 0.007 m.s<sup>-1</sup>. In zone 1, this percentage decreases from 97% at 0.002 m.s<sup>-1</sup> to 47% at 0.007 m.s<sup>-1</sup>. In zone 2, the decrease in percentage is even more significant compared to zone 1, decreasing from 78% to 24% at the same  $U_{Gsup}$  (Figure IV.1). Furthermore, when increasing the  $U_{Gsup}$ , the number of bubble classes increases owing to the bubbles coalescence: In zone 1 (Figure IV.1), at  $U_{Gsup} = 0.007$  m.s<sup>-1</sup>, four populations are observed, the initial class, having an average diameter  $d_0$  (47%) and three bubble classes resulting of the coalescence of two ( $\sqrt{2} d_0$ ) (17% in number), three ( $\sqrt{3} d_0$ ) (13% in number) and four ( $\sqrt{4} d_0$ ) (8% in number) bubbles are observed. In addition, in comparison with zone 1, the coalescence phenomenon is more pronounced in the zone 2 (located higher in the column) (Figure IV.1), where many different bubbles classes are observed, even at the lowest  $U_{Gsup}$ : for instance, four bubble classes in zone 2 versus two bubble classes in zone 1 at  $U_{Gsup} = 0.002$  m.s<sup>-1</sup>. These four bubble classes include the initial class ( $d_0 = 4.45 \pm 0.24$  mm) and three bubble classes having an average equivalent diameter of  $5.74 \pm 0.20$  mm ( $\sqrt{2} d_0$ : coalescence of two bubbles),  $7.08 \pm 0.35$  mm ( $\sqrt{3} d_0$ : coalescence of three bubbles) and  $8.47 \pm 0.40$  mm ( $\sqrt{4} d_0$ : coalescence of four bubbles). Furthermore, the beginning of the break-up phenomenon is observed, especially in this zone (zone 2), with the appearance of bubbles having an average diameters of  $1.59 \pm 0.59$  mm for  $U_{Gsup}$  of 0.007 m.s<sup>-1</sup>. Figure IV.2 provides a combining image generated from the analysis of 500 images using the Dantec program (acquisition frequency = 20 Hz). This image illustrates the various bubbles produced as a result of the break-up phenomenon occurring in zone 2 at  $U_{Gsup} = 0.007$  m.s<sup>-1</sup> for tap water.

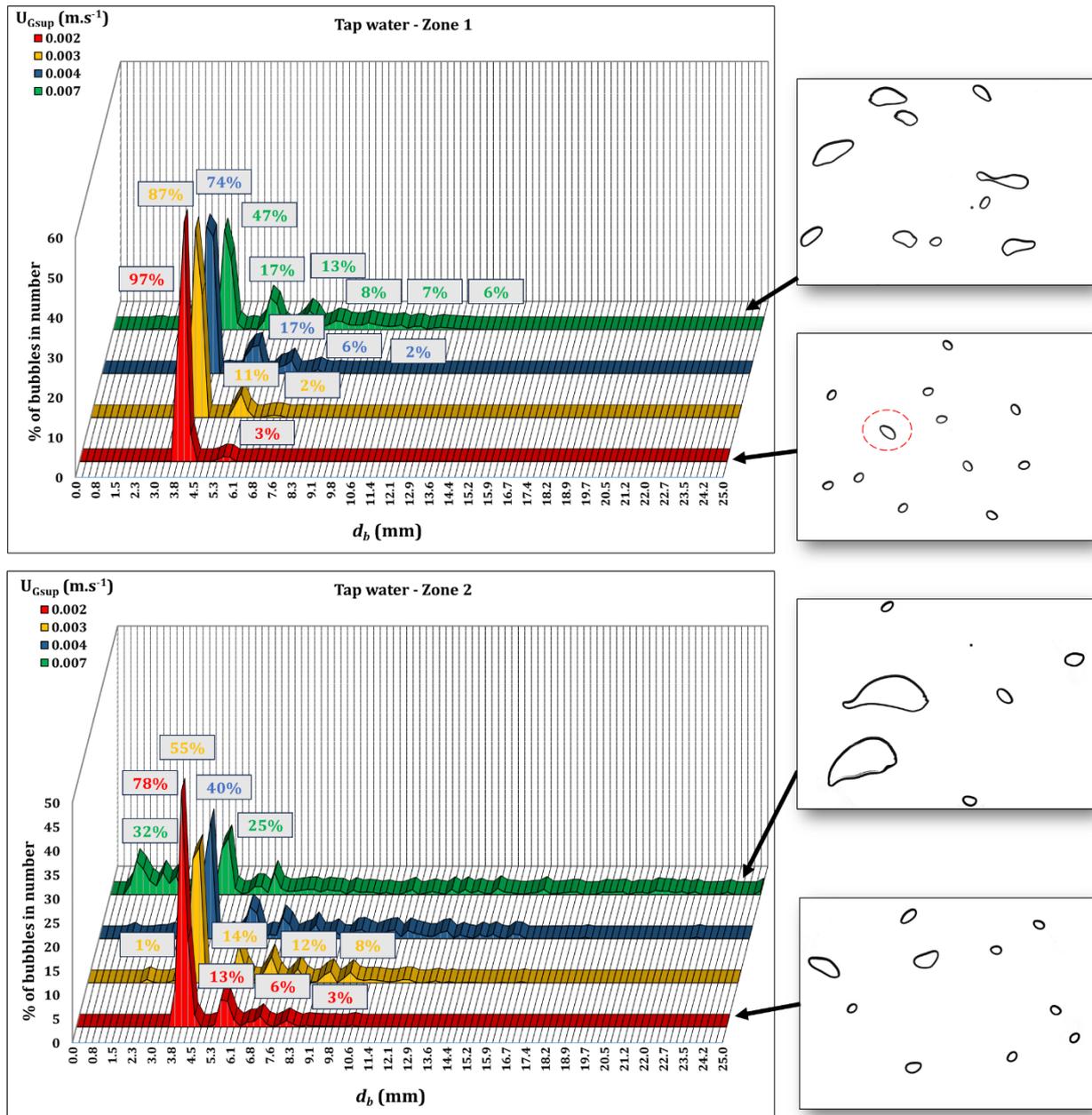


Figure IV. 1 : Bubble size distribution in number for different superficial gas velocities in an air - water system and for two measurement zones

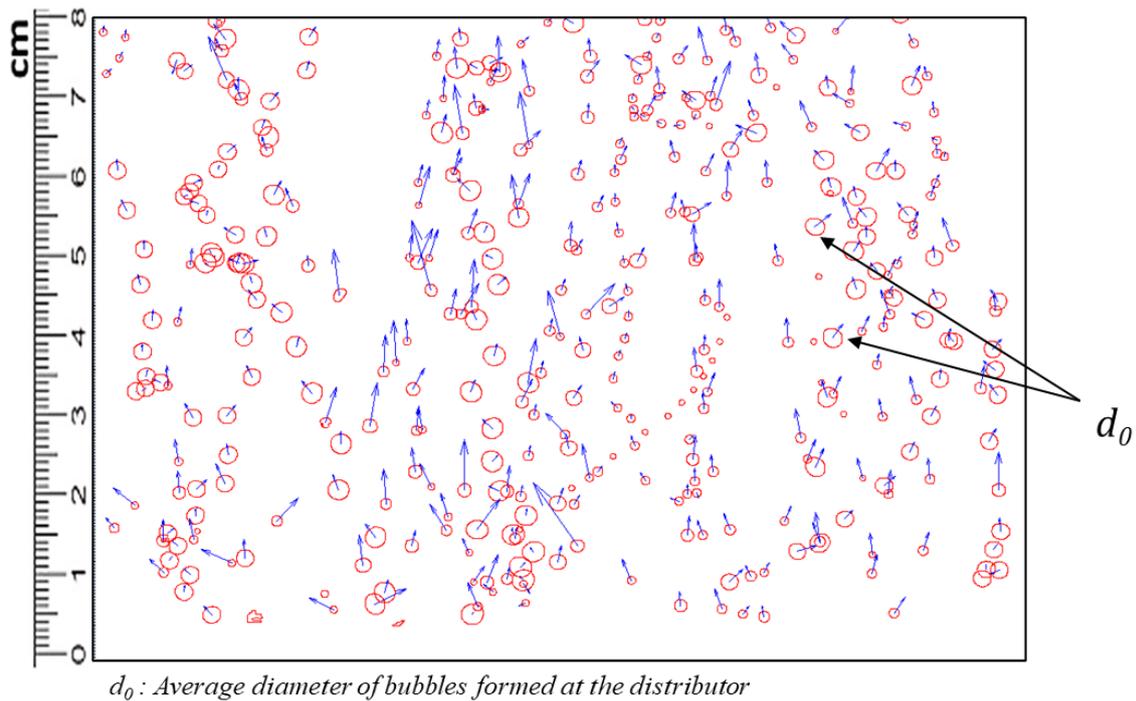


Figure IV. 2 : Bubbles resulting from break-up phenomenon for tap water at  $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$  in zone 2 (combining photo of 500 images, acquisition frequency = 20 Hz)

For glycerol 50 wt % (Figure IV.3) at all tested  $U_{Gsup}$ , the population remains monomodal in the both zones. This is expected for this fluid since the coalescence phenomenon is completely absent at these  $U_{Gsup}$ , due to the large range of organized and homogeneous regimes for glycerol solution (up to  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m.s}^{-1}$ ) (see chapter III, Table III.3). In both zones, the  $d_0$  of the main bubbles class increases approximatively from  $3.8 \pm 0.12 \text{ mm}$  to  $4.3 \pm 0.17 \text{ mm}$  when the  $U_{Gsup}$  increases from 0.002 to  $0.007 \text{ m.s}^{-1}$ .

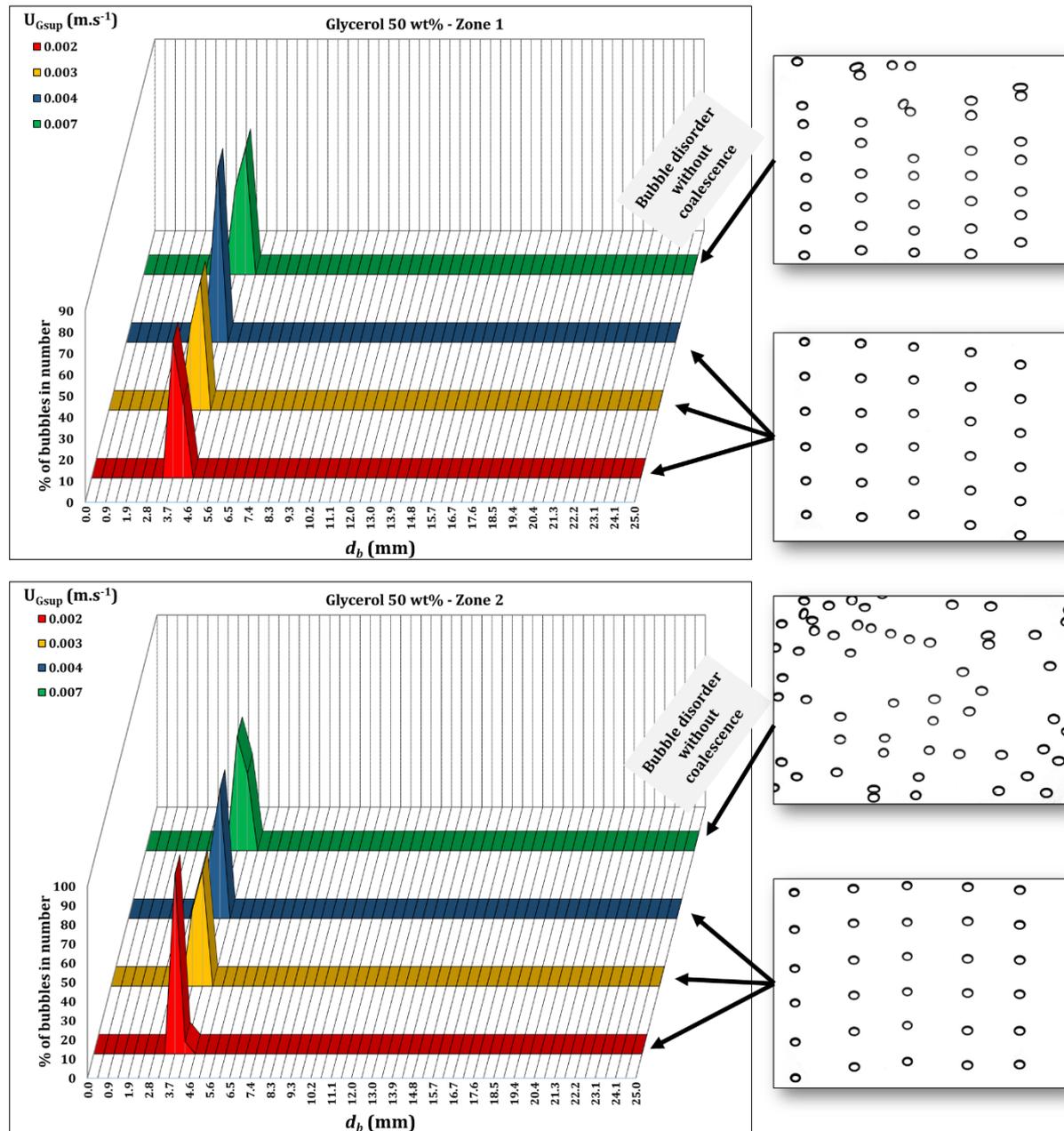


Figure IV. 3 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air – 50 wt % aqueous glycerol solution system and for two measurement zones

## 2.2. Bubbles rising in non-Newtonian fluids

For the two fluids (XG at 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup>) (Figures IV.4 and IV.5), in the organized regime ( $U_{Gsup} < 0.007$  m.s<sup>-1</sup>), the population is monomodal in the two zones (rectilinear trajectory of bubbles, see Table IV.1c and d).

For XG at 0.5 g.L<sup>-1</sup> (Figure IV.4), the transition regime starts at  $U_{Gsup}$  of 0.007 m.s<sup>-1</sup> (see Table III.3), the coalescence is present only in the zone 2, as it is possible to see in the figure

IV.4, where the population appears predominantly bimodal. In this figure, minor bubble classes (represent 5% of total population) are also observed. However, characterizing these minor classes is challenging due to the limited dimensions of the studied zone (Figure IV.4). At this  $U_{Gsup}$ , the first bubble population represents 46% of the total population and the second one (class of coalesced bubbles) represents 48% of the total population (Figure IV.4). This notable number of coalesced bubbles (48%) can be attributed to the rheological characteristics of XG (viscous fluid): in the figure IV.4, it is possible to observe a bubble slowing down and being caught up by the following bubble during their ascent. Also, visual observations at this  $U_{Gsup}$  indicated that coalescence phenomenon begins at the same height as that of zone 2 for this fluid (Figures III.5c et IV.4), thus the initial class becomes less important than the classes resulting from the coalescence. On the other side, in zone 1, even in the transition regime, no coalescence phenomenon is observed (Figure IV.4). This absence of coalescence can be attributed to the organized bubble flow structure near the distributor, where the bubbles maintain a uniform size, and their trajectories remain perfectly vertical, preventing any coalescence (see Figure IV.4, zone 1). For this reason, the population still always monomodal, at these tested  $U_{Gsup}$ , in the zone 1 for XG at  $0.5 \text{ g.L}^{-1}$ .

For XG at  $1 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure IV.5), in the transition regime ( $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), due to the high viscosity at this concentration of XG, the coalescence starts also in the zone 1, where 1% of the total population has coalesced. These bubbles are the result of coalescence of two bubbles ( $\sqrt{2} d_0$ ) (Figure IV.5). In zone 2, the population is trimodal: the initial class represents 83% of the total bubbles and two classes resulting from the coalescence of two (10%) and three bubbles (2%). The other bubble classes, which represent 5% of total populations, can be the results of the coalescence of four bubbles or more, but it is difficult to characterize them due to the limiting studied zone dimension. This figure shows also that 1% of the total population has an average diameter smaller than that at the injection and which can be attributed to the bubbles resulting from the break-up phenomenon (Figure IV.5).

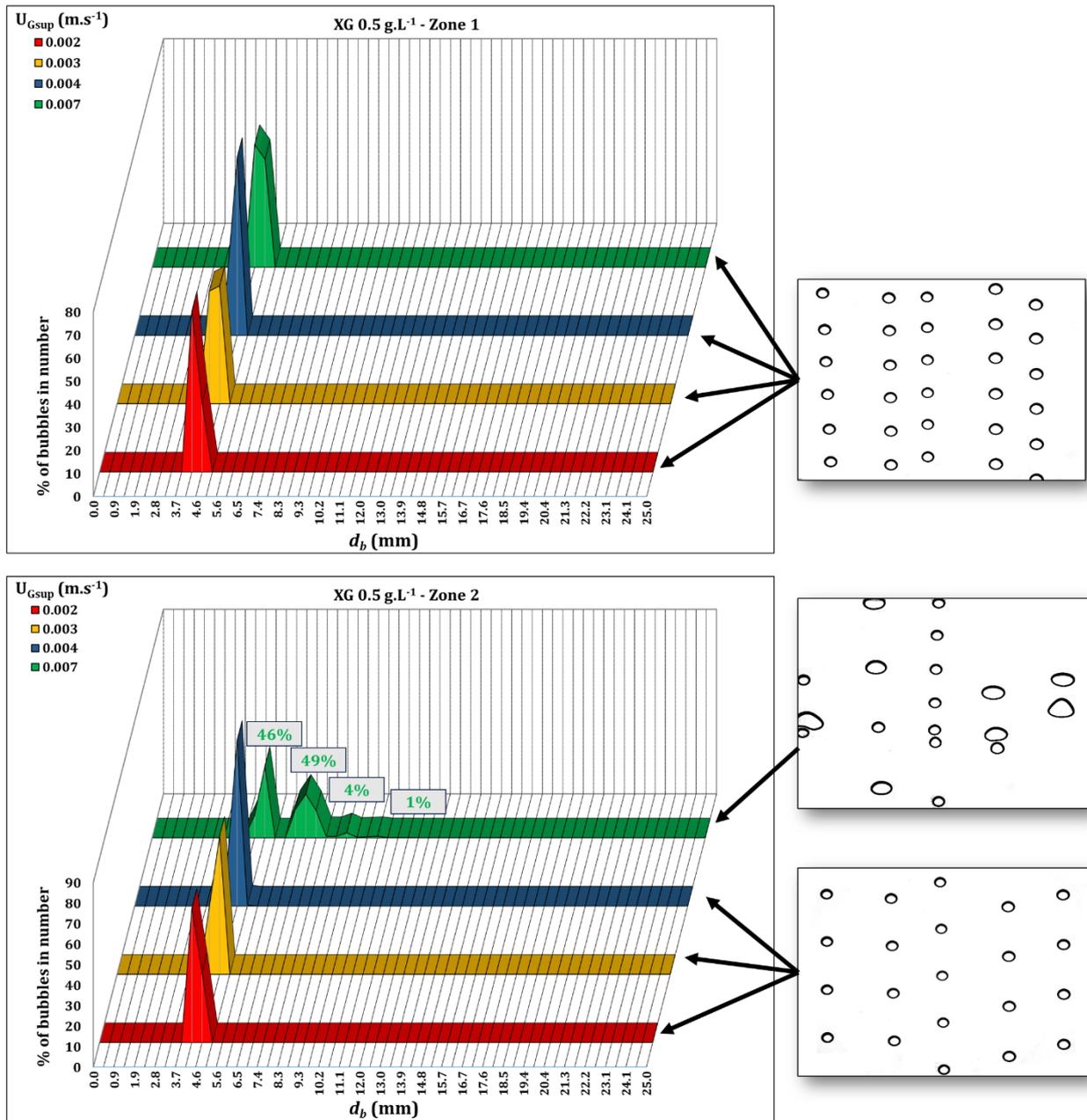


Figure IV. 4 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air - XG 0.5 g.L<sup>-1</sup> system and for two measurement zones

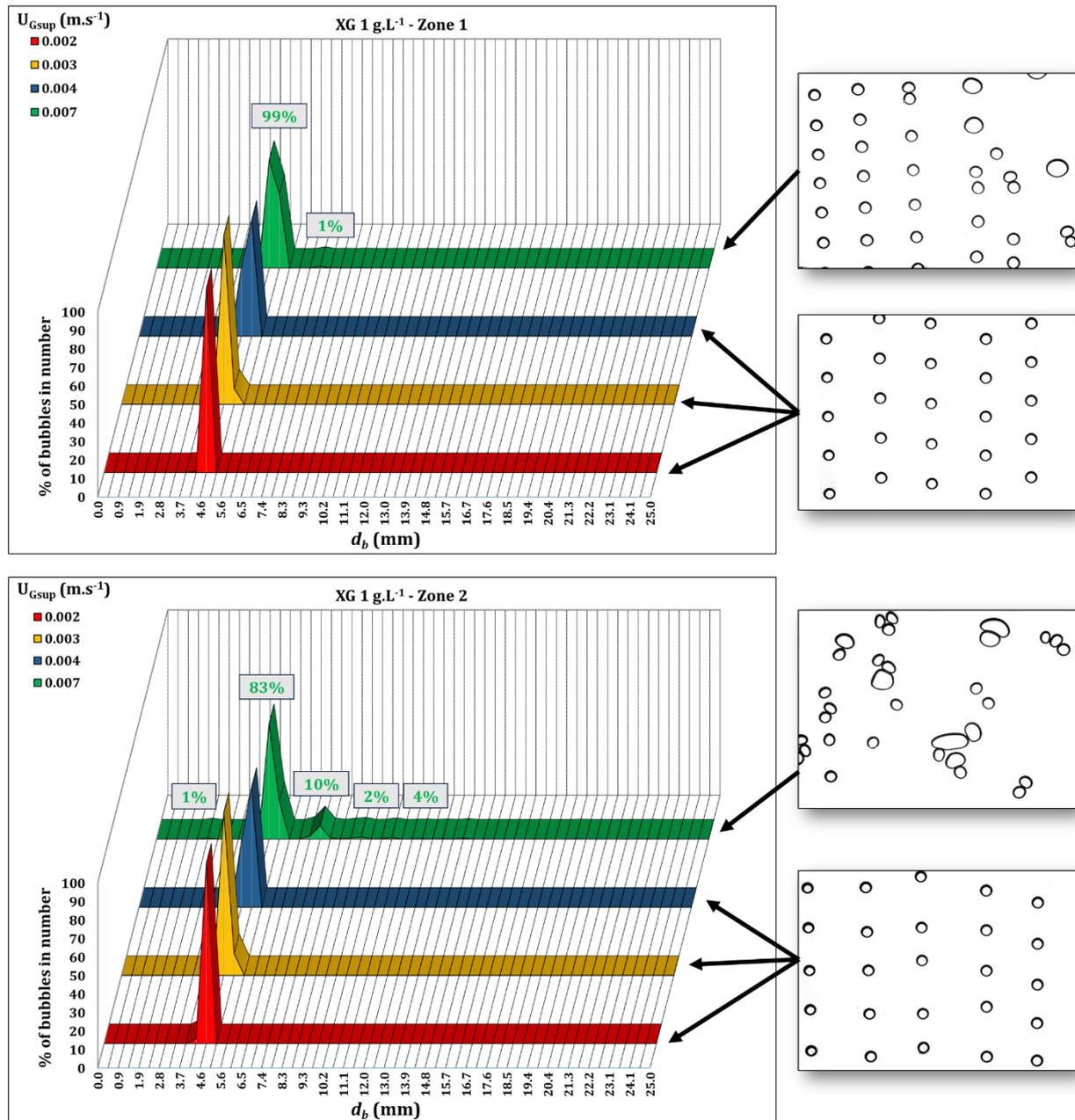


Figure IV. 5 : Bubble size distribution in number as a function of superficial gas velocity in an air - XG 1 g.L<sup>-1</sup> system and for two measurement zones

### 3. Identification of bubble classes by the velocity components ( $u$ and $v$ )

The different bubble classes can also be identified by plotting the horizontal ( $u$ ) and vertical velocity ( $v$ ) components along with the norm of velocity ( $U = \sqrt{u^2 + v^2}$ ) against their bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for each tested configuration (fluids, zones and  $U_{Gsup}$ ). Figures IV.6, IV.7, IV.8 and IV.9 present respectively the results obtained for tap water, glycerol solution at 50 wt% and XG at 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup> in the two studied zones. The orange data points in each graph represent the average velocity values for  $u$ ,  $v$ , or  $U$  of the respective bubble class.

Tap water, zone 1 (Figure IV.6a):

Regarding tap water, figure IV.6a shows that in zone 1 (situated at the lower part of the column) and at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$  corresponding to homogeneous I regime, two bubble classes can be identified: The first class is referred to bubbles generated by the distributor, characterized by an average equivalent diameter equal to 4.02 mm ( $d_0$ ) and a norm of velocity ( $U$ ) equal to  $0.11 \text{ m.s}^{-1}$ . The second class comprises the bubbles with  $d_b$  equal to 5.64 mm and  $U$  equal to  $0.13 \text{ m.s}^{-1}$ . Figure IV.6a illustrates that the smaller bubbles (first bubble class) undergo more fluctuations compared to the larger bubbles (bubble class resulting of coalescence). For instance, at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ , it is possible to observe that the initial class displays a wider range of horizontal velocity  $u$  ( $-0.15 < u < 0.15 \text{ m.s}^{-1}$ ) in contrast to the second class ( $-0.08 < u < 0.08 \text{ m.s}^{-1}$ ).

When  $U_{Gsup}$  is increased beyond  $0.002 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure IV.6a), additional bubble classes become observable due to the significance increase of the coalescence phenomenon in this fluid. This can be distinguished by the higher bubble norm velocity of coalesced bubbles compared to the bubbles at the injector ( $d_0$ ). For example, at  $U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}$  (homogeneous II regime), a total of four bubble classes becomes observable: the initial class ( $U = 0.125 \text{ m.s}^{-1}$ ) and three additional bubble classes formed through the coalescence of two bubbles ( $U = 0.146 \text{ m.s}^{-1}$ ), three bubbles ( $U = 0.153 \text{ m.s}^{-1}$ ) and four bubbles ( $U = 0.157 \text{ m.s}^{-1}$ ), respectively. This result is also seen in the bubble distribution histogram (Figure IV.1). Beyond this  $U_{Gsup}$ , the distinction between various bubble classes becomes challenging, as evidenced by the situation at  $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$  (beginning of transition regime) (Figure IV.6a).

Tap water, zone 2 (Figure IV.6b):

In zone 2 (located higher in the column), there is a presence of more bubble classes when compared to zone 1 presented in figure IV.6a: for instance, four bubble classes can be observed in zone 2 versus two bubble classes in zone 1 at  $U_{Gsup} = 0.002 \text{ m.s}^{-1}$ . The identification of these four bubble classes is associated with an increase in velocity ( $U$ ) that occurs when a new bubble class is formed due to bubble coalescence. Specifically, the first class exhibits a  $U$  value of  $0.12 \text{ m.s}^{-1}$ , while the three newly formed classes have  $U$  values of 0.14, 0.16, and  $0.18 \text{ m.s}^{-1}$ , respectively (Figure IV.6b). In addition, the bubble break-up phenomenon is also observed in this zone, especially from  $U_{Gsup} = 0.004 \text{ m.s}^{-1}$  with the appearance of small bubbles having an average diameters and velocity norm lower than those at the injection (Figure IV.6b).

Glycerol solution at 50 wt% (Figure IV.7 a and b)

Figure IV.7 shows that for all studied  $U_{Gsup}$  and in both zones, one bubble class can be observed. This outcome is as anticipated for this fluid, as the coalescence phenomenon is entirely absent at these  $U_{Gsup}$  (organized and homogeneous regimes) (see figure III.5b).

**Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide**

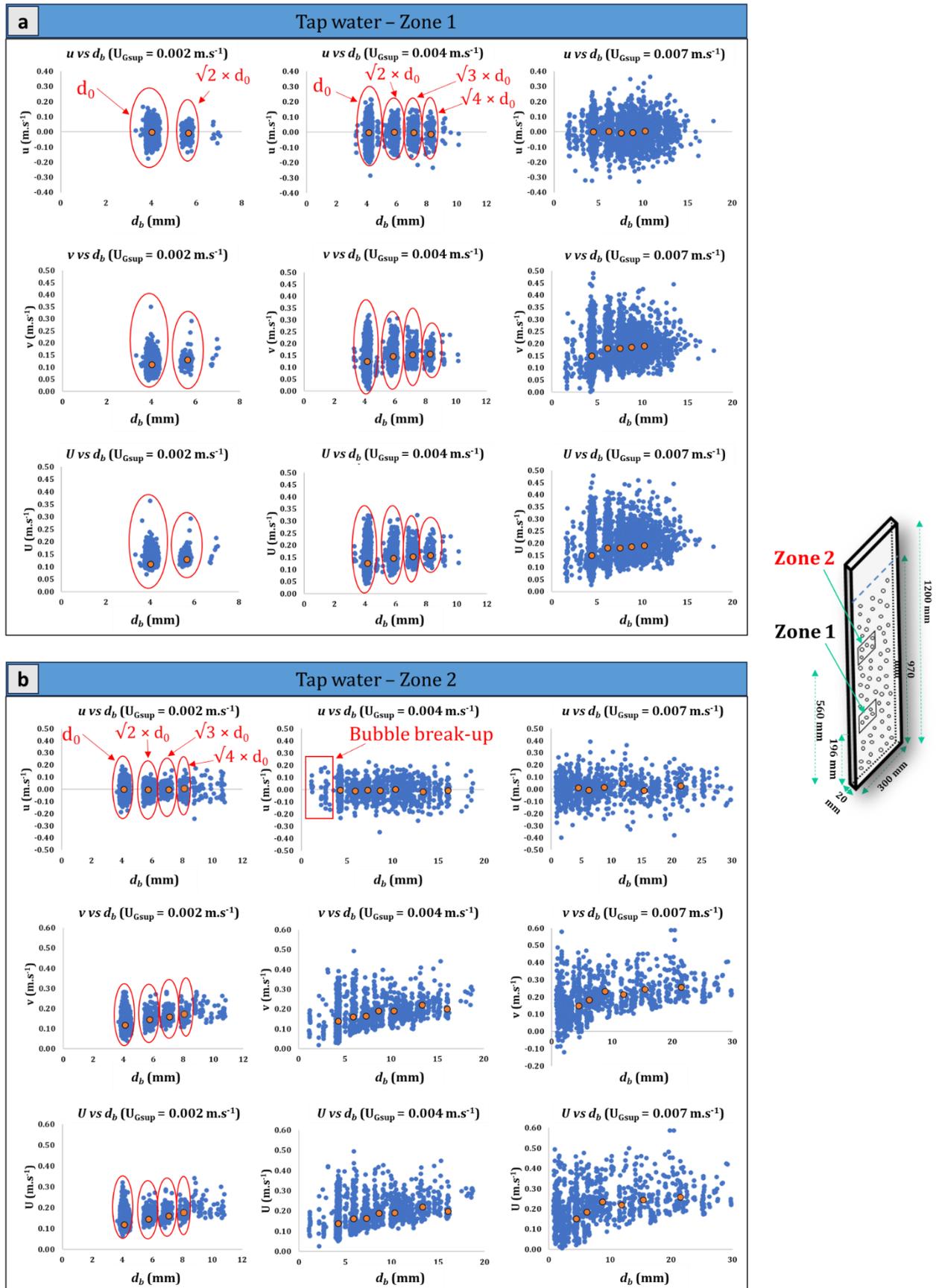


Figure IV. 6 : Horizontal ( $u$ ), vertical ( $v$ ) and the norm ( $U$ ) velocities components against the bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for tap water in zones 1 and 2

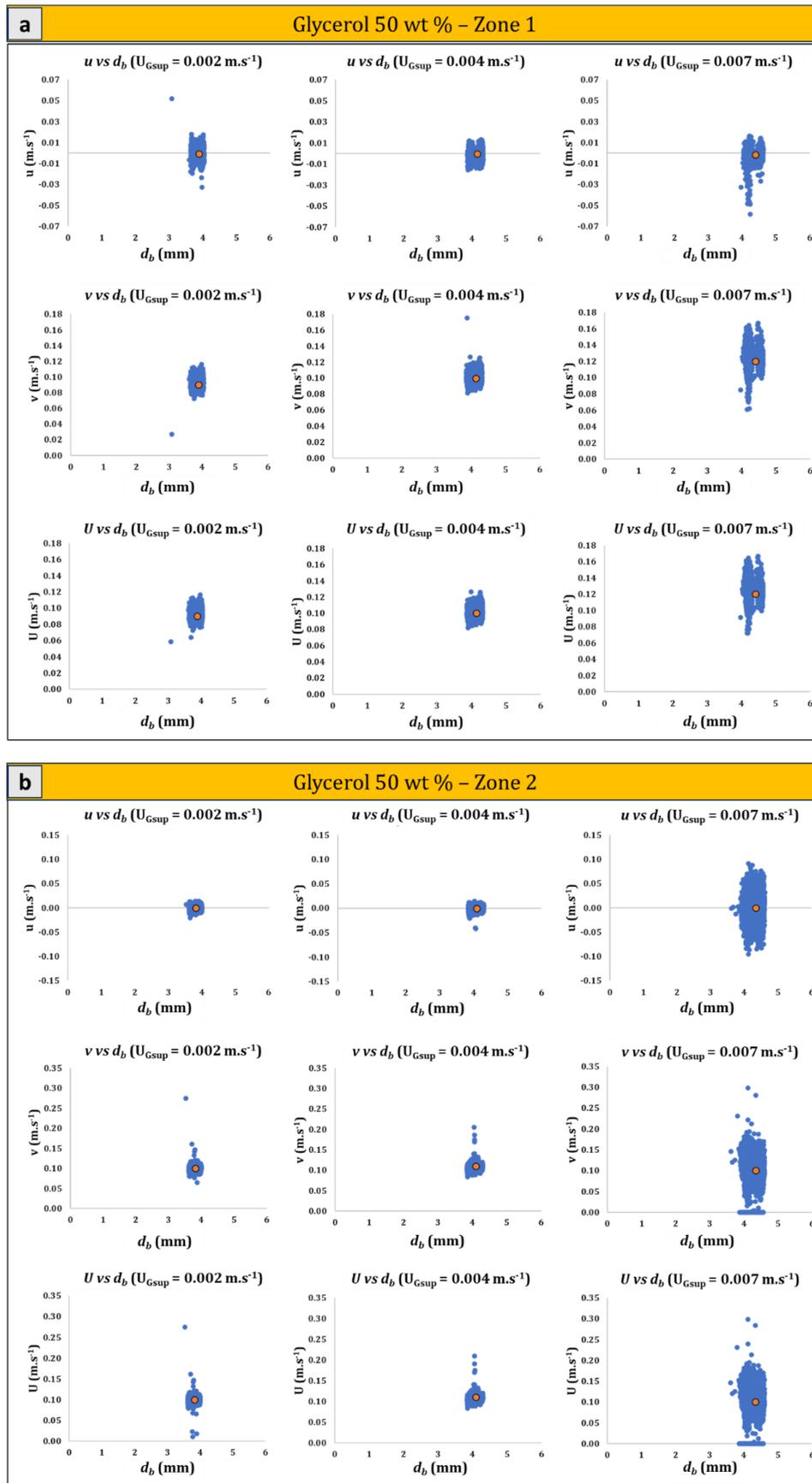


Figure IV. 7 : Horizontal ( $u$ ) and vertical velocity ( $v$ ) components with the velocity norm ( $U$ ) against their bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for glycerol 50 wt % in zones 1 and 2

XG at 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup>, zone 1 (Figures IV.8a and IV.9a):

Figures IV.8a and IV. 9a illustrate that within the organized regime (at  $U_{Gsup} < 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), only one bubble class is observed for the two XG solutions. This is evident for these fluids, since in the organized regime, the trajectory of bubbles remains entirely rectilinear without any interaction between them (see Table IV.1c and d). Increasing the  $U_{Gsup}$  beyond  $0.007 \text{ m.s}^{-1}$  (transition regime), the bubble distribution is still monomodal for XG at  $0.5 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure IV.8a). However, for XG at  $1 \text{ g.L}^{-1}$ , the coalescence phenomenon starts even in zone 1 located lower in the column (Figure IV.9a). This coalescence leads to the appearance of a second bubble class as seen in the figure IV.9a, in addition to the initial class ( $d_o = 5.28 \text{ mm}$ ;  $-0.07 < u < 0.08 \text{ m.s}^{-1}$  and  $U = 0.10 \text{ m.s}^{-1}$ ). This second class is characterized by:  $d_b = 7.5 \text{ mm}$  ( $\sqrt{2} d_o$ ),  $-0.03 < u < 0.04 \text{ m.s}^{-1}$  and  $U = 0.10 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure IV.9a). Therefore, similar to what was observed in the case of water (Figure IV.6), the small bubbles (initial bubble class) undergo more fluctuations (represented here by the horizontal velocity component  $u$ ) compared to the coalesced bubbles.

XG at 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup>, zone 2 (Figures IV.8b and IV.9b):

Similar to zone 1, during the organized regime ( $U_{Gsup} < 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), the population in zone 2 is also monomodal (perfectly vertical trajectory of the bubbles) and this for the two XG solutions (Figures IV.8b and IV.9b). In transition regime ( $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), the population appears to be predominantly trimodal for the two solutions (Figures IV.8b and 9b): for XG at  $0.5 \text{ g.L}^{-1}$ , no significant difference in the norm ( $U \approx 0.12 \text{ m.s}^{-1}$ ) and the horizontal ( $-0.01 < u < 0.01 \text{ m.s}^{-1}$ ) velocity between the various classes (Figure IV.8b). In the case of XG at  $1 \text{ g.L}^{-1}$ , the different bubble classes can be identified clearly by the increase of  $U$  when a new bubble class appears (Figure IV.9b). The bubble break-up phenomenon is also present in this zone for this latter fluid as showed in figure IV.9b. This phenomenon was not observed in the case of XG at  $0.5 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure IV.8).

**Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide**

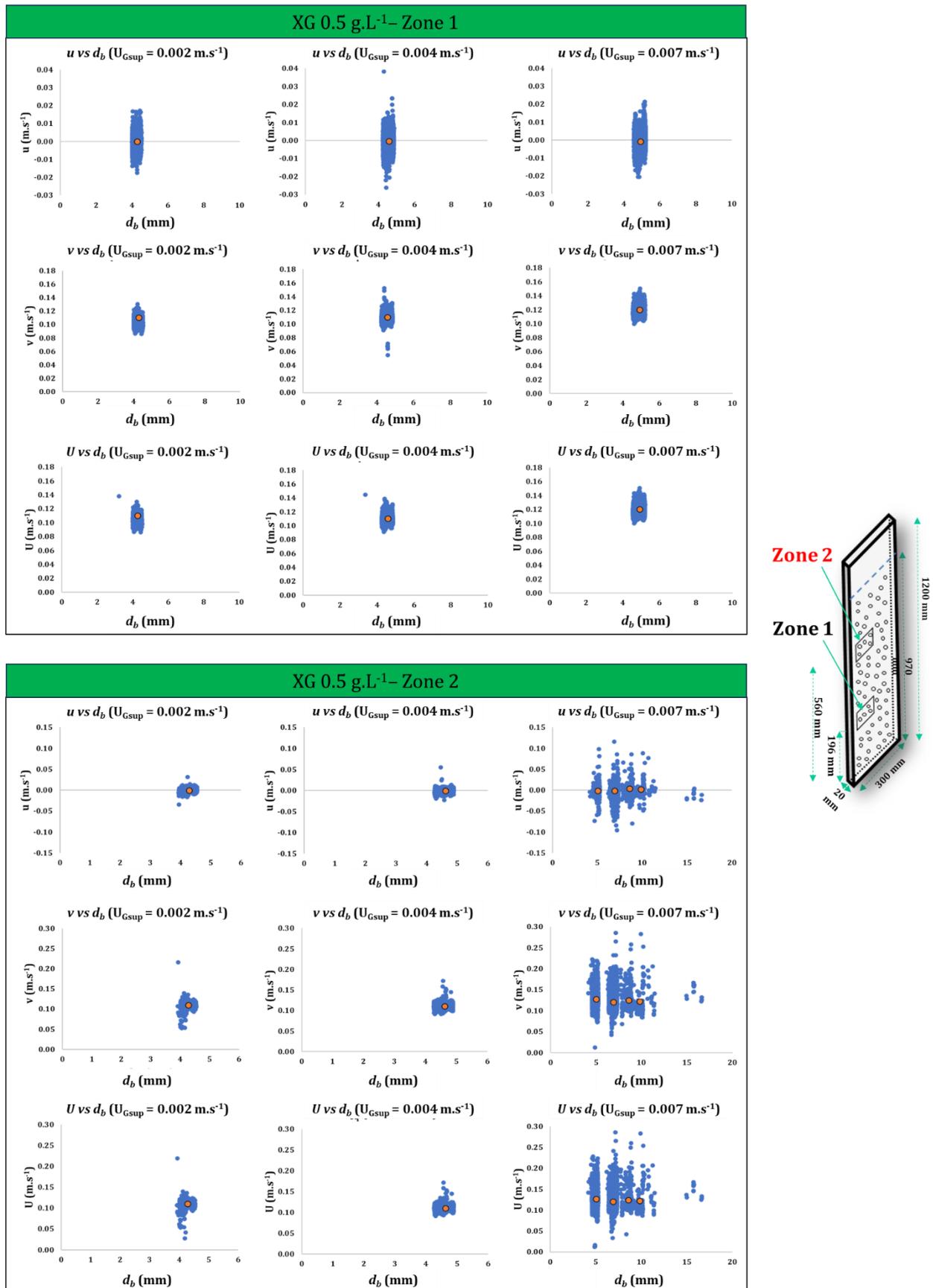


Figure IV. 8 : Horizontal ( $u$ ) and vertical velocity ( $v$ ) components with the velocity norm ( $U$ ) against their bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for XG at 0.5 g.L<sup>-1</sup> in zones 1 and 2

**Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide**

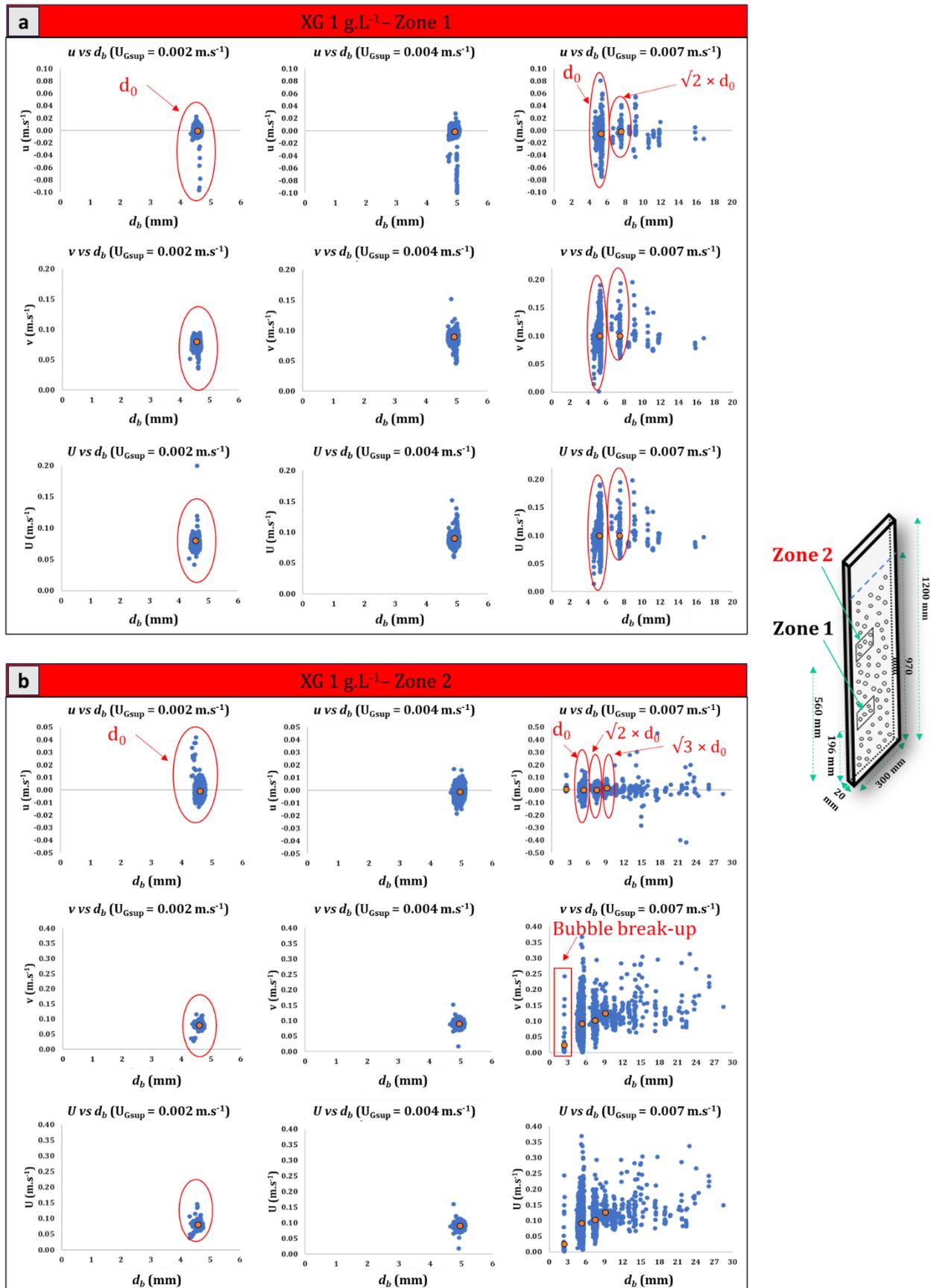


Figure IV. 9 : Horizontal ( $u$ ) and vertical velocity ( $v$ ) components with the velocity norm ( $U$ ) against their bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for XG solution at 1 g.L<sup>-1</sup> in zones 1 and 2

#### 4. Determination of the specific interfacial area ' $a$ '

The specific interfacial area ' $a$ ' is determined for the superficial gas velocities range from 0.002 to 0.007 m.s<sup>-1</sup> for the four solutions (Figure IV.10a) and in the two zones. The results show that the value of ' $a$ ' increases with the superficial gas velocity for all tested fluids. For water, the rate of increase is lower than for the other fluids due to significant bubble coalescence in that  $U_{Gsup}$  range, i.e., at low  $U_{Gsup}$ , as already shown in the bubble size distribution histogram in figure IV.1. For the viscous Newtonian and non-Newtonian fluids, the value of ' $a$ ' increases quickly by increasing the  $U_{Gsup}$ . For example, in zone 1, when  $U_{Gsup}$  increases from 0.002 to 0.007 m.s<sup>-1</sup>, the value of ' $a$ ' is multiplied by 2.5 or 3, depending on the fluid. In zone 2, it is multiplied by 2 for the two XG solutions and 3.5 for glycerol 50 wt % and this for the same  $U_{Gsup}$ .

For all fluids except for water, in the organized regime ( $U_{Gsup} < 0.007$  m.s<sup>-1</sup>), the value of ' $a$ ' is similar in zone 1 and zone 2. However, for water at these  $U_{Gsup}$ , the coalescence phenomenon is more pronounced in the top of column (see figure IV.1), consequently, ' $a$ ' is lower in zone 2 for this fluid. In the transition regime ( $U_{Gsup} = 0.007$  m.s<sup>-1</sup>), the value of ' $a$ ' for water is divided by two in zone 2, due to the high rate of bubbles coalescence. For glycerol, the homogeneous regime is very long (up to  $U_{Gsup} = 0.021$  m.s<sup>-1</sup>), therefore the value of ' $a$ ' is not decreased in zone 2 due the absence of bubble coalescence (Figure IV.10a).

For both XG solutions, at 0.007 m.s<sup>-1</sup>, the coalescence of bubbles is more pronounced at the top of the column (zone 2), then the value of ' $a$ ' becomes lower than that in zone 1 (Figure IV.10a), for instance: the value of ' $a$ ' is decreased from 113.8 to 78.5 m<sup>-1</sup> for XG at 0.5 g.L<sup>-1</sup> and from 136.8 to 102.2 m<sup>-1</sup> for XG at 1 g.L<sup>-1</sup> when passing from zone 1 to zone 2.

All this information is important because the average value of specific interfacial area ' $a$ ' in the two zones, that has been determined in this study (Figure IV.10b), can contribute to a more profound comprehension of its impact on the gas-liquid mass transfer coefficient  $k_{La}$ . Consequently, a better understanding of the respective impact of ' $k_L$ ' and ' $a$ ' on the  $k_{La}$  value is expected. This latter parameter will be discussed in the following section.

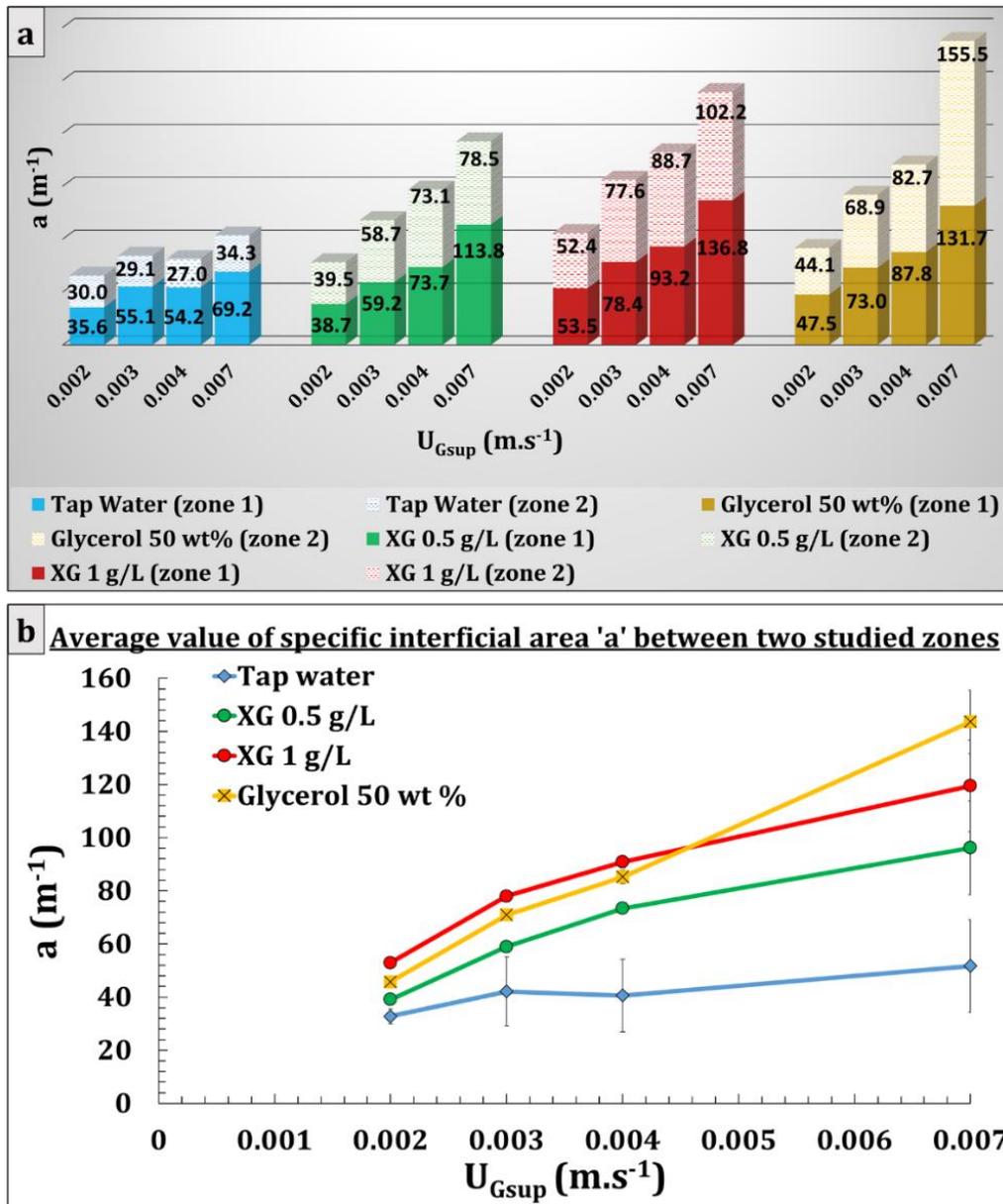


Figure IV. 10 : Specific interfacial area 'a' as a function of superficial gas velocity for the tested fluids: (a) in the two zones and (b) average value between the two zones (1 and 2)

## PART B: Determination of gas-liquid mass transfer coefficient $k_{LA}$

### 1. Determination of $k_{LA}$ according to the perfect mixing model

Concerning the determination of the gas-liquid transfer coefficient ( $k_{LA}$ ), first of all the hypothesis of the perfect mixing was considered. However, the comparison between the mixing time obtained by local injection and the characteristic time for gas-liquid mass transfer ( $1/k_{LA}$ ) shows that this perfect mixing hypothesis is not valid (Table IV.2). In fact, as we can see in the table IV.2, the mixing time obtained by the local injection method is from 2 to 6 times lower

***Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide***

than  $1/k_{LA}$  for water (depending on the  $U_{Gsup}$ ) and greater than  $1/k_{LA}$  for solutions of XG at 0.5 and  $1 \text{ g.L}^{-1}$  and glycerol at 50 wt%, especially at low superficial gas velocities. For the whole range of  $U_{Gsup}$  with all the tested fluids, the ratio  $(1/k_{LA})/t_m$  is not greater than 10, which corresponds to the limit recommended in the literature to validate the hypothesis of perfect mixing condition (Almani, 2021), therefore the perfectly mixed reactor hypothesis is not valid in this study. This finding is also observed by Almani (2021) in a thin-gap bubble column of 4 mm thickness.

Table IV. 2 : Comparison of the mixing time ( $t_m$ ) with the characteristic time of gas-liquid mass transfer ( $1/k_{LA}$ ) for all tested solutions

Tap water				Glycerol 50 wt%			
$U_{Gsup} \text{ [m.s}^{-1}\text{]}$	$t_m \text{ [min]}$	$1/k_{LA} \text{ [min]}$	$(1/k_{LA})/t_m$	$U_{Gsup} \text{ [m.s}^{-1}\text{]}$	$t_m \text{ [min]}$	$1/k_{LA} \text{ [min]}$	$(1/k_{LA})/t_m$
0.002	8.67	13.07	<b>1.51</b>	0.002	408.33	16.26	<b>0.04</b>
0.004	2.27	6.47	<b>2.86</b>	0.004	202.08	9.26	<b>0.05</b>
0.007	0.68	4.25	<b>6.21</b>	0.007	24.17	6.12	<b>0.25</b>
0.012	0.56	2.68	<b>4.77</b>	0.012	9.58	3.16	<b>0.33</b>
0.016	0.41	2.12	<b>5.20</b>	0.016	8.14	2.53	<b>0.31</b>
0.020	0.39	1.75	<b>4.46</b>	0.020	7.63	2.16	<b>0.28</b>
0.025	0.27	1.50	<b>5.63</b>	0.025	4.78	1.84	<b>0.38</b>
0.030	0.23	1.27	<b>5.42</b>	0.030	3.42	1.56	<b>0.46</b>
0.040	0.22	0.96	<b>4.37</b>	0.040	2.36	1.41	<b>0.60</b>
XG 0.5 g.L <sup>-1</sup>				XG 1 g.L <sup>-1</sup>			
$U_{Gsup} \text{ [m.s}^{-1}\text{]}$	$t_m \text{ [min]}$	$1/k_{LA} \text{ [min]}$	$(1/k_{LA})/t_m$	$U_{Gsup} \text{ [m.s}^{-1}\text{]}$	$t_m \text{ [min]}$	$1/k_{LA} \text{ [min]}$	$(1/k_{LA})/t_m$
0.002	225.00	13.89	<b>0.06</b>	0.002	750.00	13.89	<b>0.02</b>
0.004	85.00	7.66	<b>0.09</b>	0.004	658.33	7.37	<b>0.01</b>
0.007	5.21	4.50	<b>0.86</b>	0.007	91.67	4.59	<b>0.05</b>
0.012	1.66	2.77	<b>1.67</b>	0.012	4.08	2.90	<b>0.71</b>
0.016	1.03	2.28	<b>2.21</b>	0.016	1.93	2.44	<b>1.27</b>
0.020	0.71	1.93	<b>2.72</b>	0.020	1.84	2.07	<b>1.12</b>
0.025	0.63	1.67	<b>2.67</b>	0.025	1.69	1.80	<b>1.07</b>
0.030	0.43	1.45	<b>3.41</b>	0.030	1.11	1.52	<b>1.38</b>
0.040	0.46	1.15	<b>2.51</b>	0.040	0.79	1.22	<b>1.55</b>

2. Determination of  $k_{LA}$  according to axial dispersion model

As the determination of  $k_{LA}$  is derived from deoxygenation-reoxygenation experiments involving gas sparging across the entire bottom surface of the reactor, radial gradients of  $O_2$  are absent in this experiment, and only an imperfect axial mixing needs to be considered.

Consequently, we opted to analyze the  $k_{LA}$  deoxygenation-reoxygenation experiments using the axial dispersion model (ADM) for the liquid phase.

2.1. *Estimation of axial dispersion coefficients ( $D_{ax}$ ) and gas-liquid mass transfer coefficient  $k_{LA}$*

Based on the above details, two Scilab programs are developed to estimate the axial dispersion coefficient ( $D_{ax}$ ) and the volumetric gas-liquid mass transfer coefficient  $k_{LA}$  respectively. The initial program utilizes data from experimental mixing times obtained through "width injection" (tracer concentration versus time) and gas holdup value to estimate the  $D_{ax}$  value. The axial dispersion coefficients ( $D_{ax}$ ) results are illustrated for all fluids in table IV.3.

Table IV. 3 :  $D_{ax}$  estimation for the four tested fluids

$U_{Gsup}$ [ $m.s^{-1}$ ]	$D_{ax}$ [ $m^2.s^{-1}$ ]			
	Tap water	Glycerol 50 wt %	XG 0.5 g.L <sup>-1</sup>	XG 1 g.L <sup>-1</sup>
0.002	5.00E-04	3.00E-06	1.00E-05	2.00E-06
0.004	2.00E-03	5.00E-06	2.00E-05	6.00E-06
0.007	2.00E-03	3.00E-04	1.00E-04	3.00E-05
0.012	2.00E-03	4.00E-04	5.00E-04	2.00E-04
0.016	2.00E-03	6.00E-04	6.00E-04	4.00E-04
0.020	2.00E-03	7.50E-04	7.00E-04	1.00E-03
0.025	5.00E-03	8.50E-04	1.00E-03	1.00E-03
0.030	5.00E-03	1.00E-03	2.00E-03	4.00E-03
0.040	5.00E-03	1.00E-03	8.00E-03	5.00E-03

These determined  $D_{ax}$  values are subsequently used along with the experimental reoxygenation data (dissolved O<sub>2</sub> concentration versus time) and gas holdup values within the second Scilab program to calculate the overall gas-liquid mass transfer coefficient,  $k_{LA}$ .

The  $k_{LA}$  values obtained by axial dispersion model for the liquid phase in this confined column are compared with the  $k_{LA}$  values obtained in literature to investigate the effect of confinement on  $k_{LA}$ . Besides that, the effect of the rheological properties of the liquid phase on  $k_{LA}$  are also highlighted using  $k_{LA}$  values obtained by ADM model.

2.2. *Effect of the rheological properties of the liquid phase on  $k_{LA}$*

The  $k_{LA}$  experiments were performed for the four fluids (Figure IV.11). For a given liquid phase, the  $k_{LA}$  increases with the increase in the superficial gas velocity and for the same  $U_{Gsup}$ , this parameter decreases with the increase in the liquid viscosity. At low superficial gas velocities ( $U_{Gsup} < 0.004 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ), the increase in the viscosity for Newtonian and non-Newtonian liquids has a little influence on the  $k_{LA}$ . This result can be attributed to the compensatory effect between ' $k_L$ ' and ' $a$ '. In fact, referring to the specific interfacial area ' $a$ ' result in figure IV.10b, it is possible to see that despite that water having a lower average value of ' $a$ ' between the two zones compared to viscous fluids (XG and glycerol solutions), the  $k_{LA}$  of water remains slightly higher as showing in figure IV.11. This suggests that the transfer coefficient in the liquid phase ' $k_L$ ' might be greater in water than in viscous fluids. This result can be explained by the dynamics of bubbles rising in the column, where the agitation is more important in water in comparison to the viscous fluids; for this reason, the ' $k_L$ ' is higher in water in comparison with the other tested fluids, resulting in a higher value of  $k_{LA}$  for water.

Contrary to the case of water, for glycerol and both XG solutions, the ' $k_L$ ' could be low, since according to Higbie (1935) ( $k_L = 2 \times \sqrt{\frac{D_L}{\pi t_{exp}}}$ ), the high viscosity of the liquid phase can make the bubble residence time larger. Consequently, this longer residence time may contribute to the decrease of ' $k_L$ ' in these fluids. Besides the effect of viscosity, the alcohol functions in the glycerol molecule can limit the gas exchanges between the bubbles and the liquid phase, since the diffusivity of oxygen across the interface is reduced compared to aqueous solutions. In fact, the presence of alcohol has a two-fold effect on  $k_{LA}$ : the presence of alcohol tends to increase ' $a$ ' due to a decrease in bubble diameter and increase of the gas holdup. At the same time, molecules of alcohol tend to adsorb and accumulate around the gas bubble forming a rigid layer leading to a decrease of ' $k_L$ ' (Kojic et al., 2016). For instance, the diffusion coefficient of oxygen ' $D_L$ ' in glycerol solution is two times lower than that in water or XG solutions ( $D_L$  in a mixture of 50% eau + glycerol 30% + 20% ethanol equal to  $0.95 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ , versus  $2.14 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  in XG solution at  $2.5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  or  $2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  in XG solution at  $0.2 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  and  $1.98 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  in water) (Jimenez et al., 2013). Therefore, despite the consistently higher ' $a$ ' value in the glycerol solution compared to the other fluids (see figure IV.10b), the  $k_{LA}$  value of glycerol remains lower. This is particularly evident at low  $U_{Gsup}$  as illustrated in the figure IV.11.

In transition and heterogeneous regimes, water maintains a higher  $k_{LA}$  across all flowrates in comparison with viscous fluids (Figure IV.11). Indeed, in these conditions of elevated  $U_{Gsup}$ , determining the 'a' value was not possible due to the bubble diameter surpassing the studied zone. Nevertheless, at these  $U_{Gsup}$ , the higher tendency of coalescence in viscous fluids in comparison to water (see Chapter III), results in an increase in the large bubbles volume. Consequently, this can lead to a much lower 'a' in viscous fluids compared to water. Also, the ' $k_L$ ' of viscous fluids (XG and glycerol solutions) is expected to be lower than that observed in water, a phenomenon attributed to the influence of viscosity on the agitation process. These combining effects of reduced ' $k_L$ ' and 'a' in viscous fluids, can explain why the  $k_{LA}$  is lower in viscous fluids in comparison to water, particularly at high  $U_{Gsup}$  (Figure IV.11).

The findings mentioned above hold significant relevance for microalgae culture, particularly in an intensified PBRs. In fact, as the biomass concentration rises, the culture viscosity in the reactor is expected to increase. However, these results indicate that the increase in viscosity does not affect  $k_{LA}$ , especially at low flowrates, which are typical operating conditions for PBRs.

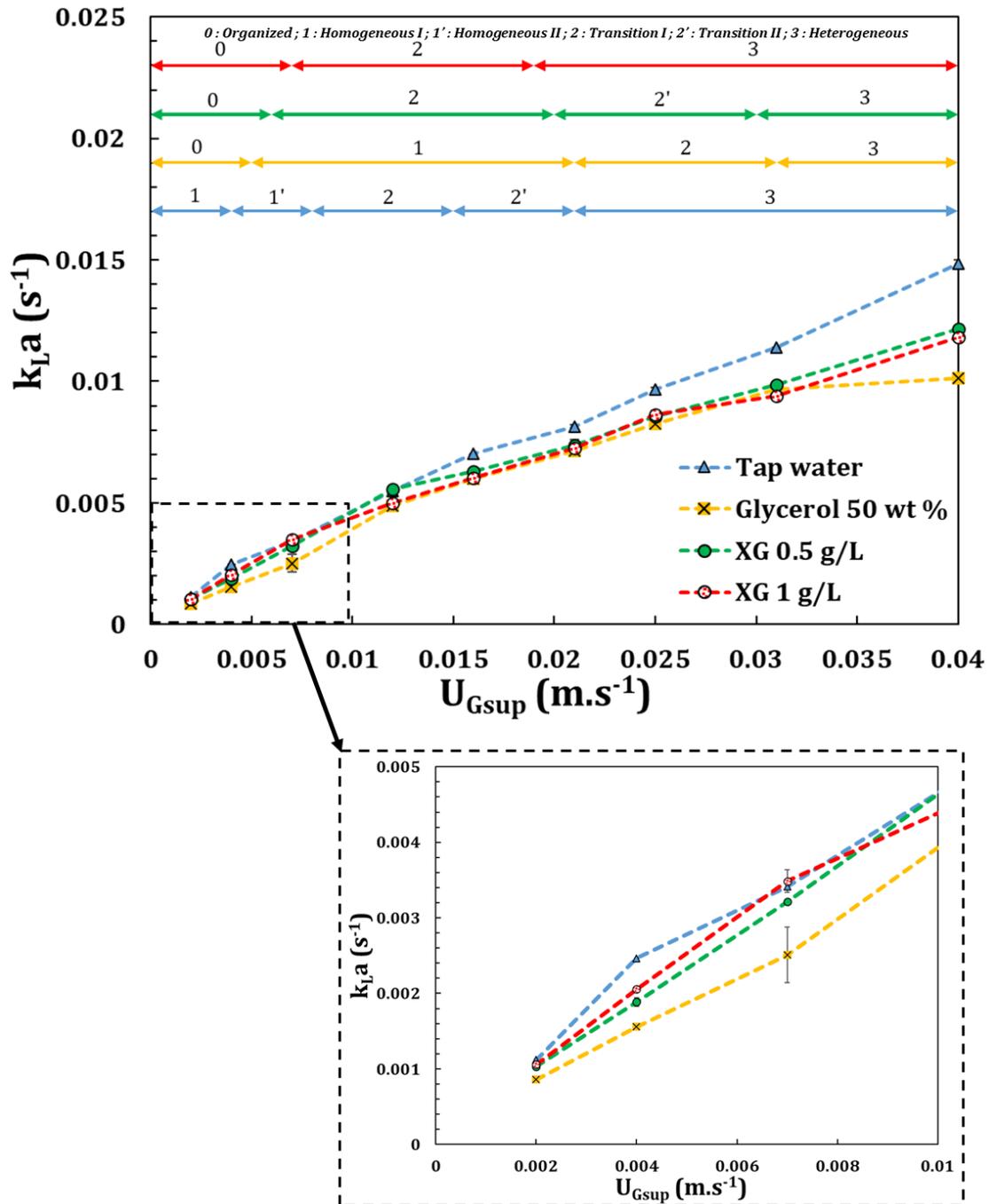


Figure IV. 11 : Evolution of the global gas-liquid mass transfer coefficient,  $k_{L,a}$ , with the superficial gas velocity for the four liquid phases

### 2.3. Effect of the confinement on $k_{L,a}$

To highlight the effect of confinement on the  $k_{L,a}$ , the results obtained in the thin-gap column (2 mm) are compared with those of classical and confined columns with low confinement ratio ' $d_b/e$ ' < 1. Figure IV.12a compares the  $k_{L,a}$  values observed for water in the confined column with the results of Deckwer et al. (1974), Gourich et al. (2008), Han and Al-Dahhan (2007)

and Koide et al. (1983) for classical columns and with the results of Almani (2021) in confined column of 4 mm gap with ' $d_b/e$ ' < 1. Figure IV.12b compares the  $k_L a$  values of glycerol solution with the  $k_L a$  values for the classical column used by Koide et al. (1983) and for the confined column of 4 mm gap with ' $d_b/e$ ' < 1 used by Thobie et al. (2017) for 50 wt% glycerol solution. Concerning XG, the  $k_L a$  values of the two concentrations of XG (0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup>) are compared to those obtained by Almani (2021) for confined bubble column using XG 1 g.L<sup>-1</sup> (Figure IV.12c). Table IV.4 summarizes the different studies used in this comparison.

These figures show that under confined conditions (this study), the  $k_L a$  values are lower than in conventional bubble columns, for water (Figure IV.12a) and non-Newtonian fluids (XG solutions) (Figure IV.12c) and this parameter decreases with the increase of the degree of confinement ' $d_b/e$ '. For glycerol solution (Figure IV.12b), different conclusion was observed and will be discussed later in the study.

For water and the two XG solutions (Figure IV.12a and IV.12c), at low  $U_{Gsup}$  (homogeneous regime for water and organized regime for XG solutions), the specific interfacial area ' $a$ ' ( $a = S_{bubble}/V_L$ ) could be greater in this study in comparison to the classical and confined conditions with ' $d_b/e$ ' < 1. This can be explained by the fact that at a given bubble volume, the  $S_{bubble}/V_L$  ratio can be greater for a flattened bubble (this study) than that for a spherical bubble (classical and confined column 4 mm gap with ' $d_b/e$ ' < 1). Furthermore, the greater ' $a$ ' in this study could be also explained by the higher gas holdup observed in this thin-gap column and which increases with the degree of confinement (see Chapter III, Figure III.4). Despite the expected higher ' $a$ ' in this study, the  $k_L a$  is always lower, indicating that the ' $k_L$ ' seems to be lower under confined conditions. The lower ' $k_L$ ' in this study can be explained by the reduction of agitation around the bubble with confinement i.e., the vortices generated in the wake of the bubbles exhibit 2D motion, since bubbles can only move in a plane and not in 3D (Ruiz-Rus et al., 2022). For these reasons, the  $k_L a$  could be lower in this study at low  $U_{Gsup}$  for water and XG solutions in comparison with literature studies (Figure IV.12a and IV.12c).

In transition and heterogeneous regimes, for water (Figure IV.12a), the  $k_L a$  value consistently remains lower in confined conditions compared to the results of other studies conducted at similar  $U_{Gsup}$ . This lower  $k_L a$  for water at high  $U_{Gsup}$  can also be explained by the lower ' $k_L$ ' under confined conditions. It is important to note that a direct comparison of the ' $a$ ' value with literature results could be challenging due to the earlier transition between the regimes observed in this study (as discussed in section 3.2.2 in chapter III). For XG solutions

(Figure IV.12c), the  $k_{LA}$  curve exhibits a linear increase with increasing  $U_{Gsup}$  during the transition and heterogeneous regimes ( $U_{Gsup} > 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ), contrary to the study of Almani (2021) where the  $k_{LA}$  curve displayed a slower increase, particularly during the heterogeneous regime ( $U_{Gsup} \approx 0.030 \text{ m.s}^{-1}$ ). In fact, by increasing the  $U_{Gsup}$ , it was observed in this study (see section 3.2.2 in chapter III) that the transitions between the regimes occur at the same  $U_{Gsup}$  as observed by Almani (2021) for XG solutions. Consequently, when  $U_{Gsup}$  increases, the 'a' value is expected to decrease (due to bubble coalescence) but less quickly for the flattened bubble (this study) compared to the spherical bubble (column of 4 mm gap) i.e., by increasing the  $U_{Gsup}$ , the bubble area ( $S_{bubble}$ ) is expected to maintain longer in confined column in comparison with the confined one but with lower degree of confinement. Therefore,  $k_{LA}$  for XG solutions continues to increase in heterogeneous regime in this study as shown in the figure IV.12c.

In the case of the 50 wt% glycerol solution (Figure IV.12b), the  $k_{LA}$  values observed in this study are similar to those reported by Thobie et al. (2017) at low  $U_{Gsup}$  ( $< 0.005 \text{ m.s}^{-1}$ ). This similarity can be explained by the compensate effect between the two parameters 'k<sub>L</sub>' and 'a': in comparison with Thobie et al. (2017), 'k<sub>L</sub>' can be lower in this study due to higher degree of confinement but in the same time, 'a' is expected to be higher in this study due to the use of 15 injection capillaries (versus 8 capillaries used in the study of Thobie et al. (2017)). For this reason, the two  $k_{LA}$  curves (blue and yellow curves) superimposed at low  $U_{Gsup}$  (Figure IV.12b). By increasing the  $U_{Gsup}$  ( $> 0.005 \text{ m.s}^{-1}$ ), the coalescence starts earlier in the study of Thobie et al. (2017), due to the interactions between bubbles which are more pronounced with 8 capillaries, whereas in our study where 15 capillaries are used, the bubble coalescence phenomenon starts later at  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m.s}^{-1}$ . Consequently, our study consistently maintains higher 'a' value when the  $U_{Gsup}$  increases, increasing then the  $k_{LA}$  values in this study than that obtained by Thobie et al. (2017) and this in transition and heterogeneous regimes as shown in figure IV.12b.

Furthermore, in comparison with the classical column (Koide et al., 1983), the  $k_{LA}$  values for glycerol is similar in organized and homogeneous regimes (until  $U_{Gsup} = 0.021 \text{ m.s}^{-1}$ ), after that, the bubble coalescence starts in our case, so the 'a' is expected to reduce. Thus, the  $k_{LA}$  curve increases slowly in the heterogeneous regime ( $U_{Gsup} > 0.021 \text{ m.s}^{-1}$ ). For Koide et al. (1983), at the same flowrate, they are still in the homogeneous regime.

#### ***Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide***

---

In conclusion, the characterization of gas-liquid mass transfer in a confined column by measuring the overall mass transfer coefficient,  $k_{LA}$ , revealed a decrease in transfer performance compared to conventional columns. This result is inconsistent with the observations made by Roudet et al. (2017), who characterized gas-liquid transfer locally using the PLIF method. The separation of the  $k_{LA}$  coefficient into its components, ' $k_L$ ' and ' $a$ ', offers a potential explanation for this disparity. It suggests that confined conditions may result in a lower ' $k_L$ ' coefficient due to the 2D activity of vortices in the wake of the bubbles. Consequently, although Roudet et al. (2017) have demonstrated the significance of local transfer within the liquid film between the wall and the bubble, the overall impact on the reactor appears less significant. Hence, the overall  $k_{LA}$  coefficient is low, primarily because of the limited agitation induced by the bubbles in confined column.

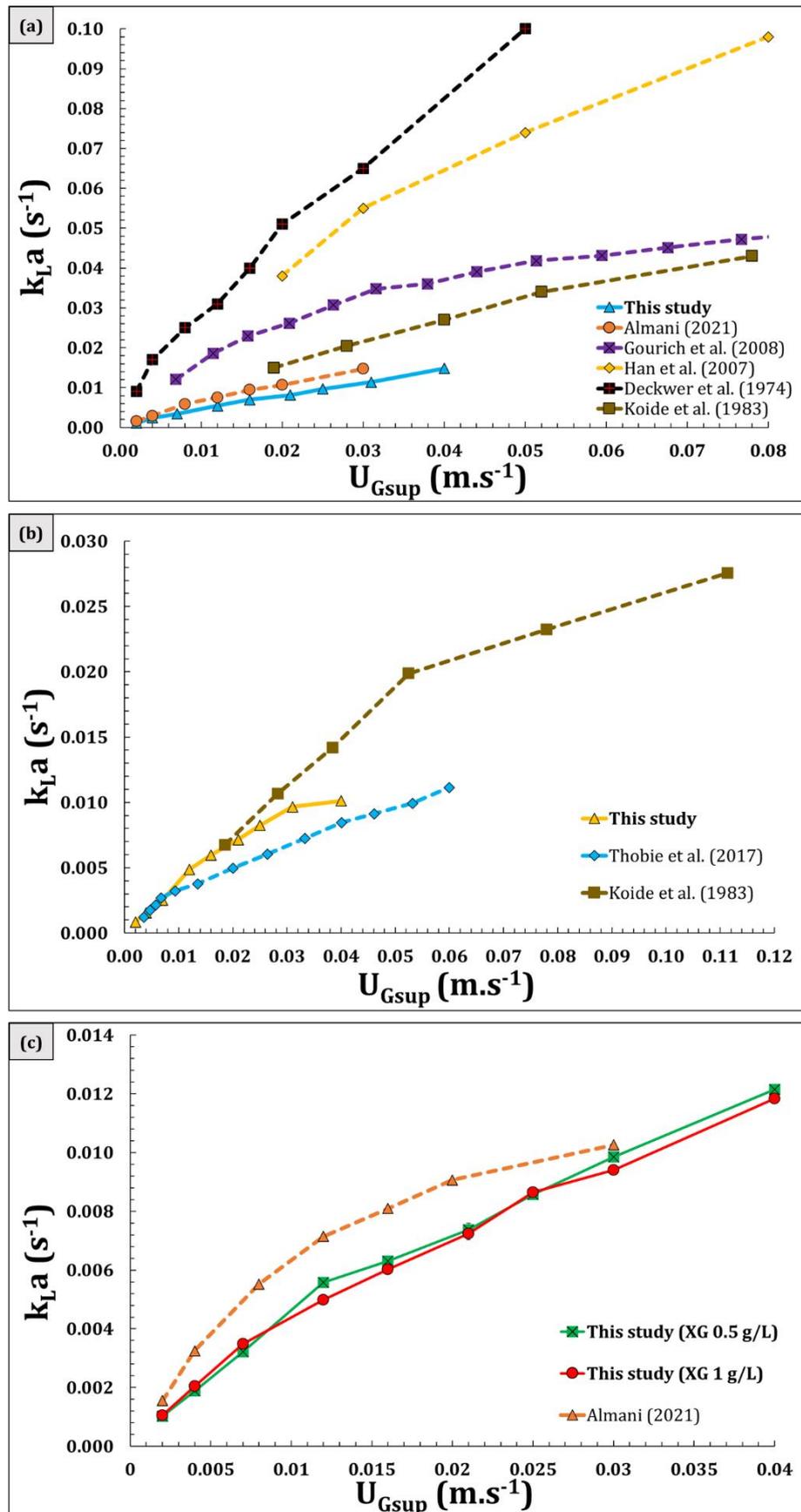


Figure IV. 12 : Comparison between  $k_La$  values in this thin-gap bubble column with literature for: (a): Water, (b): 50 wt % aqueous glycerol solution and (c): XG at 0.5 and 1 g.L<sup>-1</sup>

## ***Chapitre IV : Caractérisation de l'hydrodynamique locale au sein d'un essaim de bulles et détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide***

Table IV. 4 : Studies used to compare the gas-liquid mass transfer coefficient results obtained in this study with literature

Reference	Fluid	Bubble column	$L_c$ [m]	$H_L$ [m]	$e$ [mm]	Gas injection system
This study	Tap water (Fig. IV.9a) and XG 0.5 and 1 g.L <sup>-1</sup> (Fig. IV.9c)	parallelepipedic	0.3	0.97	2	capillaries 15*1.016 mm
Almani (2021)	Tap water (Fig. IV.9a) and XG 1 g.L <sup>-1</sup> (Fig. IV.9c)	parallelepipedic	0.3	0.95	4	capillaries 15*1.016 mm
Gourich et al. (2008)	Tap water (Fig. IV.9a)	cylindrical	0.1	3	-	perforated plate (76*0.5 mm)
Han et al. (2007)	Tap water (Fig. IV.9a)	parallelepipedic	0.16	1.8	-	capillaries 163*0.5 mm
Deckwer et al. (1974)	Tap water (Fig. IV.9a)	cylindrical	0.15	4.4	-	porous plate ( $d_p = 0.15$ mm)
Koide et al. (1983)	Tap water (Fig. IV.9a) and Glycerol 50 wt % (Fig. IV.9b)	cylindrical	0.14	1.54	-	multi-nozzles (12*2 mm)
Thobie et al. (2017)	Glycerol 50 wt % (Fig. IV.9b)	parallelepipedic	0.3	0.95	4	capillaries 8*0.508 mm

$L_c$ : column width;  $H_L$ : column height;  $e$ : column gap

### Conclusion and perspectives

In this study, the local hydrodynamics (gas phase) as well as the gas-liquid mass transfer in a 2 mm-gap bubble column are investigated, under different gas flow rates, for Newtonian and non-Newtonian liquid phases. First, the gaseous phase (bubble) is characterized by shadowgraphy method in order to determine the size and velocity of bubbles swarm rising in this column and this for two spaced zones on the reactor in order to identify the change of bubbles shape and size during ascension. A statistical analysis is conducted to identify different bubble size classes (bubbles formed at the distributor with an average diameter ' $d_0$ ', those resulting from the coalescence of multiple bubbles, and those caused by the bubble break-up phenomenon) in the two measurement zones and at various superficial gas velocities. This experiment showed that the bubble population is mostly monomodal (one bubble class) at the lowest  $U_{Gsup}$  (0.002 m.s<sup>-1</sup>) correspond to homogeneous regime for water and organized regime for viscous and non-Newtonian fluids and thus for the two measurement zones. By increasing the  $U_{Gsup}$ , it was possible to observe the appearance of new bubble classes resulting from the coalescence of two or more bubbles. These bubbles have a diameter equal to ( $\sqrt{2} d_0$ ), if the

coalescence is resulting from two bubbles and so on. The different bubble classes are also identified by plotting the bubble velocity components along with the norm of velocity ( $U = \sqrt{u^2 + v^2}$ ) against their bubble equivalent diameters ( $d_b$ ) for each tested configuration. Using this method, it was possible to identify the new bubble class resulting from the coalescence. This class is distinguished by its elevated velocity norm compared to the initial bubble class at the injector.

Additionally, using the bubble diameter data, the specific interfacial area ' $a$ ' is calculated as the ratio between the sum of the bubble areas and the volume of the liquid phase. The ' $a$ ' is determined for the superficial gas velocities corresponding to the homogeneous and the beginning of transition regimes. The results showed that for water, the value of ' $a$ ' is lower than for the viscous fluids due to significant bubble coalescence at low  $U_{Gsup}$ . For the viscous Newtonian and non-Newtonian fluids, the value of ' $a$ ' is increased quickly by increasing the  $U_{Gsup}$ . This information is important since the determination of the specific interfacial area ' $a$ ' allowed for better understanding its influence on the value of gas-liquid mass transfer coefficient  $k_{LA}$  and thereby enhancing our comprehension of the individual contributions of ' $k_L$ ' and ' $a$ ' to the  $k_{LA}$  value.

Concerning the gas-liquid mass transfer coefficient ( $k_{LA}$ ) experiments, the comparison between the mixing time obtained by local injection in chapter III and the characteristic time for gas-liquid mass transfer ( $1/k_{LA}$ ) showed that the perfect mixing hypothesis was not valid. Consequently, we analyzed the  $k_{LA}$  deoxygenation-reoxygenation experiments using the axial dispersion model (ADM) for the liquid phase, assuming uniform composition for the gaseous phase for the determination of gas-liquid mass transfer. The results showed that the increase in the viscosity for Newtonian and non-Newtonian liquids has a little influence on the  $k_{LA}$ , especially at low superficial gas velocities. This result is attributed to the compensatory effect between ' $k_L$ ' and ' $a$ '. This is important for microalgae culture, particularly in an intensified PBRs, since these results suggest that an increase in culture viscosity, does not impact  $k_{LA}$ , particularly under low flowrate conditions commonly encountered in PBR operation.

In the same time, the  $k_{LA}$  values are compared with literature to study the effect of confinement conditions on this parameter. The findings consistently demonstrated that the gas-liquid mass transfer is less efficient in a confined column compared to a conventional one and it decreased with the degree of confinement (lower  $k_{LA}$  than the column of 4 mm gap). This observation is attributed to the lower ' $k_L$ ' caused by reduced agitation under confinement

condition. As a result, the inadequate gas-liquid transfer observed in this reactor in particular at low  $U_{Gsup}$ , may have unfavorable implications that could affect the growth of the culture, especially in the presence of microalgae at higher concentrations.

Indeed, in the previous chapter, we observed that mixing is very poor at low  $U_{Gsup}$ , especially in the case of viscous fluids, and we concluded that using the beginning of transition regime ( $U_{Gsup} = 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ) appears to be a possible way to improve mixing within the PBR at high biomass concentrations. This approach also holds potential for enhancing gas-liquid mass transfer in this PBR. By employing this  $U_{Gsup}$ , it is possible to achieve a threefold improvement in  $k_{LA}$  for all fluids ( $k_{LA}$  increases from 0.001 to 0.003  $\text{s}^{-1}$ , as  $U_{Gsup}$  rises from 0.002 to 0.007  $\text{m.s}^{-1}$ ). The choice of this specific  $U_{Gsup}$  is also supported by the fact that higher  $U_{Gsup}$  ( $> 0.007 \text{ m.s}^{-1}$ ) can lead to a more pronounced coalescence phenomenon, thereby leading to a reduction in the  $k_{LA}$  value by decreasing 'a'.

As a perspective of this work, it is crucial to conduct a local study to estimate the gas-liquid mass transfer coefficient in the liquid film between the bubble and the wall. This study will contribute to a better understanding of why the observed mass transfer did not improve in this study.

---

---

## ***Chapitre V : Caractérisation des phénomènes pariétaux en fonction de l'injection de gaz***

---

---

### 1. Introduction

La limitation de la formation de biofilm est une préoccupation majeure dans le développement de la technologie des photobioréacteurs (PBRs). En effet, le biofilm affecte la disponibilité de la lumière qui pénètre dans le réacteur, ce qui peut réduire la productivité de la biomasse (Zerriouh et al., 2017). Le traitement mécanique par le contrôle de l'hydrodynamique de l'écoulement à bulles constitue une approche prometteuse contre le biofilm. Cette approche est d'autant plus intéressante dans le contexte des PBRs où l'aération est souvent utilisée pour assurer le mélange, l'apport en CO<sub>2</sub> et la désorption de l'O<sub>2</sub>, ce qui signifie que le contrôle du biofilm pourrait être envisagé sans interrompre la culture. En fait, certaines études montrent que les forces de cisaillement induites par l'hydrodynamique de l'écoulement à bulles peuvent être efficaces dans l'élimination du biofilm des surfaces (Jang et al., 2017), le détachement des cellules adhérentes (Sharma et al., 2005; Oder et al., 2017), ou l'augmentation du temps de latence du développement du biofilm (Thomen et al., 2017). D'autres recherches mettent en avant l'impact de paramètres tels que la taille moyenne des bulles, le taux de vide ou la vitesse de l'écoulement sur l'efficacité de l'élimination du biofilm (Parini and Pitt, 2006; Wibisono et al., 2015). Cependant, il convient de souligner qu'aucune de ces études n'a quantifié la contrainte de cisaillement critique pour éviter le développement du biofilm, ni a abordé la question des biofilms photosynthétiques. Par conséquent, l'optimisation de la transmission de lumière dans un PBR à haute productivité volumique, *via* la prévention de formation et/ou l'élimination de dépôt sur les surfaces optiques, tout en prenant en compte la sensibilité de souche de microalgues, nécessite d'effectuer une étude hydrodynamique en proche paroi, ce qui permet de remonter au cisaillement pariétal local en se basant uniquement sur l'action de bullage.

L'objectif du présent travail est d'identifier la contribution de la dynamique des bulles aux composantes moyenne et fluctuante du cisaillement à la paroi. Le but étant d'arriver dans le futur à minimiser l'impact du développement de biofilms sur le flux lumineux traversant le PBR par simple action de bullage et sans démontage de l'installation, en particulier lorsque la géométrie est confinée. Ces paramètres seront déterminés avec la méthode électrochimique

pour des fluides modèles (Newtoniens et non-Newtoniens) dans une colonne à bulles confinée de 2 mm d'entrefer (cf. Figure II.17).

## 2. Evolution temporelle du nombre de Sherwood $Sh(t)$

L'effet du passage des bulles sur le gradient pariétal de vitesse peut être observé en traçant la variation temporelle du nombre de Sherwood qui dérive directement du signal électrique récupéré au niveau de chaque sonde. La variation périodique de ce facteur en fonction du temps nous permet d'indiquer la fréquence de passage des bulles lorsqu'on est en présence d'une dynamique reproductible des bulles, comme c'est le cas en régime organisé de certains fluides. Les figures V.1, V.2 et V.3 mettent en évidence l'effet de l'augmentation de la vitesse superficielle de gaz sur la fréquence de passage de bulles pour les positions P3 (haut), P5 (centre) et P8 (bas) et ce, pour différentes phases liquides : Newtonienne (eau) et non-Newtoniennes (solutions de XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) respectivement. Ces 3 positions sont situées sur le même axe vertical à mi-largeur de la colonne (cf. Figure II.17).

### 2.1. *Fluide Newtonien (eau)*

Concernant l'eau (Figure V.1), étant donné que les bulles suivent une trajectoire oscillante, comme indiqué dans le chapitre III (cf. Figure III.5a), les bulles ne passent pas forcément sur ou à proximité de la sonde de mesure. Les fluctuations de ces bulles pendant leur montée dans la colonne génèrent un signal enregistré qui rend difficile la détermination de la fréquence à laquelle les bulles passent, quelle que soit la valeur de  $U_{Gsup}$ , comme montré dans la figure V.1. Cependant, les signaux observés dans cette figure pour l'eau sur les différentes positions de mesure montrent que l'amplitude du nombre de Sherwood semble être moins importante dans la position P3 (position haute (courbe noire)) par rapport aux autres positions (P5 et P8) surtout en régimes transitoire et hétérogène ( $U_{Gsup} > 0,007 \text{ m.s}^{-1}$ ) (Figure V.1c-f). Cette différence de nombre de Sherwood entre les trois positions est moins marquée en régime homogène ( $U_{Gsup} < 0,007 \text{ m.s}^{-1}$ ) (Figure V.1a,b). Cette observation pourrait être expliquée par la diminution des vitesses verticales de liquide à l'approche de la surface libre, notamment à proximité de la position P3, d'autant plus intense que la  $U_{Gsup}$  est importante et ceci en raison de la recirculation du liquide.

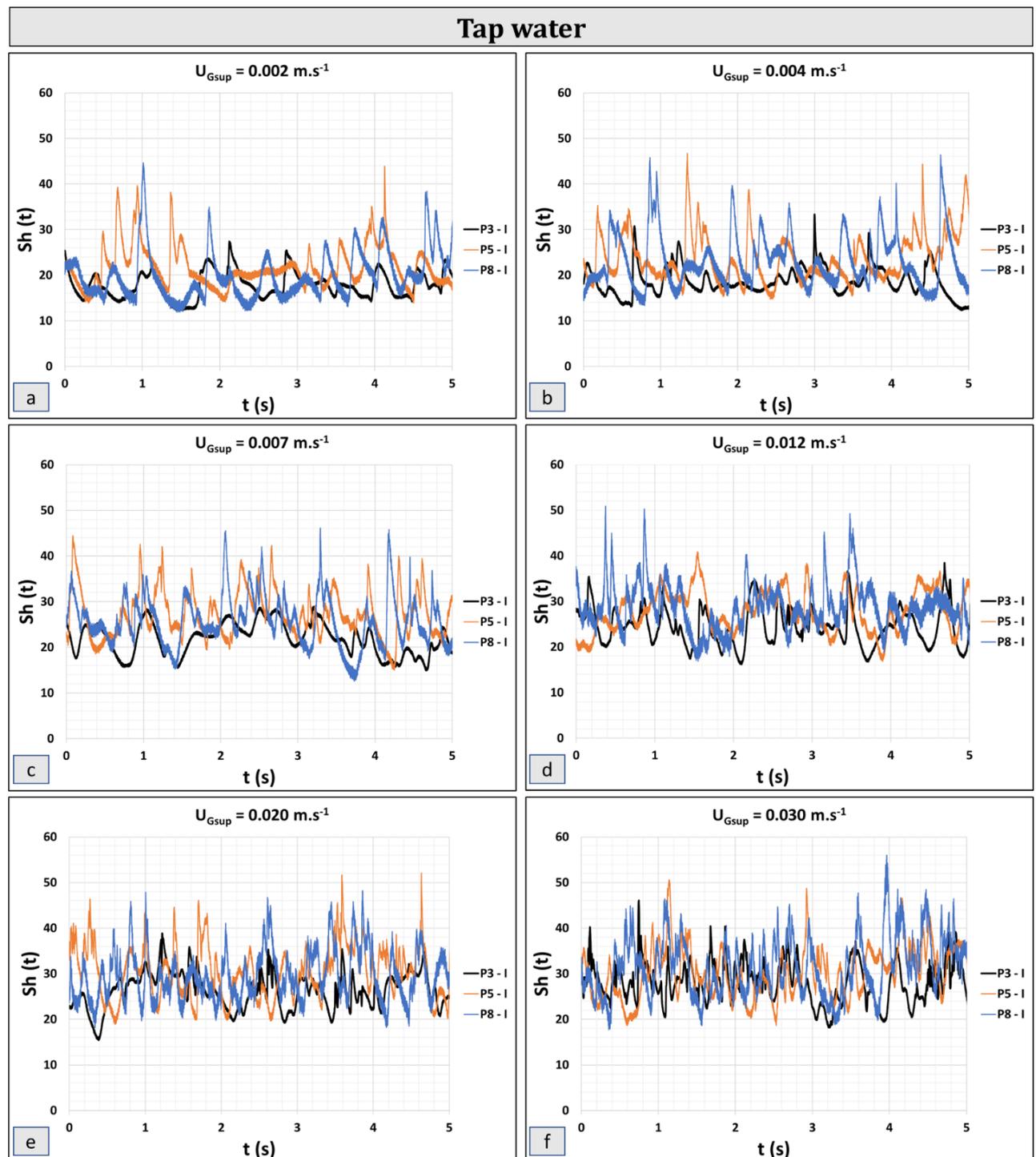


Figure V. 1 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de l'eau)

## 2.2. Fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>)

Pour le cas de fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>), le passage des bulles entraîne une augmentation du nombre de Sherwood représentée par des pics dont l'apparition se fait d'une façon harmonique et permet donc de renseigner la fréquence de passage des bulles à

faible  $U_{Gsup}$  en régime organisé. Par exemple, dans ce dernier régime ( $U_{Gsup} < 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ), pour XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$ , la fréquence de passage est de 4 bulles par seconde pour  $U_{Gsup} = 0,002 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure V.3a) et elle augmente à 8 bulles par seconde pour  $U_{Gsup} = 0,004 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure V.3b). Cette fréquence sera vérifiée également avec l'analyse spectrale (cf. Partie 4). Cependant, dans ces fluides non-Newtoniens, à partir d' $U_{Gsup}$  de  $0,006 \text{ m.s}^{-1}$  qui correspond au début de régime transitoire (début de coalescence), le signal est beaucoup plus perturbé (Figures V.2c et V.3c), avec des pics qui se chevauchent, ce qui engendre une augmentation notable du niveau de cisaillement moyen en régimes transitoires et hétérogènes, comme le montre la figure V.7. Ainsi, il est difficile d'identifier les pics correspondant au passage de bulles pour ces fluides dans les régimes transitoire et hétérogène ( $U_{Gsup} > 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ), comme il est possible de le voir dans les figures V.2c-f et V.3c-f. Cette observation peut être attribuée à une distribution non-monomodale de bulles, en raison du phénomène de coalescence (cf. Chapitre IV, Partie A).

Toutes ces informations revêtent une importance primordiale car elles facilitent une meilleure compréhension et interprétation des résultats relatifs aux composantes moyenne et fluctuante du cisaillement pariétal, ainsi que l'analyse spectrale du gradient pariétal de vitesse (cf. Parties 3 et 4).

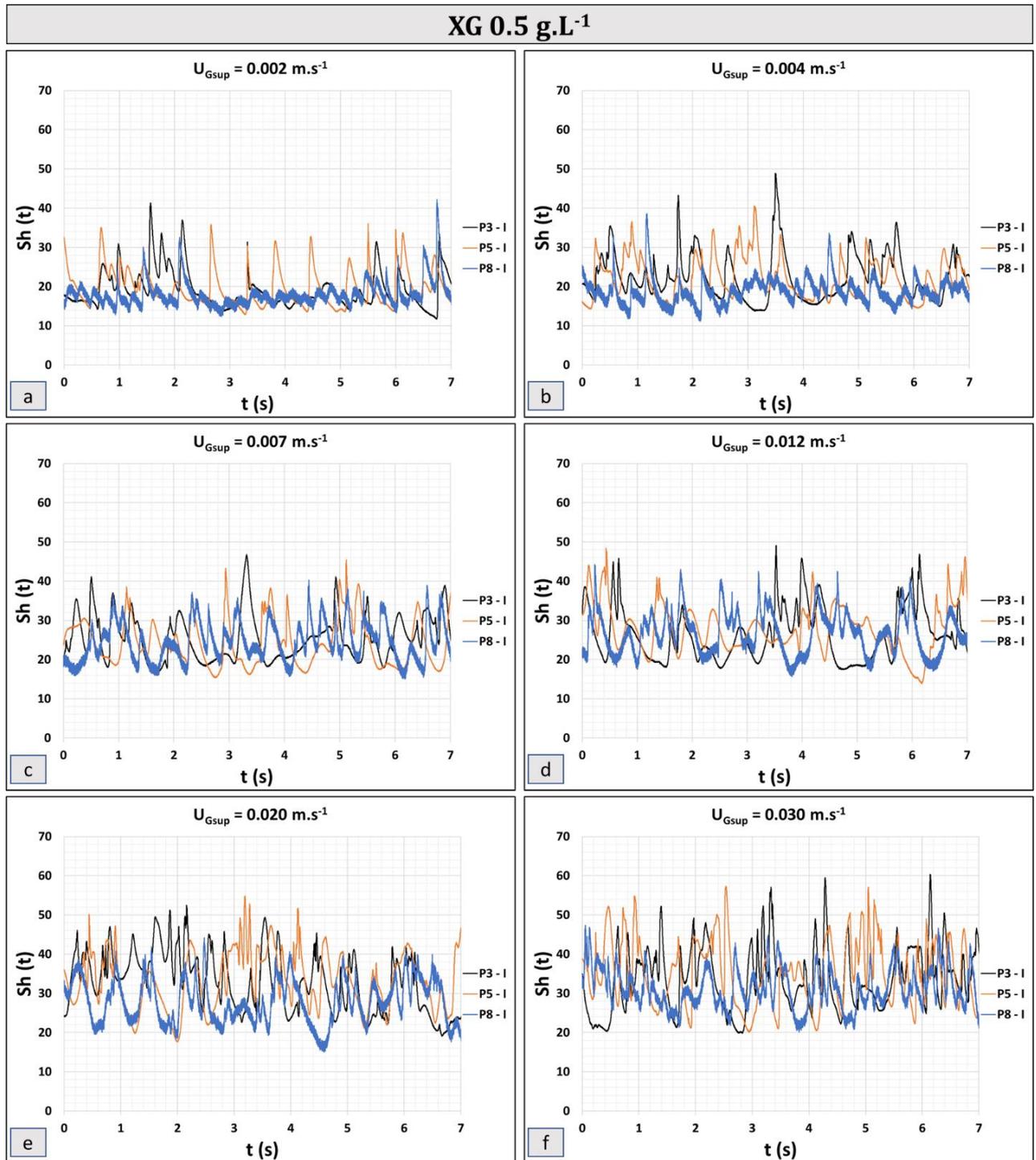


Figure V. 2 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de la solution de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>)

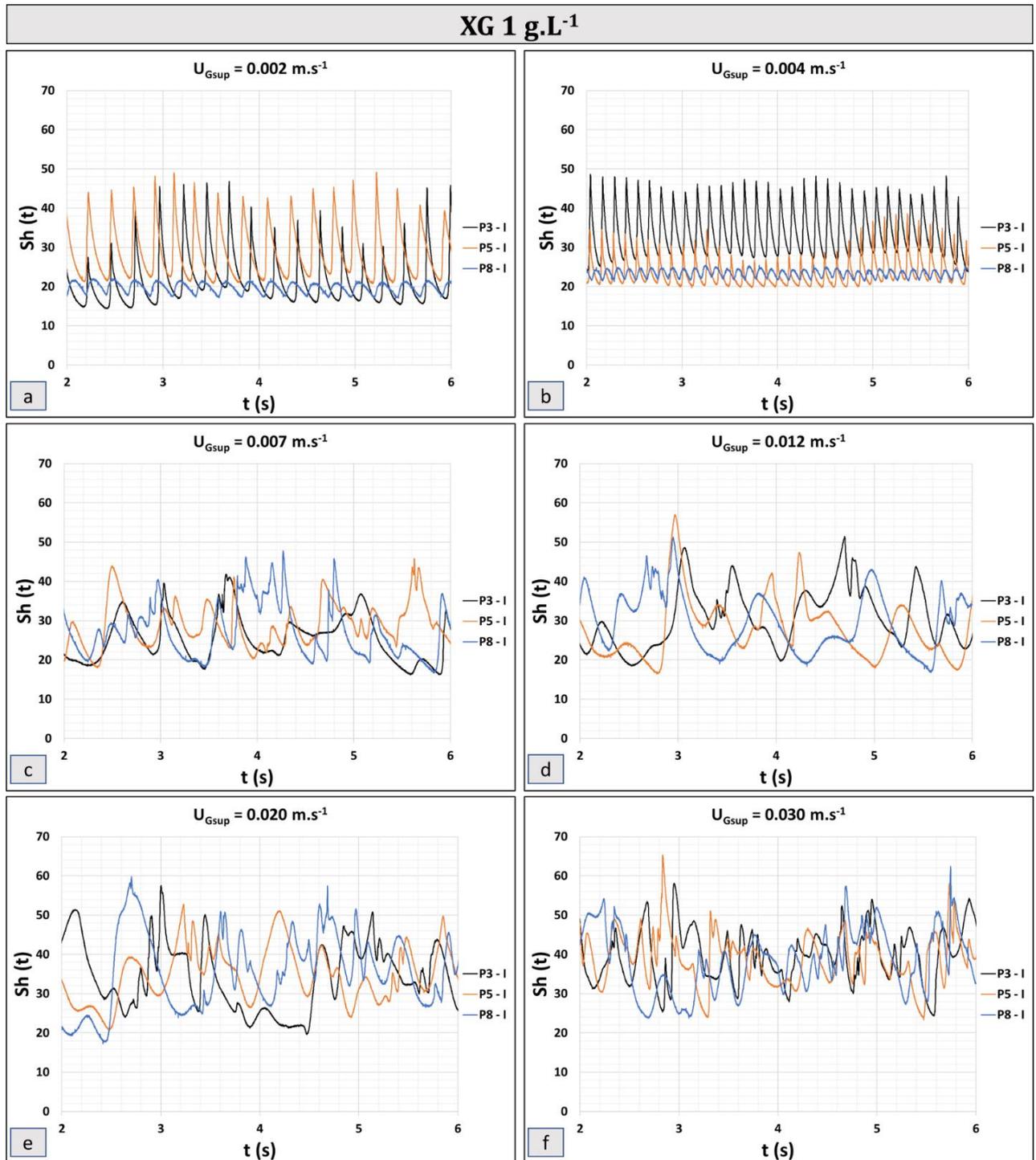


Figure V. 3 : Evolution temporelle du nombre de Sherwood pour différentes vitesses superficielles de gaz (cas de la solution de XG à 1 g.L<sup>-1</sup>)

3. Comparaison des composantes moyenne ( $S_{sob}$ ) et fluctuante ( $\overline{s'^2}$ ) du cisaillement pariétal pour différentes conditions de bullage

### 3.1. Effet de la position de la sonde

La composante moyenne ( $S_{sob}$ ) et l'énergie fluctuante ( $\overline{s'^2}$ ) du cisaillement, déterminées pour les six positions et les trois fluides utilisés (eau, XG 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) sont présentées dans les figures V.4, V.5 et V.6. La composante moyenne du cisaillement à la paroi ( $S_{sob}$ ) a été déterminée après moyennage de  $S_{sob}(t)$  sur l'ensemble du temps d'acquisition. L'énergie fluctuante ( $\overline{s'^2}$ ) a été calculée *via* une intégration de la densité spectrale du gradient pariétal de vitesse comme expliqué dans Blel et al. (2009).

Les résultats de la valeur moyenne du cisaillement montrent que l'augmentation de la vitesse superficielle de gaz conduit à une augmentation des valeurs moyennes pour tous les fluides quelle que soit la position de la sonde (Figures V.4, V.5 et V.6). Par exemple, pour la position P4, l'augmentation est de 66 à 277 s<sup>-1</sup> dans le cas de l'eau, de 56 à 241 s<sup>-1</sup> pour la XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> et de 33 à 329 s<sup>-1</sup> pour la XG 1 à g.L<sup>-1</sup>, et ceci pour les  $U_{Gsup}$  allant de 0,002 à 0,030 m.s<sup>-1</sup>.

Pour l'eau (Figure V.4), la composante moyenne de cisaillement pariétal ( $S_{sob}$ ) est plus faible en haut de la colonne (P2 et P3) par rapport aux autres positions testées (pas de différence significative entre les positions P4, P5, P7 et P8) et ceci pour tous les régimes d'écoulement étudiés (Figure V.4). Cette tendance est observée sur toute la plage d' $U_{Gsup}$  étudiée, avec un facteur de 1,5 ou 1,6 quelle que soit  $U_{Gsup}$ . Cette différence dans la composante moyenne du cisaillement pourrait être attribuée à l'influence de l'interaction des bulles avec la surface libre : les bulles en ascension sont ralenties en s'approchant de la surface libre (proche de P2 et P3) et ceci en raison de la recirculation du liquide. Cette vitesse plus faible des bulles peut alors affecter la distribution du cisaillement, entraînant une réduction de la composante moyenne du cisaillement dans la partie supérieure de la colonne (positions P2 et P3) par rapport aux autres positions de mesure, quelle que soit la  $U_{Gsup}$  (Figure V.4). Cette observation peut expliquer la présence accrue du biofilm dans la partie supérieure de la colonne lorsqu'elle est utilisée dans une phase de culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* (cf. Chapitre VI, Figure VI.13).

De même, la composante fluctuante ( $\overline{s'^2}$ ) pour l'eau (Figure V.4) est plus faible en haut de la colonne (P2 et P3), pour tous les débits étudiés. En régime homogène ( $U_{Gsup} < 0,007$  m.s<sup>-1</sup>), ce constat pourrait être expliqué par le ralentissement des bulles pendant leur montée près de

la surface libre qui se traduit par une fluctuation moins intense du cisaillement à la paroi dans la partie supérieure (positions P2 et P3). En régime transitoire et hétérogène ( $U_{Gsup} > 0,007 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ), un autre facteur entre en jeu : la coalescence des bulles. En effet, en plus de l'effet de la surface libre, la coalescence amplifie les effets observés (c.à.d. la composante fluctuante plus faible en haut). Les bulles plus grosses à cause de la coalescence génèrent moins de perturbations locales dans le cisaillement car elles présentent des fluctuations moins marquées lorsqu'elles sont soumises à un ralentissement en raison de la recirculation du liquide. En accord avec les résultats obtenus par ombroscopie (cf. Chapitre IV, Partie A), il a été observé que les grosses bulles résultant de la coalescence subissent moins de fluctuations par rapport aux petites bulles formées au distributeur (cf. Figure IV.5). Cet effet peut expliquer pourquoi l'énergie fluctuante est plus faible d'un facteur de 2,4 et 2,3 dans les positions situées en haut par rapport aux autres positions, respectivement pour  $U_{Gsup}$  égales à 0,016 et 0,030  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (Figure V.4).

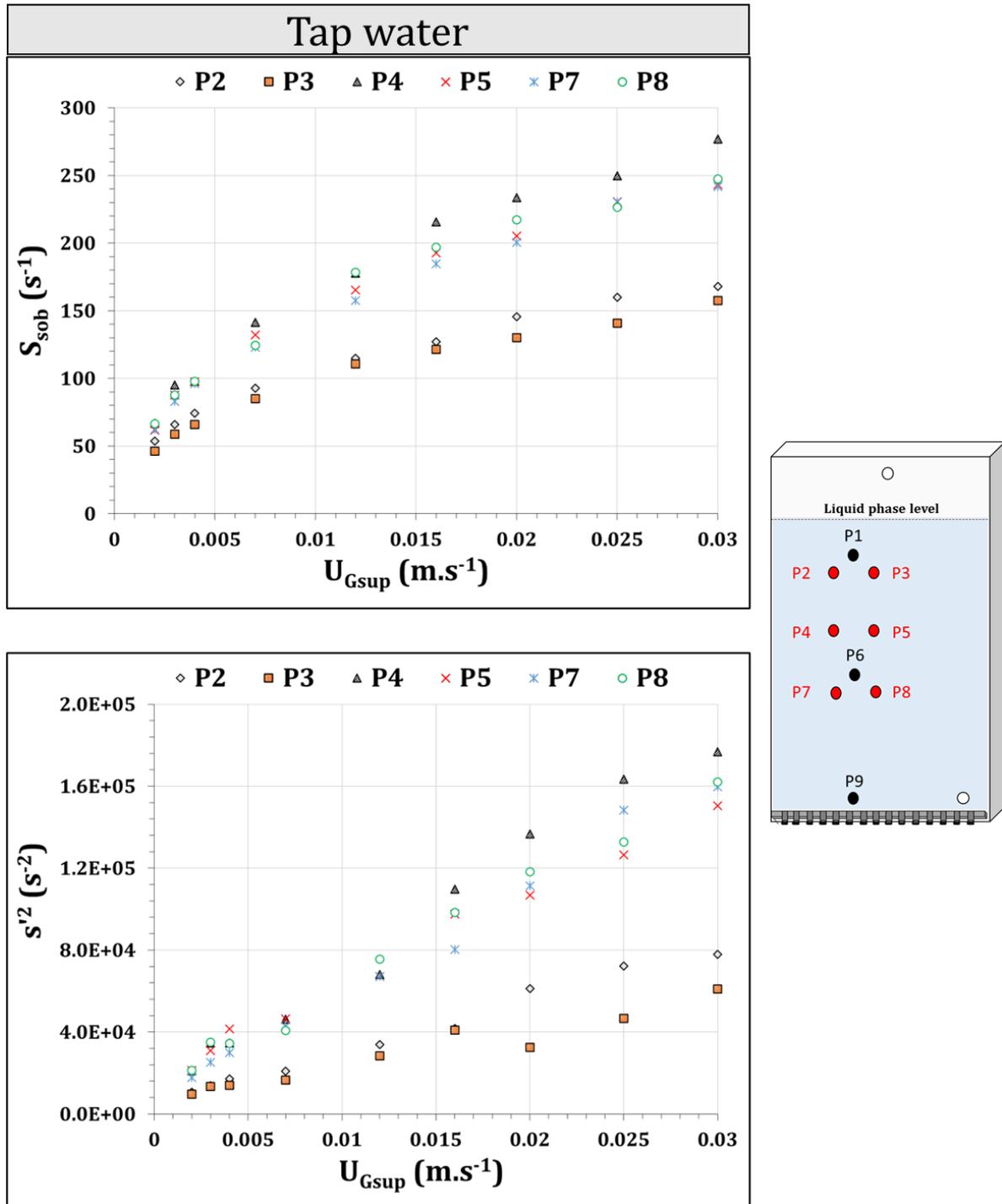


Figure V. 4 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz et pour les six positions de mesure (essais avec l'eau)

Pour la solution non-Newtonienne (XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>) (Figure V.5) et pour un régime organisé ( $U_{Gsup} < 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ), les valeurs de composantes moyennes mesurées sont de même ordre de grandeur quelle que soit la position de la sonde, avec une légère réduction de ces valeurs dans les positions situées en bas (P7 et P8). Ceci montre une distribution homogène des perturbations hydrodynamiques à travers la colonne liée à une répartition particulièrement régulière des

bulles. Lorsque la coalescence de bulles commence à partir de  $0,006 \text{ m.s}^{-1}$ , la composante moyenne devient plus prononcée au centre et en haut (P2, P3, P4 et P5) de la colonne. Cette augmentation dans la composante moyenne dans ces positions pourrait s'expliquer par la présence de grosses bulles, résultant de la coalescence qui provoquent plus de frottement à la paroi par rapport à celles situées en bas de la colonne (P7 et P8). En plus, dans la partie inférieure de la colonne (P7 et P8), en régime transitoire I ( $0,006 \text{ m.s}^{-1} < U_{G\text{sup}} < 0,020 \text{ m.s}^{-1}$ ), les trajectoires des bulles demeurent relativement rectilignes (l'effet de l'hydrodynamique générée par le passage des bulles est très localisé dans ce cas) et la coalescence est absente (cf. Figure III.5c). Par conséquent, la composante moyenne du cisaillement aux positions P7 et P8 est moins importante par rapport aux autres positions où la coalescence est davantage prévalente. Cette tendance demeure constante sur l'ensemble de la plage d' $U_{G\text{sup}}$  correspondant aux régimes transitoire et hétérogène (Figure V.5).

En ce qui concerne l'énergie fluctuante, la solution de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure V.5) ne présente pas de différence significative entre les diverses positions de mesure, en régime organisé ( $U_{G\text{sup}} < 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ). Cependant, les valeurs fluctuantes demeurent élevées dans certaines positions (P3 et P5 par exemple), sans présenter de différences significatives avec les autres positions. Ces valeurs fluctuantes élevées dans certaines positions pourraient être les résultats de passage direct des bulles sur les sondes de mesure. Toutefois, pour les  $U_{G\text{sup}}$  les plus élevées (régimes transitoire et hétérogène), et au fur et à mesure que le phénomène de coalescence devient plus important, il est possible d'observer une augmentation linéaire des valeurs d'énergie fluctuante en fonction d' $U_{G\text{sup}}$  aux positions P3 et P5 (correspondant respectivement aux positions hautes et centrales, situées à mi-largeur de la colonne) avec des valeurs moins importantes dans les autres positions (Figure V.5). Cette augmentation de l'énergie fluctuante à P3 et P5 suggère que les bulles de plus grandes tailles résultant de la coalescence passent toujours à ces positions (le passage de bulles, dans ces positions centrales de la colonne, est spécifique pour ces régimes d'écoulement, cf. Figure III.5c). Ce passage peut créer ainsi des perturbations plus importantes dans la phase liquide à ces emplacements spécifiques de la colonne.

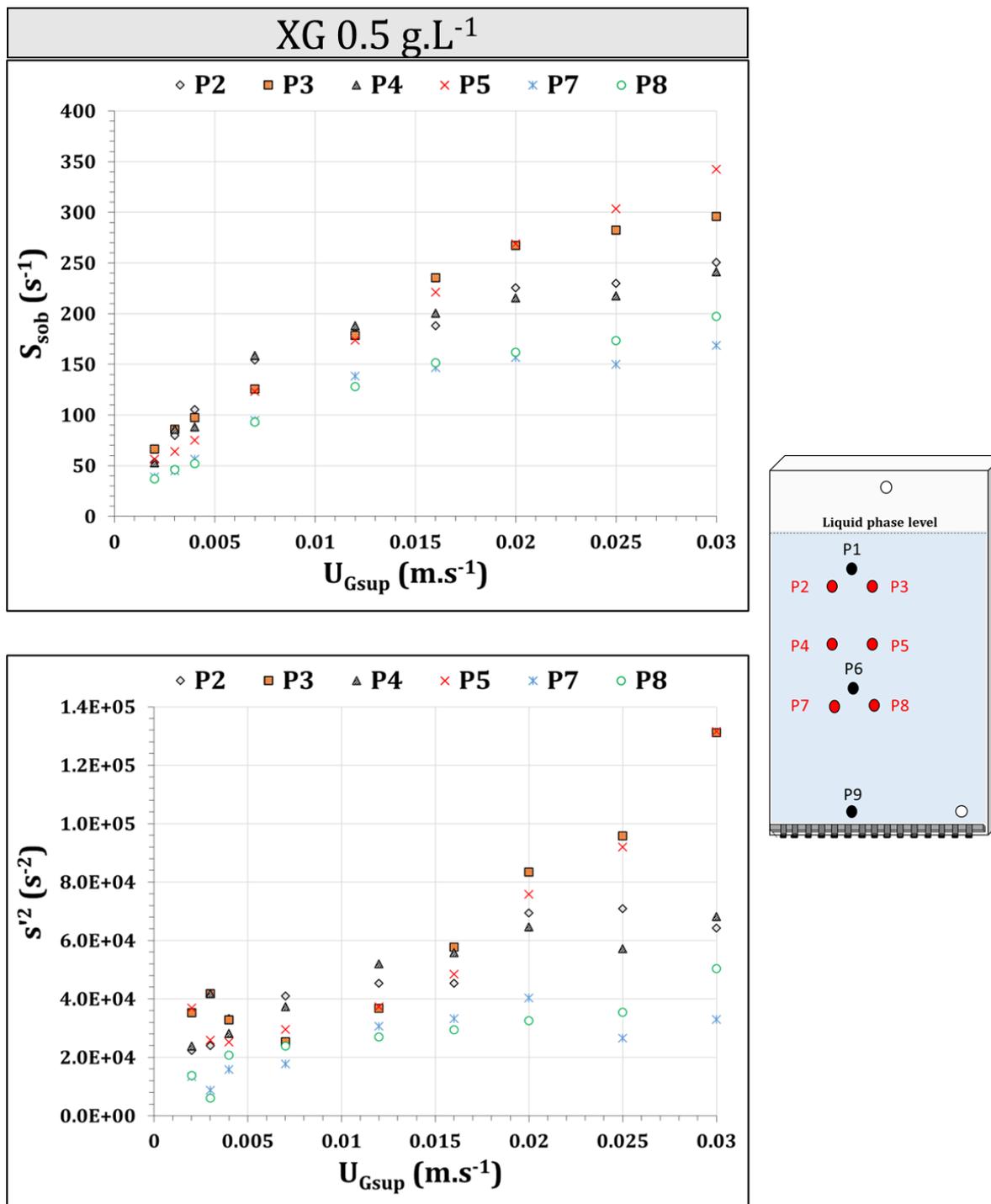


Figure V. 5 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les 6 positions de mesure (solution de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>)

Concernant la solution XG de concentration égale à 1 g.L<sup>-1</sup>, l'analyse de la figure V.6 met en évidence que durant le régime organisé ( $U_{Gsup} < 0,006$  m.s<sup>-1</sup>), des valeurs notablement élevées des composantes moyennes sont observées aux positions P3 et P5, situées verticalement l'une au-dessus de l'autre, en haut et au centre de la colonne (Figure V.6). Ces valeurs sont même plus élevées que le cisaillement sur la sonde P8, située sur la même ligne

verticale. En effet, une observation de la maquette en fonctionnement en régime organisé montre que le passage des bulles est légèrement décalé et ne passe pas directement sur la position P8. Ainsi, ce passage direct des bulles au-dessus de ces deux sondes P3 et P5 pourrait expliquer les valeurs moyennes élevées du cisaillement. Ceci a été également observé dans les figures V.3a,b avec l'évolution temporelle du nombre de Sherwood ( $Sh(t)$ ).

Au début du régime transitoire ( $U_{Gsup} = 0,007 \text{ m.s}^{-1}$ ), les valeurs moyennes sont légèrement supérieures dans les deux positions P2 et P4 (situées à 1/3 de la largeur, en haut et à mi-hauteur de la colonne) par rapport aux autres positions. Cependant, à des  $U_{Gsup}$  plus élevées ( $0,016 \text{ m.s}^{-1}$ ), les valeurs moyennes semblent être similaires indépendamment de la position mesurée, mais elles croissent linéairement avec  $U_{Gsup}$ , une tendance clairement visible dans la figure V.6. Il est important de relever que cette similitude remarquée entre les diverses positions, dans les régimes transitoire et hétérogène, en termes de valeurs moyennes est propre à ce fluide et n'était pas observée dans le cas de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ . Effectivement, en comparaison avec la solution XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ , la différence repose sur la viscosité supérieure de la solution XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$ . Cette plus grande viscosité intensifie le phénomène de coalescence, aboutissant à la formation d'un nombre accru de bulles de plus grande taille à travers toute la colonne (à partir de  $U_{Gsup} = 0,007 \text{ m.s}^{-1}$ ) (cf. Figure III.5d). Ce constat pourrait expliquer la similitude entre les diverses positions, contrairement à la situation de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$  où une différence significative a été relevée entre les positions situées en bas et les autres positions de la colonne (Figure V.5).

De même, la figure V.6 illustre que la composante fluctuante pour la solution XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  est pratiquement similaire entre les diverses positions et pour toutes les vitesses superficielles de gaz, à l'exception du régime organisé ( $U_{Gsup} < 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ). Dans ce dernier régime, le passage direct des bulles au niveau des positions P3 et P5 a engendré des valeurs fluctuantes élevées par rapport aux autres positions comme il est possible de voir sur la figure V.6.

Les résultats ci-dessus revêtent une grande importance notamment dans la stratégie de prévention du développement de biofilms photosynthétiques sur les parois du PBR. Plus précisément, ils sont pertinents lorsque l'objectif est d'obtenir sur une période de bullage déterminée, un cisaillement uniforme qui assure un nettoyage homogène sur l'ensemble des surfaces de la colonne. Dans notre cas, ces conditions optimales se produisent lorsque la phase liquide présente des viscosités élevées, telles que celles observées avec la solution de XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  (Figure V.6), correspondant à une culture de microalgues à haute concentration cellulaire d'environ  $42 \text{ g.L}^{-1}$  (cf. Figure II.4). À l'inverse, une inhomogénéité du cisaillement se

manifeste lorsque la viscosité de la phase liquide est relativement faible, comme dans le cas de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> (Figure V.5) ou lorsqu'on utilise de l'eau (Figure V.4). Ces observations suggèrent que, dans un PBR intensifié, l'augmentation de la concentration en biomasse, et par conséquent une viscosité élevée du milieu, peut ne pas nécessairement être favorable au développement du biofilm sur les parois du PBR.

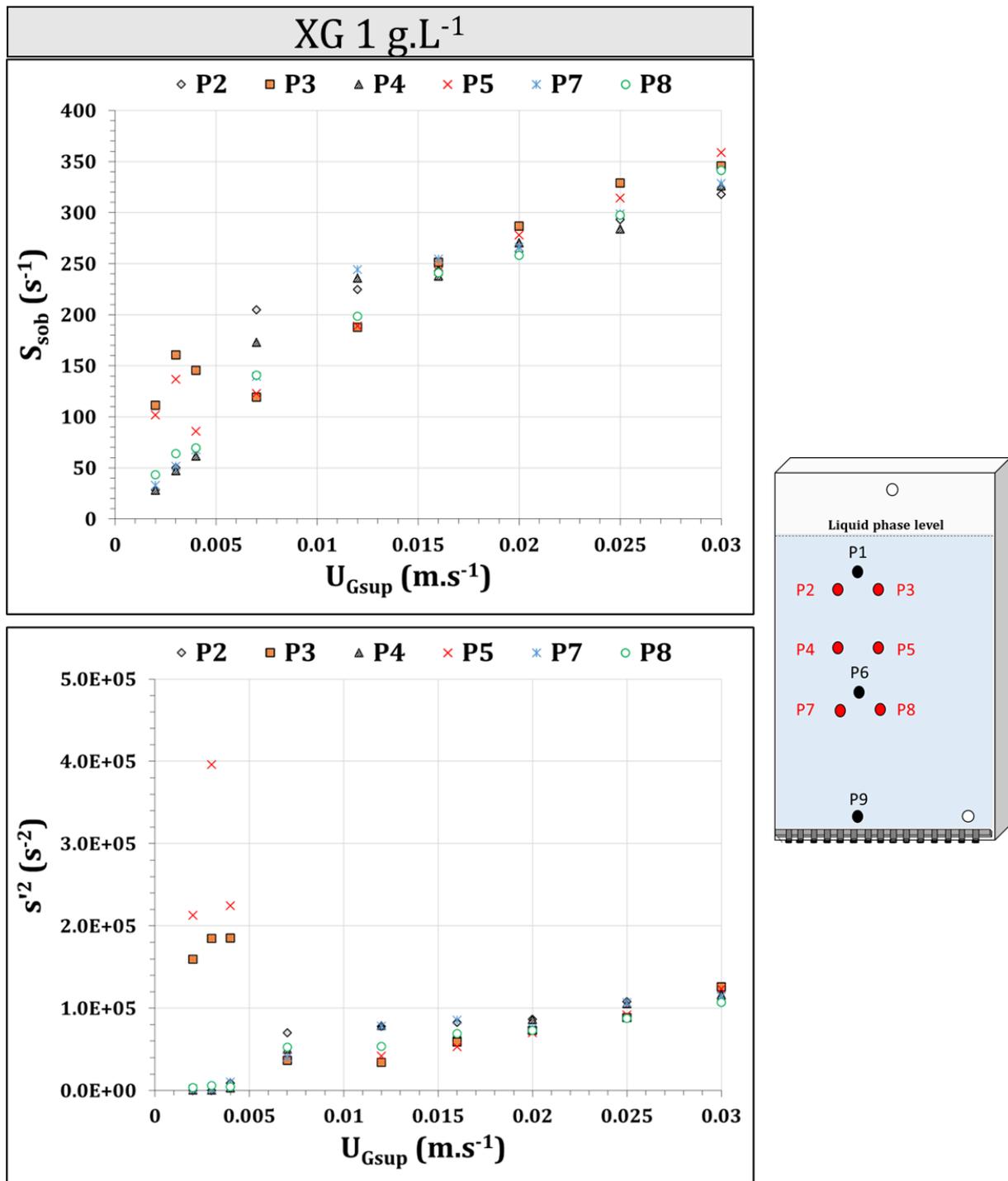


Figure V. 6 : Evolution de la composante moyenne et de l'énergie fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les 6 positions de mesure (solution de XG à 1 g.L<sup>-1</sup>)

### 3.2. Effet de la rhéologie de la phase liquide

La figure V.7 présente l'évolution des composantes moyenne et fluctuante du cisaillement pariétal en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour l'eau et les solutions de XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>. Les valeurs des composantes moyenne et fluctuante représentent la moyenne de l'ensemble des valeurs obtenues sur les différentes positions de mesure (P2, P3, P4, P5, P7 et P8). Sur cette figure, il est possible de voir que, à faible vitesse superficielle de gaz (< 0,006 m.s<sup>-1</sup>), la composante moyenne est similaire pour tous les fluides. Ceci pourrait être expliqué par le fait que les bulles ont presque la même taille pour tous les fluides à faible  $U_{Gsup}$  (à  $U_{Gsup} = 0,002 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $d_b$  (XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>) = 4,3 mm,  $d_b$  (XG à 1 g.L<sup>-1</sup>) = 4,5 mm et  $d_b$  (Eau) = 4 mm), le degré de confinement est donc presque similaire ( $2 < d_b/e < 2,25$ ), quel que soit le fluide utilisé. De plus, à ces vitesses superficielles de gaz, et il n'y a pas d'interaction entre les bulles et les collisions sont rares et donc la coalescence est presque négligeable (cf. Figure III.5).

Pour les  $U_{Gsup}$  plus élevées (> 0,006 m.s<sup>-1</sup>), les valeurs moyennes de cisaillement deviennent plus importantes avec les solutions non-Newtoniennes (XG 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) en comparaison avec l'eau (Figure V.7) : au début de régime transitoire (début de coalescence de bulles à partir de 0,006 m.s<sup>-1</sup>), ces valeurs sont légèrement supérieures pour les deux solutions de XG par rapport à l'eau. Cependant, à mesure que la  $U_{Gsup}$  augmente, la différence devient de plus en plus marquée. Ce résultat peut être expliqué par la coalescence de bulles qui donne lieu à la formation des grosses poches d'air dans les solutions non-Newtoniennes et qui passent directement devant la majorité des positions de mesure, contribuant ainsi à des valeurs moyennes de cisaillement pariétal plus élevées. A l'inverse, les plus grosses bulles issues de la coalescence de l'eau ont des trajectoires oscillantes, elles ne passent pas forcément sur ou à proximité de la sonde de mesure. Il est également important de noter que, dans cette géométrie confinée, le film liquide entre les bulles et les parois de la colonne est supposé être plus mince dans le cas des fluides non-Newtoniens par rapport à un fluide Newtonien (eau), en raison de l'effet rhéofluidifiant (Chun et al., 2022). Cette faible épaisseur du film liquide peut contribuer à la génération des valeurs moyennes de cisaillement pariétal plus élevées dans les solutions non-Newtoniennes par rapport à l'eau. Pour ces raisons, la composante moyenne du cisaillement pariétal pourrait être plus faible, en régimes transitoire et hétérogène, dans l'eau par rapport aux solutions de XG (Figure V.7).

Concernant l'énergie fluctuante, la figure V.7 permet de comparer ce paramètre entre les trois types de fluides. Cette figure révèle clairement que, pour toutes  $U_{Gsup}$  inférieures à 0,006

$\text{m.s}^{-1}$  (correspondant au régime homogène pour l'eau et au régime organisé pour les deux solutions de XG), l'énergie fluctuante est nettement plus élevée dans le cas de la solution de XG à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  par rapport aux deux autres fluides. Ces niveaux élevés d'énergie fluctuante peuvent être expliqués par le passage directe des bulles au niveau des positions P3 et P5 comme déjà observé dans la figure V.6. Pour les régimes transitoire et hétérogène ( $U_{\text{Gsup}} > 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ), l'énergie fluctuante est relativement plus importante pour l'eau par rapport aux fluides non-Newtoniens, surtout vers la fin du régime transitoire ( $U_{\text{Gsup}} = 0,016 \text{ m.s}^{-1}$ ). Cette observation peut être attribuée à la dynamique des bulles dans la phase continue (eau) caractérisée par une faible viscosité. Cette dynamique peut générer davantage de tourbillons résultant des sillages des bulles, même à des débits de gaz faibles. En revanche, les solutions non-Newtoniennes, du fait de leur viscosité plus élevée, le passage des bulles génèrent moins de tourbillons dans la phase continue, ce qui se traduit par une énergie fluctuante relativement plus faible dans ces conditions (Figure V.7).

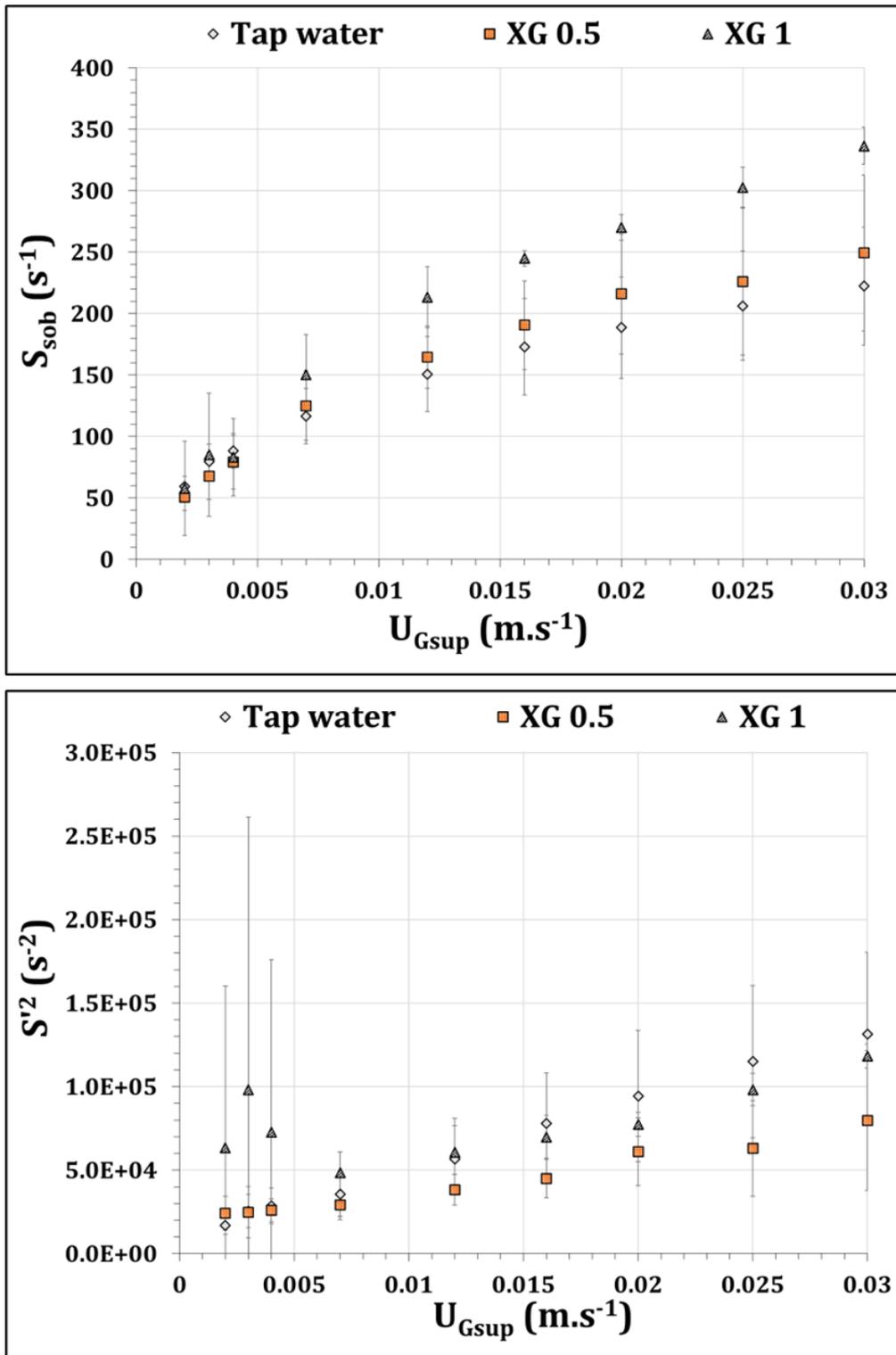


Figure V. 7 : Evolution des composantes moyenne et fluctuante du cisaillement pariétal (valeurs moyennées sur les 6 positions) en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour tous les fluides

#### 4. Analyse spectrale du gradient pariétal de vitesse

Le spectre du gradient pariétal de vitesse a été obtenu à partir du courant limite de diffusion enregistré au niveau des différentes positions sur la colonne. Le calcul des spectres de puissance devrait permettre de déterminer l'existence de structures périodiques, à la fois à des échelles macroscopiques et microscopiques, et fournir leurs fréquences spécifiques (Olmos et al., 2003b). Les figures V.8, V.9 et V.10 illustrent respectivement les densités spectrales du gradient pariétal de vitesse observées pour l'eau et les deux solutions de XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>. Pour toutes les solutions examinées, diverses vitesses superficielles de gaz ont été étudiées ( $0,002 < U_{Gsup} < 0,030 \text{ m.s}^{-1}$ ), couvrant ainsi l'ensemble des régimes d'écoulement présents dans la colonne à bulles confinée utilisée au cours de cette étude, et ce, à différentes positions de mesure (P2, P3, P4, P5, P7 et P8) (cf. Figure II.17).

##### 4.1. *Fluide Newtonien (eau)*

Pour l'eau, les figures V.8a,b présentent la densité spectrale du gradient pariétal de vitesse sur les six positions indiquées sur la figure II.17 pour des vitesses superficielles de gaz égales à 0,002 et 0,004 m.s<sup>-1</sup>, correspondant au régime homogène pour ce fluide. Les spectres présentent globalement la même allure quelle que soit la position de la sonde, ce phénomène s'explique par une uniformité dans la structure de l'écoulement dans toute la colonne, indiquant ainsi l'absence de macrostructures. Dans le régime homogène (I) ( $U_{Gsup} = 0,002 \text{ m.s}^{-1}$ ) (Figure V.8a), en comparant ces spectres entre eux, on observe un pic de puissance à fréquence moyenne obtenu autour de 2 Hz pour les positions P5 et P8 (situées à mi-largeur de la colonne au centre et en bas) (Figure.V.8a) et un autre pic obtenu autour de 1,5 Hz correspond à la position P2 (située en haut). Il est probable que ces pics soient le résultat du passage des bulles à proximité de la sonde installée dans ces positions. Ces fréquences de passage sont difficilement identifiées par l'évolution temporelle du nombre de Sherwood en raison de la trajectoire oscillante de bulles, comme déjà illustré dans la figure V.1. Ainsi, dans le cas de l'eau, le passage des bulles au niveau et à proximité des sondes de mesure se fait d'une façon aléatoire (trajectoire oscillante de bulles), ce qui explique aussi l'absence de pics d'énergie facilement identifiables avec leurs harmoniques pour certaines positions de mesure (comme les positions P4 et P7 par exemple) dans la zone des faibles fréquences. Dans le régime homogène (II) ( $U_{Gsup} = 0,004 \text{ m.s}^{-1}$ ), il est possible de voir dans la figure V.8b, que les pics résultant du passage des bulles sont encore présents mais à des fréquences plus élevées par rapport à l'homogène (I) (2,9 et 3,9 Hz pour la position P5, 2,4 et 3,4 Hz pour la position P7).

En régime transitoire ( $U_{Gsup} = 0,007$  et  $0,012 \text{ m.s}^{-1}$ ) (Figures V.8c,d), la structure d'écoulement semble être peu claire, surtout à  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure V.8d), ce qui indique l'instationnarité significative du système. Malgré cet instationnarité dans ce régime, il est possible d'observer une augmentation notable du nombre de pics d'énergie présents dans les spectres, principalement à  $U_{Gsup} = 0,012 \text{ m.s}^{-1}$  comme illustré dans la figure V.8d. Ces pics d'énergie sont présents à partir de 2 ou 3 Hz dans quelques positions et ils semblent correspondre aux oscillations visibles sur les courants limite de diffusion ( $Sh(t)$ ), lorsque le signal est à sa valeur basse (Figure V.1). Ces pics pourraient être associés aux macrostructures qui se forment dans la colonne et qui sont caractéristiques du régime d'écoulement transitoire, notamment à l'oscillation du panache central et aux vortex latéraux.

En régime hétérogène ( $U_{Gsup} = 0,020$  et  $0,030 \text{ m.s}^{-1}$ ) (Figures V.8e,f), l'oscillation du panache central est nettement mise en évidence par des pics correspondant à des fréquences moyennes d'environ 3 Hz. De plus, dans ce régime d'écoulement, on observe des pics à des fréquences d'environ 6 ou 8 Hz, qui pourraient être associés aux vortex latéraux, comme le montre la figure V.8f. En résumé, il est possible de différencier les différents régimes d'écoulement en analysant la qualité du spectre de puissance, en se basant sur la présence de quelques pics bien définis.

D'autre part, la figure V.8 montre clairement que, dans tous les régimes d'écoulement, les spectres obtenus avec les deux sondes situées en haut de colonne (P2 et P3) donnent des niveaux d'énergies plus faibles que les autres positions (P4, P5, P7 et P8) et la différence de ces niveaux entre le haut et les autres positions augmente avec la  $U_{Gsup}$ . Une explication possible est la diminution des vitesses verticales de liquide à l'approche de la surface libre (proche des positions P2 et P3), d'autant plus intense que la  $U_{Gsup}$  est importante. En outre, il est possible de voir dans cette figure, que l'augmentation d' $U_{Gsup}$  induit une augmentation des niveaux d'énergie aux faibles fréquences au sein de l'écoulement : par exemple, au position P3, le niveau d'énergie augmente de 85 à  $290 \text{ s}^{-1}$  lorsque  $U_{Gsup}$  passe de 0,002 à  $0,030 \text{ m.s}^{-1}$  (Figure V.8).

Il est important de noter que l'analyse spectrale permet aussi d'étudier les différentes échelles de turbulence en utilisant le modèle de Kolmogorov (1941), à condition que l'écoulement présente une turbulence homogène et isotrope (écoulement monophasique). En effet, selon le modèle de Kolmogorov (1941), une turbulence homogène et isotrope est caractérisée par la présence d'une zone inertielle de pente égale à  $-5/3$  dans le spectre d'énergie

(Kolmogorov, 1941). Cependant, dans le présent cas de l'écoulement diphasique dans une colonne à bulles confinée de 2 mm d'entrefer, la pente correspondant à la partie dissipative du spectre (nommée ici  $k$ ) est de  $-5/4$  en régimes homogène et transitoire et elle diminue à  $-1$  (à  $U_{Gsup} = 0,020 \text{ m.s}^{-1}$ ) puis  $-0,7$  (à  $U_{Gsup} = 0,030 \text{ m.s}^{-1}$ ) en régime hétérogène (Figure V.8). Ceci montre que le bullage dans des conditions confinées a un effet sur la dissipation de l'énergie cinétique en proche paroi. Ces valeurs de pente, obtenues dans cette étude, sont en désaccord avec les résultats présentés dans la littérature (Martínez Mercado et al., 2010; Riboux et al., 2010; Mendez-Diaz et al., 2013) dans des colonnes à bulles classiques. Ces études ont montré que la densité spectrale dans un écoulement pseudo-turbulence (écoulement uniquement provoqué par la montée de bulles) présente une pente égale à  $-3$ , ce qui est plus élevée par rapport aux résultats de ce travail pour tous les débits d'air. En réalité, il a été constaté dans ces travaux que la mise à l'échelle du spectre en  $-3$  reste robuste même si la taille des bulles est modifiée ou si des liquides de viscosité plus élevée sont utilisés à la place de l'eau. Dans la présente étude, la diminution dans la pente de dissipation de l'énergie cinétique par rapport aux études ainsi citées pourrait être expliquée par une dégradation moins rapide des tourbillons formés au sillage des bulles. En effet, la colonne à bulles, utilisée dans cette étude, a un degré de confinement important ( $d_b/e \approx 2$ ) ce qui permet d'avoir des lâchés tourbillonnaires derrière les bulles qui opèrent en deux dimensions, contrairement à un écoulement tourbillonnaire classique avec des tourbillons en activité dans les 3 dimensions de l'espace. Cependant, en comparant avec une géométrie confinée telle que la cellule Hele-Shaw (1 mm d'entrefer) utilisée dans l'étude de Bouche et al. (2014), la pente obtenue dans notre étude est toujours moins importante. En effet, ces auteurs ont également obtenu une pente de  $-3$  en utilisant de l'eau comme phase liquide, avec un taux de vide variant de 1 à 12% ( $3,9 < d_b < 4,6 \text{ mm}$ ). D'après Bouche et al. (2014), la raison de l'existence de cette pente de  $-3$  est la même pour les écoulements confinés que pour les fluctuations spatiales des écoulements non confinés (Risso, 2011) : elle résulte de perturbations locales aléatoires de l'écoulement de différentes tailles (Bouche et al., 2014). La cause de cette différence de pente dans ce présent travail par rapport à ce qui a été obtenu dans l'étude de Bouche et al. (2014) n'a pas encore été clairement identifiée, mais il est possible qu'elle soit liée à l'absence du phénomène de coalescence des bulles dans leur travail.

Au final, l'allure du spectre obtenu dans ce travail ressemble à un écoulement tourbillonnaire mais la pente n'est pas égale à  $-3$  car la dissipation énergétique semble être moins rapide en raison du confinement. Ces conditions pourraient être considérées comme

favorables contre le développement de biofilms photosynthétiques sur la paroi de photobioréacteurs intensifiés.

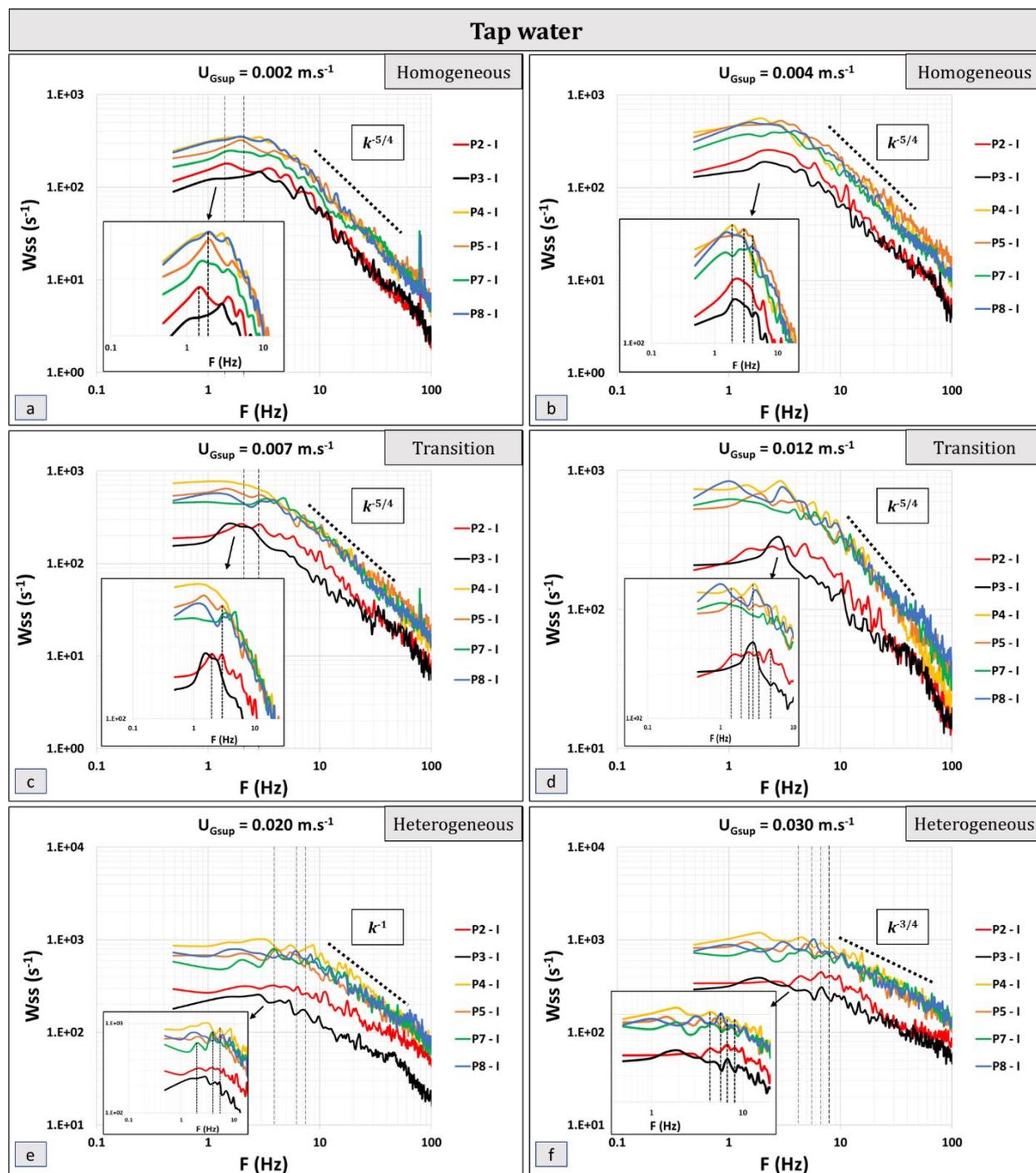


Figure V. 8 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour l'eau

4.2. *Fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>)*

Pour les fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>), il est possible de voir sur les figures V.9 et V.10 qu'en régime organisé ( $U_{Gsup} = 0,002$  et  $0,004$  m.s<sup>-1</sup>), les courbes présentent des pics d'énergie à des fréquences régulières, qui s'expliquent par le passage des bulles au niveau ou à proximité de sonde installée sur les différentes positions (Figures V.9a,b et V.10a,b). Ces pics et leurs harmoniques sont plus visibles par rapport au cas de l'eau (Figure V.8a). En outre, les fréquences caractéristiques du passage des bulles sont les mêmes quelle que soit la position de la sonde : pour XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> (Figure V.9a), des pics d'énergie sont observés à 4,4 Hz et leurs harmoniques ont pu être identifiées à 8,8 Hz et ceci pour une faible  $U_{Gsup}$  (0,002 m.s<sup>-1</sup>). Pour XG à 1 g.L<sup>-1</sup> (Figures V.10a,b), ces pics sont observés à des fréquences régulières à partir de 4,4 Hz jusqu'à 24,4 Hz (un pic chaque 4 Hz environ) pour  $U_{Gsup}$  0,002 m.s<sup>-1</sup> et un pic chaque 8 Hz (8,3 ; 16,1 et 24,4...Hz) pour  $U_{Gsup} = 0,004$  m.s<sup>-1</sup>. La première fréquence (4,4 Hz à 0,002 m.s<sup>-1</sup>) correspond donc à la fréquence de passage des bulles et les autres fréquences (8,3 ; 12,2 ; 16,6 ; 20,5 ; 24,4 Hz) correspondent à ses harmoniques. Ces fréquences caractéristiques ont été également observées avec l'évolution temporelle de nombre de Sherwood pour ces fluides (cf. Partie 2). En augmentant la  $U_{Gsup}$ , la fréquence de passage des bulles va augmenter, par conséquent les pics deviennent de plus en plus rapprochés et difficilement repérables en raison de l'augmentation de la vitesse de bulles, due à la coalescence de celles-ci. Cette constatation peut être clairement observée dans le régime transitoire à partir de  $U_{Gsup} = 0,007$  m.s<sup>-1</sup> pour les deux solutions (figures V.9c,d et V.10c,d). Cependant, à 0,012 m.s<sup>-1</sup>, des petits pics d'énergie peuvent être observés à 4,4 Hz (pour P2, P3 et P7) et 6,8 Hz (pour P3, P4 et P7) (Figure V.9d) dans le cas de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> et qui pourrait correspondre aux macrostructures qui caractérisent ce régime d'écoulement.

En régime hétérogène (0,020 et 0,030 m.s<sup>-1</sup>), de nombreux pics d'énergie sont présents pour le XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> (Figures V.9e,f) : par exemple, des pics réguliers sont observés à 2,92, 4,39 et 6,34 Hz dans les positions P3 (située en haut) à  $U_{Gsup} = 0,020$  m.s<sup>-1</sup> (Figure V.9e) ; dans les positions P5 et P7, d'autres pics sont observés à des fréquences plus élevées (entre 6 et 8 Hz). Ces pics demeurent présents même au débit d'air le plus élevé (Figure V.9f). Ces pics peuvent être attribués aux oscillations du panache central qui caractérisent le régime d'écoulement hétérogène (Olmos et al., 2003b). En revanche, pour la solution XG à 1 g.L<sup>-1</sup> (Figures V.10e,f), on constate une réduction du nombre de pics clairement identifiables par rapport à la solution moins concentrée (XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>) dans le régime hétérogène.

Pour ces fluides non-Newtoniens (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>), contrairement au cas de l'eau, l'identification d'une pente représentative est plus complexe, surtout à faible  $U_{Gsup}$  (Figures V.9a et V.10a et b). Cela est dû au caractère peu énergétique de l'écoulement et au fait que la phase liquide est principalement influencée par le passage des bulles uniquement dans leurs sillages. Pour ces fluides, il est possible d'identifier une pente représentative aux débits d'air correspondant aux régimes transitoire et hétérogène (Figures V.9 et V.10). De manière similaire à ce que l'on observe avec l'eau, une pente de -5/4 est obtenue pour la XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> indépendamment du régime d'écoulement étudié (Figure V.9). Pour la XG à 1 g.L<sup>-1</sup>, une pente de -5/4 est obtenue en régime transitoire et cette valeur de pente a légèrement augmentée à -1,5 en régime hétérogène (Figure V.10).

D'autre part, dans le cas de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> (Figure V.9) et pour tous les régimes d'écoulement étudiés, il est possible de remarquer que les spectres obtenus avec les deux sondes situées en bas de colonne (P7 et P8) donnent des niveaux d'énergies plus faibles que les autres positions (P4, P5, P7 et P8) et la différence de ces niveaux entre le bas et les autres positions augmente avec la  $U_{Gsup}$ . En régime organisé ( $U_{Gsup} < 0,006 \text{ m.s}^{-1}$ ), cette observation peut s'expliquer par l'organisation imposée par l'injection d'air très contrôlée près du bas de la colonne (P7 et P8). Cette organisation particulière pourrait entraîner une réduction des niveaux d'énergies observés près du bas de la colonne par rapport aux autres positions, où les effets de cette organisation pourraient être atténués (Figure V.9). Dans les régimes transitoire et hétérogène, le phénomène de coalescence des bulles (plus prononcé en haut et au centre qu'en bas de la colonne) contribue à renforcer cette différence des niveaux d'énergies. Pour la solution de XG à 1 g.L<sup>-1</sup> (Figure V.10), aucune différence significative en termes de niveaux d'énergie n'a pu être observée entre les différentes positions de mesure. Cette observation est cohérente avec les résultats précédents obtenus lors de l'analyse de l'énergie fluctuante, comme le montre la figure V.6.

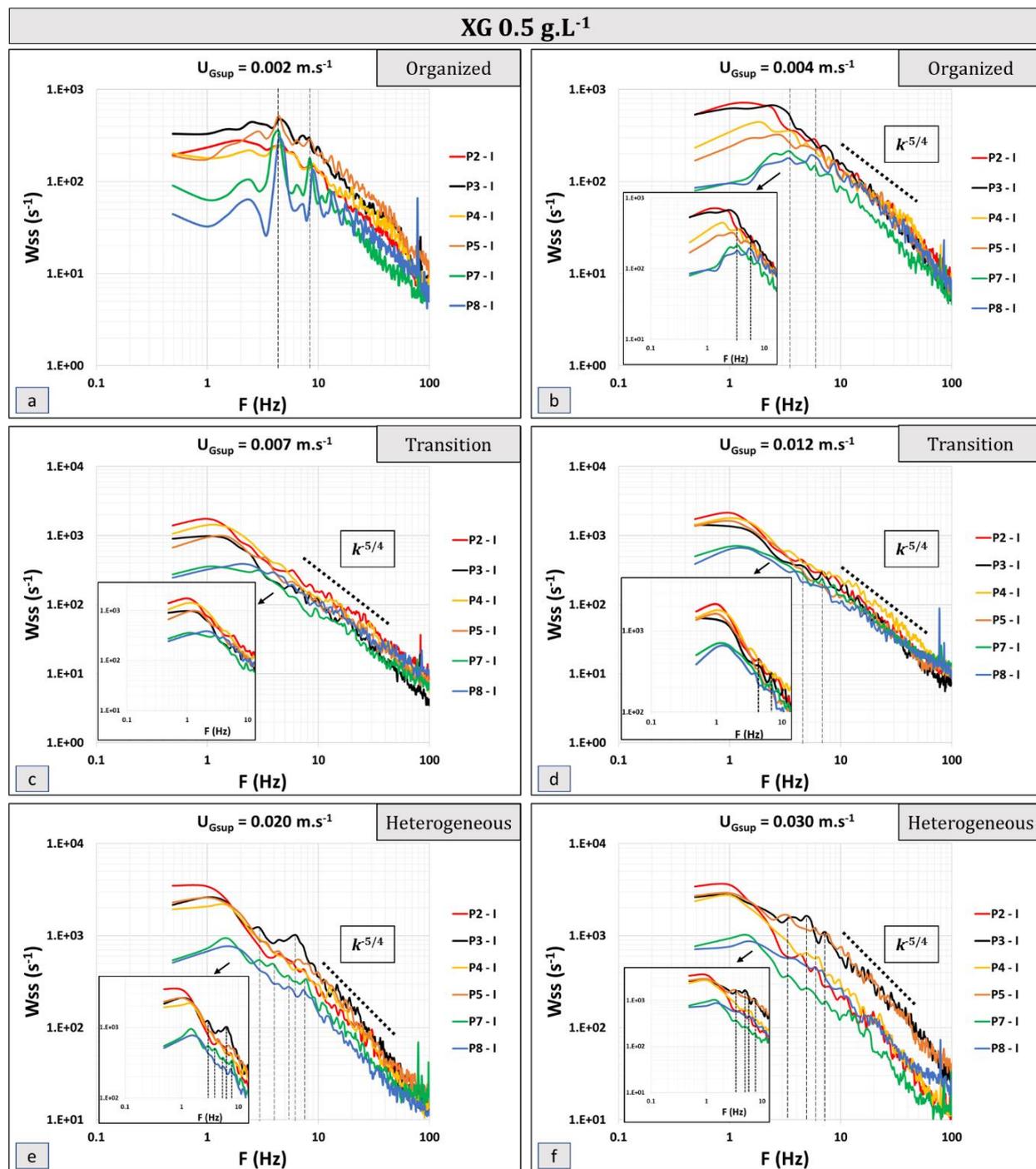


Figure V. 9 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour la solution de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup>

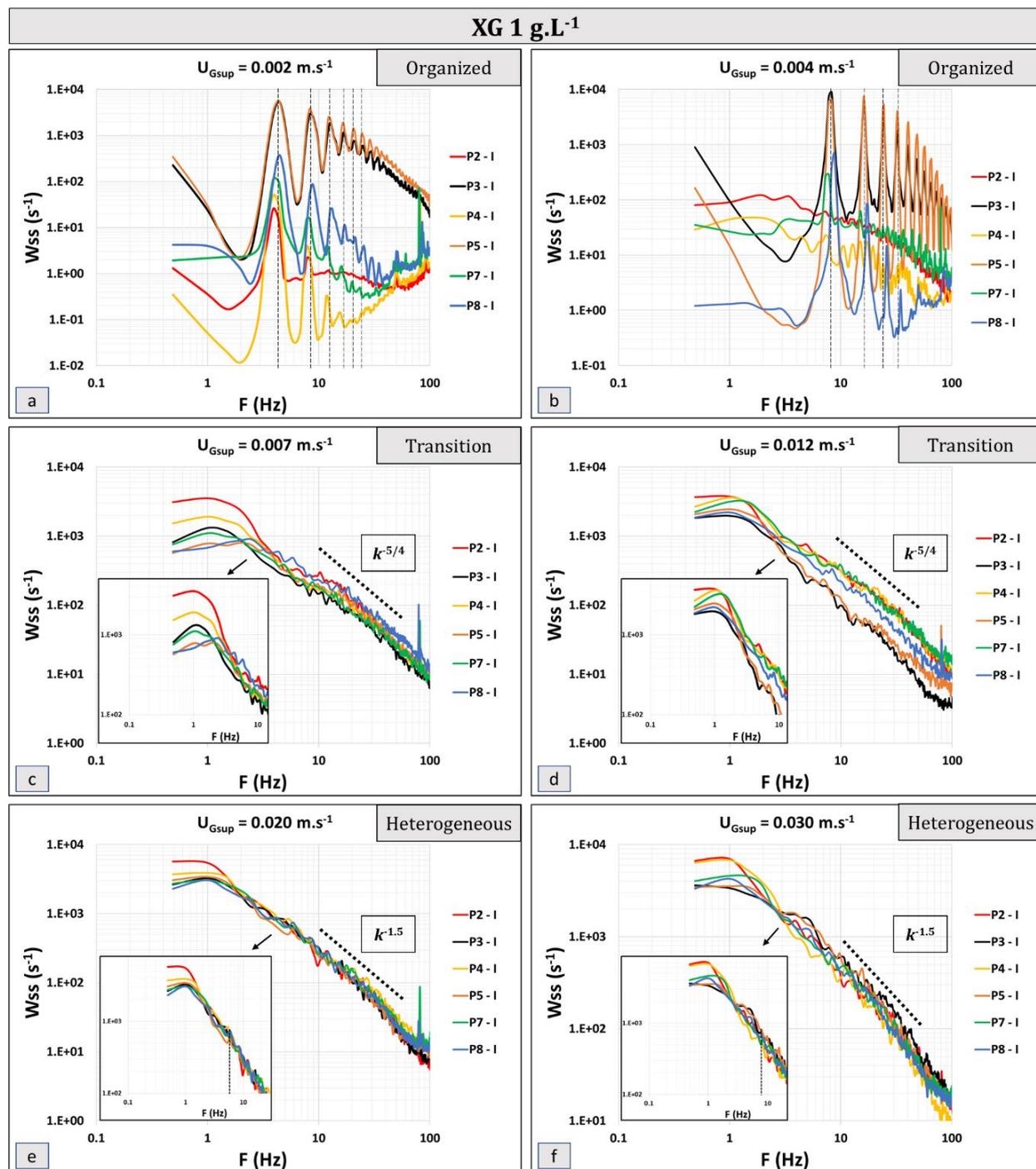


Figure V. 10 : Densités spectrales du gradient pariétal de vitesse mesurées dans différentes positions dans une colonne à bulle confinée d'épaisseur 2 mm et pour différentes vitesses superficielles de gaz pour la solution de XG à 1 g.L<sup>-1</sup>

5. Comparaison des valeurs du cisaillement pariétal avec la littérature

De nombreuses études ont cherché à éliminer le biofilm ou du moins à limiter son développement sur les parois de l'équipement (Lelièvre et al., 2022 ; Blel et al., 2009 ; Pechaud et al., 2012 ; Fanesi et al., 2021 ; Thobie et al., 2022). Il convient de souligner que cette question a été principalement abordée pour les biofilms bactériens et que les études portant sur les biofilms photosynthétiques sont limitées. Ainsi, une certaine contradiction quant à l'effet de la contrainte de cisaillement sur ces biofilms a pu être remarquée. Dans l'étude de Thobie et al. (2022), aucune des conditions de bullage testées n'était efficace pour détacher les premières couches du biofilm de microalgues, également appelées couches de conditionnement. Certaines conditions de bullage ont même tendance à accélérer le développement du biofilm. Ceci a été expliqué dans la littérature par la génération de frottement contre les parois qui favorise la consolidation du biofilm, et d'autre part, par l'apport de nutriments nécessaires à son développement, grâce aux échanges convectifs entre le milieu de culture et les couches qui adhèrent à la paroi (Thobie et al., 2022).

Parmi les recherches consacrées à la prévention du développement de biofilm photosynthétique, il convient de mentionner l'étude de Belohlav et al. (2020). Dans cette étude, la microalgue *Chlorella vulgaris* à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  a été cultivée dans un PBR de type flat-panel et la contrainte de cisaillement a été générée par le débit du milieu de culture ( $45 \text{ L.min}^{-1}$  correspond à  $Re = 2000$ ). Ces auteurs ont réussi à identifier une valeur critique de contrainte de cisaillement de  $0,2 \text{ Pa}$ , à partir de laquelle il devient possible de prévenir le début de formation du biofilm à une échelle macroscopique. Dans le contexte de notre étude actuelle, si on veut fonctionner à faible vitesse superficielle de gaz (régime homogène pour l'eau) pour éviter le stress cellulaire, la valeur de contrainte de cisaillement moyen obtenue semble être plus faible que cette valeur critique obtenue par Belohlav et al. (2020). Dans nos conditions de fonctionnement, pour avoir cette valeur critique en utilisant le bullage, il est nécessaire de travailler à  $U_{Gsup} \approx 0,012 \text{ m.s}^{-1}$  (régime transitoire) dans le cas de l'eau. D'autre part, d'après Belohlav et al. (2020) le passage vers un mode de culture continu permet d'éviter la formation d'un biofilm, ou bien sa rupture et son élimination, en raison du cisaillement généré par l'écoulement du milieu de culture. En revanche, Fanesi et al. (2021) ont constaté que les biofilms développés dans des cellules d'écoulement (*Flow-cells* de  $4 \times 40 \times 1 \text{ mm}$ ) et soumis à la plus faible contrainte de cisaillement testée ( $0,001 \text{ Pa}$ , correspond à un débit de milieu de culture égale à  $50 \mu\text{L.min}^{-1}$ ) ont pu être arrachés sous ces conditions. La cohésion des biofilms

était hétérogène, ce qui se traduisait par une couche basale forte (près du substrat) et des couches superficielles moins consolidées. Les biofilms cultivés à 0,0065 et 0,011 Pa (300 et 500  $\mu\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$  de milieu de culture) sont restés principalement intacts, plus épais et produisent davantage de biomasse, probablement en raison d'une réponse biologique pour résister à la contrainte de cisaillement (Fanesi et al., 2021). La gamme de contrainte du cisaillement moyen obtenue dans ce présent travail (entre 0,05 et 0,25 Pa pour l'eau) semble être beaucoup plus élevée par rapport à celle utilisée par Fanesi et al. (2021). Ceci indique qu'en cas du développement de biofilm sur les parois du PBR dans nos conditions, ce biofilm pourrait devenir plus résistant et plus difficile à détacher.

Pechaud et al. (2012) ont montré qu'en dessous d'une valeur de contrainte de cisaillement de 2,5 Pa, le détachement du biofilm microbien (populations microbiennes hétérotrophes aérobies) est prédominant. Cependant, en augmentant cette contrainte de cisaillement, une compression et donc une consolidation du biofilm se produisent. Dans cette dernière étude, trois plages de contrainte de cisaillement peuvent être mises en évidence : (i) pour des valeurs allant de 0,01 à 0,3 Pa, le détachement du biofilm a fortement et brusquement augmenté pour atteindre 55% de la masse détachée, accompagnée d'une diminution équivalente de 60% de l'épaisseur ; (ii) pour des valeurs allant de 0,3 à 2,5 Pa, le détachement a continué d'augmenter, mais pas au même rythme : un détachement maximal de 78% de la masse initiale du biofilm a été atteint et l'épaisseur a été réduite d'environ 80% ; (iii) pour des valeurs supérieures à 2,5 Pa, le détachement de 78% de la masse du biofilm est resté stable tandis que l'épaisseur du biofilm continuait de diminuer. Les conditions de bullage appliquées dans la présente étude se situent dans la première plage de contrainte de cisaillement (0,01-0,3 Pa), ce qui suggère qu'en cas de développement du biofilm, un détachement maximal de 55% du biofilm pourrait être attendu dans nos conditions, bien évidemment si on suppose que la formation de ce biofilm est effectuée dans les mêmes conditions hydrodynamiques.

D'un autre côté, lors des études de nettoyage des équipements agroalimentaires souillés par des spores de la bactérie *Bacillus cereus*, Lelièvre et al. (2002) et Blel et al. (2009) ont montré qu'il est préférable d'avoir de fortes fluctuations du taux de cisaillement près des parois que de fortes contraintes moyennes de cisaillement. Cette observation est en accord avec les résultats obtenus par Thobie et al. (2022) pour les biofilms photosynthétiques où les petites bulles (conditions non confinées), qui oscillent dans le canal, créent plus de perturbations au niveau de la paroi. Cela provoque le détachement des couches superficielles du biofilm, contrairement

aux bulles aplaties (conditions confinées) qui ont tendance à compresser le biofilm et le rendre plus dense (Thobie et al., 2022a). Par conséquent, dans cette étude, où la taille de bulles est supérieure à l'entrefer de PBR ( $d_b/e > 1$ ), une fois le biofilm commence à se développer sur les parois du PBR, il est probable que ce biofilm puisse être compacté par le passage des bulles très confinées (Thobie et al., 2022) et devienne plus difficile à arracher.

En résumé, il est difficile de tirer des conclusions définitives à partir de ces travaux, et cela souligne l'importance de prendre en compte divers facteurs, tels que les conditions spécifiques du système, les espèces microbiennes étudiées, et les méthodes expérimentales, lors de la compréhension de l'impact de la contrainte de cisaillement sur les biofilms. Cependant, il est clair que l'arrachement d'un biofilm déjà installé sur une surface inerte dépend des conditions de son implantation, en particulier l'hydrodynamique. En effet, il est plus difficile d'arracher un biofilm installé sous conditions dynamiques, ce qui lui confère une structure plus compacte, que le biofilm mis en place en conditions statiques où la cohésion entre ces couches est très faible. Des études complémentaires sont actuellement en cours au laboratoire LGPM (CentraleSupélec) dans le cadre du projet ALLIGATOR (Fanesi et al., 2022), dans le but d'orienter les stratégies de prévention et de gestion des biofilms photosynthétiques dans des conditions proches de la culture. Plus précisément, ces études permettront d'acquérir davantage de connaissances expérimentales sur l'organisation des biofilms de microalgues, notamment en ce qui concerne leur architecture, leur composition biochimique et leur activité métabolique. De plus, elles contribueront à l'élaboration de modèles prédictifs avancés pour une compréhension plus réaliste de ces systèmes complexes.

## 6. Conclusion et perspectives

Ce chapitre a porté sur la caractérisation du cisaillement pariétal (composantes moyenne et fluctuante) dans une colonne à bulles confinée d'épaisseur 2 mm en utilisant plusieurs solutions Newtonienne (eau du robinet) et non-Newtoniennes (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) et pour différents régimes d'écoulement.

Tout d'abord, l'analyse de l'évolution temporelle du nombre de Sherwood a révélé des pics périodiques qui correspondent au moment où les bulles passent à proximité ou sur la sonde, spécialement dans le cas des solutions non-Newtoniennes, principalement lorsqu'elles sont en régime organisé. La variation périodique de ce paramètre au fil du temps a permis de déterminer la fréquence à laquelle les bulles passent sur la sonde pour les faibles vitesses superficielles de

gaz et pour chaque fluide. Cependant, dans les régimes transitoires et hétérogènes, il devient complexe d'identifier ces pics en raison de la coalescence des bulles et du chevauchement des pics.

Les niveaux de cisaillement pariétal moyen et fluctuant ont été comparés à différentes positions dans la colonne. Dans le cas de l'eau, des valeurs plus élevées en bas et au centre de la colonne ont été obtenues par rapport à la partie supérieure, quel que soit le régime d'écoulement étudié. Cette observation s'explique par l'impact de la surface libre sur le ralentissement des bulles dans la région supérieure. En ce qui concerne les solutions non-Newtoniennes (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>), à faibles débits d'air, les valeurs de composantes moyennes et fluctuantes mesurées sont relativement de même ordre de grandeur quelle que soit la position de la sonde. Dans certaines positions, les valeurs élevées des composantes moyennes et fluctuantes peuvent être attribuées principalement au passage direct des bulles sur ces points de mesure. En régime transitoire et hétérogène, la solution de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> présente des valeurs plus faibles en bas qu'en haut et au centre en raison de la coalescence accrue dans la zone supérieure de la colonne. Pour la solution la plus concentrée (1 g.L<sup>-1</sup>), les composantes cisaillement moyenne et fluctuante semblent être homogènes dans ces deux régimes, quelle que soit la position de mesure.

D'autre part, la comparaison de valeurs moyennes du cisaillement pariétal entre les différentes solutions a montré que, en régimes transitoire et hétérogène, ce paramètre est plus élevé dans les fluides non-Newtoniens par rapport à l'eau et il augmente avec la viscosité de fluide. Cette tendance a été expliquée par le phénomène de coalescence des bulles qui provoque la formation de grosses poches d'air dans les solutions non-Newtoniennes. Ces grosses bulles d'air passent directement dans la majorité des positions de mesure, contrairement aux bulles qui coalescent dans l'eau et qui suivent des trajectoires oscillantes. Le film liquide plus mince dans ces fluides non-Newtoniens peut contribuer également à cette augmentation dans la composante moyenne par rapport à l'eau.

Une analyse spectrale du gradient pariétal de vitesse a permis de déterminer l'existence de structures périodiques, à la fois à des échelles macroscopiques et microscopiques, et donc fournir leurs fréquences spécifiques de passage. À faible débit, le régime homogène présente une densité spectrale de qualité, caractérisée par des pics d'énergie correspondant au passage des bulles devant la sonde de mesure. En régime transitoire, les pics sont moins observables en raison de la forte instationnarité du système. Les structures observées dans le régime

hétérogène pourraient être attribuées aux oscillations des panaches centraux ou aux vortex latéraux suivant la fréquence associée. Dans la plupart des débits étudiés, une pente de  $-5/4$ , représentant la partie dissipative de l'énergie spectrale, a été observée pour les fluides testés. Cette valeur de pente est plus faible par rapport aux études menées dans des colonnes conventionnelles. Ce constat montre que la dissipation énergétique serait moins rapide en raison du confinement. Ces conditions pourraient être considérées comme favorables contre le développement de biofilms photosynthétiques sur la paroi de PBRs intensifiés.

Enfin, la comparaison de la valeur de contrainte de cisaillement avec la littérature met en lumière des contradictions quant à l'effet de ce paramètre sur le développement du biofilm aux parois, en raison de divers facteurs et plus particulièrement les conditions hydrodynamiques durant l'installation du biofilm.

## ***Chapitre VI : Culture de la microalgue Chlorella vulgaris dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées***

---

---

### 1. Introduction

Les chapitres précédents se sont concentrés sur une caractérisation complète de l'hydrodynamique de la colonne à bulles confinée ( $e = 2$  mm) à l'échelle locale et globale. L'objectif était de mettre en évidence les phénomènes physiques qui se produisent dans ce type de contacteur gaz-liquide. Les résultats obtenus au cours de l'étude en maquette froide ont ensuite été pris en considération dans la phase de culture, dans le but d'appliquer des conditions opératoires garantissant un mélange et un transfert de matière gaz-liquide satisfaisants pour la croissance de microalgues. Cette phase de culture dans la colonne à bulles confinée a pour objectif de maximiser la productivité volumique en biomasse, estimée théoriquement en milieu confiné, pour un mode de culture continu avec la souche de microalgue *Chlorella vulgaris*. Deux épaisseurs de culture ont été étudiées dans des conditions similaires : 2 mm et 4 mm. L'objectif étant de comparer les performances en termes de production en biomasse et de formation du biofilm microalgal entre deux conformations des bulles : bulles aplaties ( $d_b/e > 1$ ) dans la colonne de 2 mm et bulles non aplaties ( $d_b/e < 1$ ) dans la colonne de 4 mm.

Comme discuté dans le chapitre I, dans des conditions de lumière contrôlées, la productivité volumique dépend de la surface spécifique éclairée du PBR, notée  $a_{light}$  (exprimée en  $m^{-1}$ ), définie par le rapport entre la surface éclairée du PBR ( $S_{light}$ ) et le volume de la culture ( $V_R$ ). Une augmentation de  $a_{light}$  augmente la productivité volumique théorique maximale du PBR (Pruvost et al., 2017). Cela peut permettre des économies d'énergie pour les processus dont la consommation d'énergie est liée au volume de la culture, tels que le mélange, le pompage, le contrôle thermique et la récolte. La technologie *Algofilm*® est un exemple d'un PBR intensifié qui présente une conception fonctionnant sur le principe de film ruisselant avec une épaisseur de culture d'environ 2 mm ( $a_{light} = 500 m^{-1}$ ). Dans ce système de culture les productivités volumiques atteinte pour *Chlorella vulgaris* peuvent aller jusqu'à  $7 g.L^{-1}.j^{-1}$  avec une concentration moyenne de biomasse de  $14 g.L^{-1}$  en mode semi-continu et sous un flux lumineux de  $270 \mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$  (Pruvost et al., 2017). De telles concentrations élevées de biomasse sont nécessaires pour assurer une absorption complète de la lumière incidente dans le film mince de

culture et ont l'avantage supplémentaire de réduire les coûts de traitement en aval pour la centrifugation et/ou la déshydratation de la récolte.

Dans cette partie, des essais de culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* ont été effectués sur deux PBRs de type colonnes à bulles avec de faibles entrefers de 2 et 4 mm. L'objectif de l'étude est de valider les concentrations et les productivités volumiques obtenues avec des modèles théoriques sous cette configuration de PBRs intensifiés et d'identifier d'éventuels défis opérationnels tels que la formation de biofilm et les différents types de limitations possibles dans ces géométries (nutriments, lumière, suraccumulation de l'oxygène dissous).

## 2. Résultats et discussion

### 2.1. Productivité volumique maximale théorique

La productivité en biomasse est une propriété essentielle de tout système de culture afin d'évaluer son rendement. Dans le domaine des microalgues, en raison de la nécessité d'une illumination de surface, la productivité volumique en biomasse, notée  $P_v$  ( $\text{g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$ ), est utilisée. Elle est liée aux caractéristiques géométriques du système de culture et en particulier à la surface spécifique éclairée  $a_{light}$ .

Dans le cas d'un PBR plat éclairé d'un seul côté (comme dans notre étude),  $a_{light}$  sera inversement proportionnelle à l'épaisseur de la culture, noté  $e$ , comme suivant :

$$a_{light} = \frac{1}{e} \quad (\text{VI.1})$$

Cornet and Dussap (2009) ont introduit des relations d'ingénierie pour estimer la productivité maximale en biomasse  $P_{v,max}$  à partir de caractéristiques liées à la souche cultivée, au système de culture et aux conditions opératoires :

$$P_{v,max} = a_{light}(1 - f_d) \rho_M M_x \overline{\Phi}'_x \frac{2\alpha}{1+\alpha} K \ln \left[ 1 + \frac{q_0}{K} \right] \quad (\text{VI.2})$$

Les paramètres de l'équation VI.2 peuvent être divisés en deux groupes. Le premier correspond aux paramètres liés à l'espèce cultivée (paramètres biologiques, qui sont presque constants pour la plupart des souches) : le rendement énergétique maximal pour la conversion des photons  $\rho_M$ , le rendement quantique moyen de la biomasse pour le schéma Z de la photosynthèse  $\overline{\Phi}'_x$  ( $\text{mol}_x.\mu\text{mol}_{hv}^{-1}$ ), la masse molaire de la souche  $M_x$  ( $\text{kg}_x.\text{mol}_x^{-1}$ ), la constante de demi-saturation de la photosynthèse  $K$  ( $\mu\text{mol}_{hv}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) et le module de diffusion linéaire  $\alpha$ ,

lié aux propriétés radiatives du microorganisme. Pour la microalgue *Chlorella vulgaris*, ces paramètres biologiques (Tableau VI.1) ont été déterminés par Souliès et al. (2016).

Tableau VI. 1 : Résumé des paramètres du modèle cinétique de *Chlorella vulgaris* (Souliès et al., 2016)

Paramètre	Valeur	Unité
$\rho_M$	0,8	-
$\overline{\Phi'_x}$	$7,8 \times 10^{-8}$	$\text{mol}_x \cdot \mu\text{mol}_{\text{hv}}^{-1}$
$\alpha$	0,9	-
$K$	110	$\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
$M_x$	0,024	$\text{kg}_x \cdot \text{mol}_x^{-1}$

Le deuxième groupe correspond aux paramètres d'ingénierie : le flux de photons incident  $q_0$  ( $\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ), la fraction volumique sombre du PBR,  $f_d$ , qui représente toute fraction volumique du PBR non éclairée en raison de la conception du système – comme par exemple lors de l'utilisation d'un réservoir de recirculation – et, la surface spécifique éclairée du PBR  $a_{\text{light}}$  ( $\text{m}^{-1}$ ).

Les surfaces éclairées des deux PBRs sont en polyméthacrylate de méthyle transparent (PMMA) avec une surface totalement éclairée (c.à.d.  $f_d = 0$ ). Les PBRs sont éclairés en continu, d'un seul côté par un panneau lumineux à LED blanches avec un  $q_0$  réglable ( $q_0$  varie entre 320 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ). Ainsi, les surfaces spécifiques éclairées  $a_{\text{light}}$  des deux PBRs sont respectivement de 500  $\text{m}^{-1}$  ( $e = 2$  mm) et 250  $\text{m}^{-1}$  ( $e = 4$  mm).

La figure VI.1 représente la productivité volumique maximale  $P_{v,\text{max}}$  théorique (calculée à partir de l'équation VI.2) pour différentes géométries de PBR avec des surfaces spécifiques éclairées  $a_{\text{light}}$  égales à 6,6 ; 33 ; 250 et 500  $\text{m}^{-1}$ , correspondant respectivement à des épaisseurs de 15 cm (*raceways*), 3 cm (PBR *airlift-1L*), 4 mm et 2 mm (colonnes à bulles utilisées dans notre étude). Ces résultats mettent en évidence l'augmentation de  $P_{v,\text{max}}$  théorique lorsque l'épaisseur du PBR diminue, c'est-à-dire lorsque  $a_{\text{light}}$  augmente. Par exemple, en réduisant l'épaisseur de culture de 15 cm à seulement 2 mm, la productivité volumique maximale théorique est multipliée par un facteur de 75 pour une intensité lumineuse égale à 320  $\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Ainsi, les valeurs de productivités volumiques expérimentales obtenues en mode continu dans les PBRs de 2 et 4 mm d'épaisseur seront comparées ultérieurement avec les valeurs théoriques représentées dans la figure VI.1 (les courbes rouge et bleu).

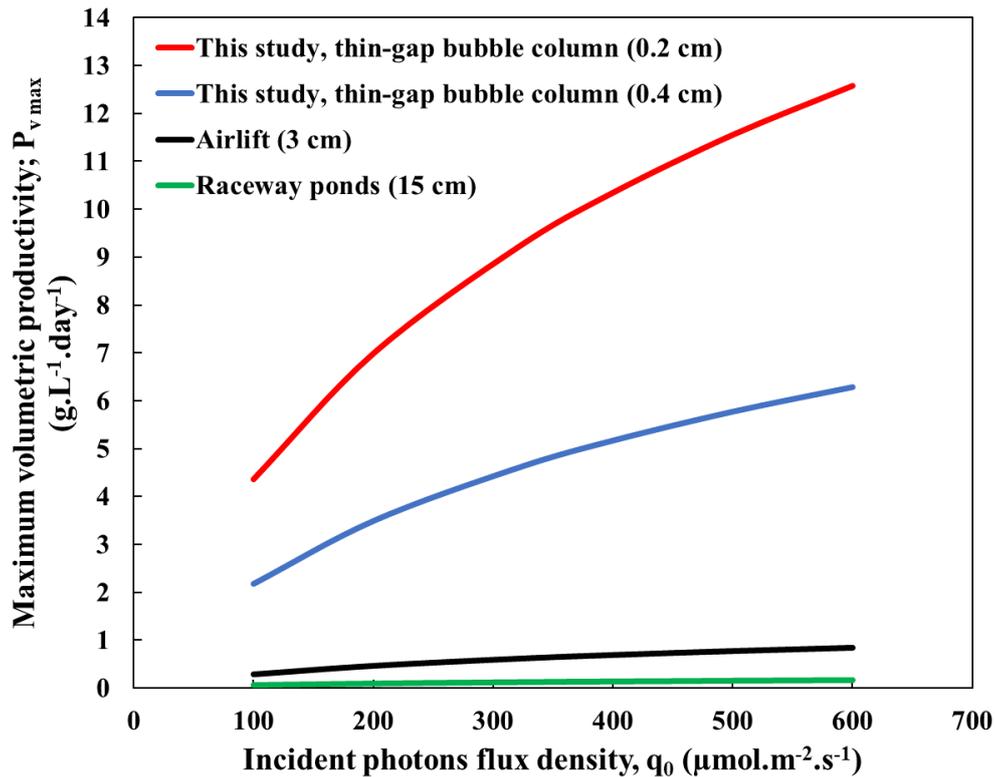


Figure VI. 1 : Productivités volumétriques maximales théoriques en biomasse en fonction des différentes intensités lumineuses incidentes  $q_0$  pour différentes géométries de PBRs allant de 6,6 à 500  $m^{-1}$  (les courbes en bleu et rouge représentent les  $P_{v,max}$  des deux PBRs utilisés dans ce travail)

## 2.2. Culture en mode semi-continu

### 2.2.1. Suivi de la concentration en biomasse

L'objectif de cette partie est d'augmenter progressivement la concentration en biomasse pour atteindre une valeur maximale stable avant de passer en mode de culture continu (cf. Partie 2.3). La concentration en biomasse cellulaire a été suivie dans les deux PBRs par les mesures de la matière sèche *via* des prélèvements quotidiens (cf. Chapitre II, partie C, 7.3.1). Le volume du prélèvement nécessaire aux différentes analyses quotidiennes est égal à 5% du  $V_{total}$  de chaque PBR.

Pendant la phase de culture en mode semi-continu et avec l'évolution de la concentration en biomasse, la concentration du milieu de culture ajouté a été ajustée progressivement (en se basant sur la stœchiométrie de la microalgue), c'est-à-dire qu'après que la culture a atteint 2  $g.L^{-1}$  de biomasse, 25% du volume total de la culture ont été prélevés et remplacés par du milieu de culture neuf permettant d'atteindre une concentration de 8  $g.L^{-1}$  de biomasse et ainsi de suite (la stratégie de l'ajout de milieu de culture est présentée dans le chapitre II, partie C, 7.4).

Il convient de souligner que le débit d'air a été modifié également en fonction de l'évolution de la concentration en biomasse : au début de la culture (faible concentration en biomasse), la culture se comporte comme un fluide Newtonien à faible viscosité (comme l'eau). À ce stade, le débit d'air était maintenu à une valeur de  $U_{Gsup} = 0,004 \text{ m.s}^{-1}$  correspondant au régime homogène pour l'eau (cf. Chapitre III). Cependant, avec l'augmentation de la concentration en biomasse et en raison des mauvais mélange et transfert gaz-liquide en régime organisé avec les fluides visqueux (cf. Chapitres III et IV), la  $U_{Gsup}$  a été modifiée à  $0,007 \text{ m.s}^{-1}$  à partir du jour 10. À ce moment-là, la concentration en biomasse était proche de  $20 \text{ g.L}^{-1}$  dans les deux PBRs. Ainsi, le comportement rhéologique de culture peut être considéré proche de celui de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ . Le but d'utiliser cette  $U_{Gsup}$ , correspondante au début de régime transitoire dans le cas des fluides visqueux, était d'améliorer relativement le temps de mélange ( $t_m$ ) et le  $k_{La}$  par rapport à ce qui a été obtenu en régime organisé ( $t_m$  de XG à  $0,5 \text{ g.L}^{-1} = 85 \text{ min}$  et  $k_{La} = 0,0018 \text{ s}^{-1}$  pour  $U_{Gsup} = 0,004 \text{ m.s}^{-1}$ ). Par conséquent, le  $t_m$  peut être réduit à de 85 à 5 min (diminution d'un facteur 17) et le  $k_{La}$  augmente de  $0,0018$  à  $0,0032 \text{ s}^{-1}$  (augmentation d'un facteur 1,8). Une autre raison justifiant cette modification du débit d'air ce jour-là est liée à une observation faite sur les maquettes : à partir de ce jour, il a été remarqué que certains capillaires d'injection d'air commencent à ne plus buller, ce qui a comme conséquence des zones non agitées et non mélangées dans les PBRs.

La figure VI.2 présente l'évolution de la concentration en biomasse en fonction du temps de culture ainsi que les jours de prélèvements (5% ou 25% du  $V_{total}$ ) et de l'ajout des différentes concentrations de milieu de culture du PBR 2 mm (Figure VI.2a) et du PBR 4 mm (Figure VI.2b).

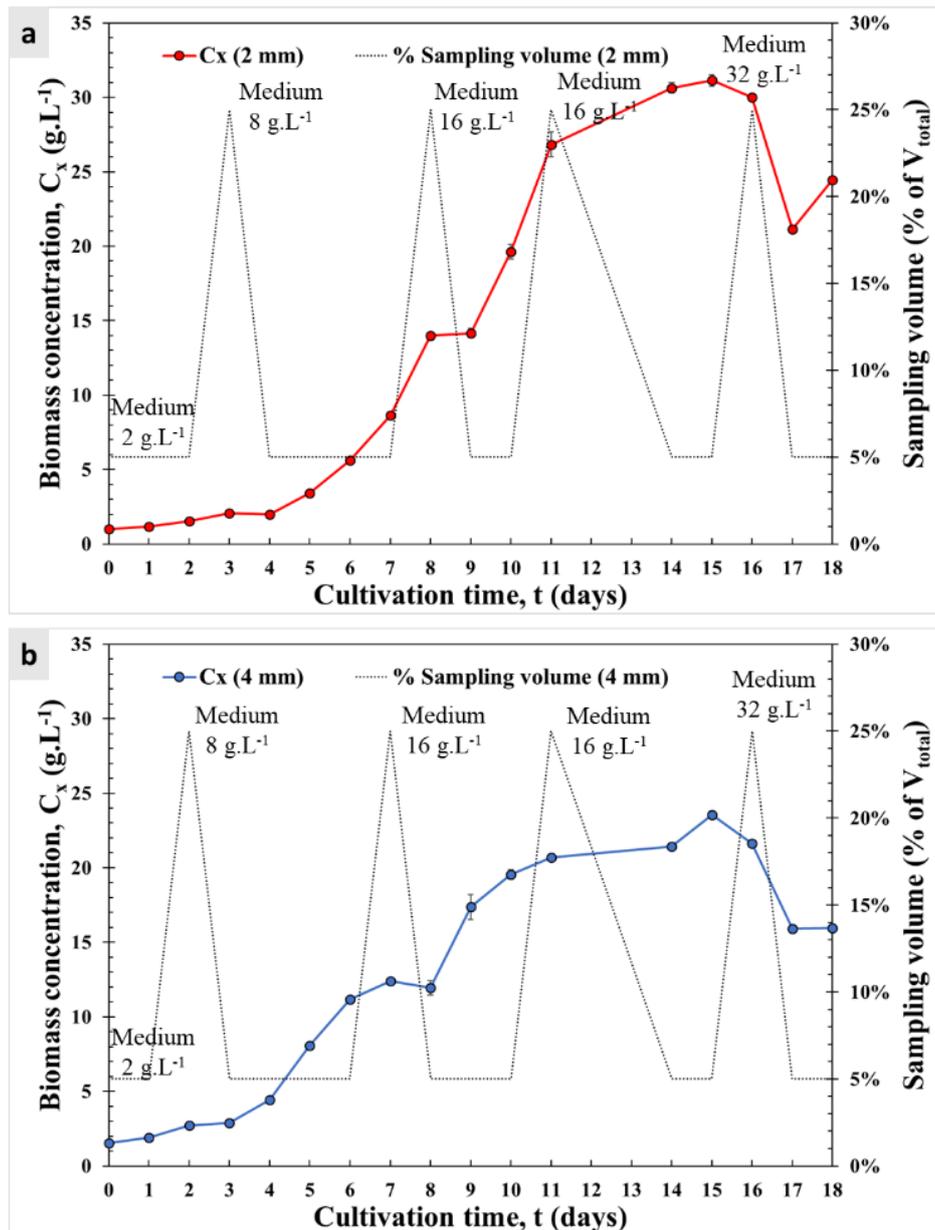


Figure VI. 2 : Evolution de la concentration en biomasse et du pourcentage de soutirage et d'ajout de milieu de culture au cours du temps : (a) PBR de 2 mm et (b) PBR de 4 mm

Après chaque suivi de la concentration cellulaire, l'intensité de la lumière incidente a été modifiée en fonction de l'évolution de la biomasse, dans le but d'optimiser la quantité de lumière accessible à la culture et ceci en se basant sur une valeur de MRPA optimale égale à  $8 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  (valeur qui appartient à la gamme optimale de MRPA pour *Chlorella vulgaris*). En effet, plus la concentration en biomasse est importante, plus la culture a besoin de lumière pour éviter le phénomène de photolimitation. Ces valeurs de flux de photons sont représentées sur la figure VI.3a.

La comparaison entre les performances de deux PBRs est illustrée sur la figure VI.3 qui représente l'évolution temporelle de la concentration en biomasse  $C_x$  (en  $\text{g.L}^{-1}$ ), l'intensité lumineuse appliquée (Figure VI.3a) et la productivité en biomasse  $P_v$  (en  $\text{g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$ ) (Figure VI.3b) pour les deux PBRs fonctionnant en mode semi-continu. Dans ces conditions de culture, des concentrations maximales en biomasse de  $31,1 \text{ g.L}^{-1}$  (à  $\Delta q = 475 \mu\text{mol}_{\text{hv}}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) et  $23,5 \text{ g.L}^{-1}$  (à  $\Delta q = 670 \mu\text{mol}_{\text{hv}}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) ont été atteintes après environ 15 jours de culture, respectivement pour les PBRs de 2 et 4 mm. Les concentrations en biomasse obtenues sont supérieures dans le PBR de 2 mm, ce qui confirme l'intérêt de réduire l'épaisseur de culture (augmenter ainsi  $a_{\text{light}}$ ). Ces valeurs de  $C_x$  sont comparables à celles obtenues avec la technologie intensifiée *AlgoFilm* (Le Borgne, 2011), où une concentration en biomasse maximale de  $31 \text{ g.L}^{-1}$  a été atteinte après 20 jours de culture sous une intensité  $q_0 = 120 \mu\text{mol}_{\text{hv}}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (avec une limitation en lumière à la fin de culture). Les concentrations de biomasse obtenues dans cette étude sont également supérieures à celles observées dans un PBR classique de type *airlift* ( $e = 3 \text{ cm}$ ), où les concentrations maximales variaient entre 1 et  $5 \text{ g.L}^{-1}$  en fonction des conditions opératoires étudiées (Pruvost et al., 2017).

La figure VI.3a montre également que les courbes des flux lumineux (en pointillé) suivent la tendance des concentrations en biomasse. Ce constat est logique car une augmentation de la concentration nécessite une intensité lumineuse adaptée pour rester toujours en condition optimale d'absorption de la lumière avec un MRPA proche de  $8 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ .

Au-delà des concentrations maximales atteintes après 15 jours de culture, une baisse progressive a été observée jusqu'à  $21,1 \text{ g.L}^{-1}$  et  $15,9 \text{ g.L}^{-1}$  dans le PBR de 2 mm et 4 mm, respectivement. L'ajout du milieu de culture concentré (pour une concentration théorique en biomasse de  $32 \text{ g.L}^{-1}$ ) le jour 16 a permis à la biomasse de se stabiliser, dans le PBR de 4 mm, ou ré-augmenter, pour le PBR de 2 mm, jusqu'au dernier jour de mode semi-continu. Ainsi, cette diminution en biomasse pourrait être expliquée par une ou plusieurs limitations possibles dans les paramètres de croissance, à savoir la lumière, l'inhibition suite à l'accumulation de l' $\text{O}_2$  dissous ou la limitation en nutriments. Ce point est vérifié et discuté dans les paragraphes suivants avec les analyses des pigments, les dosages des éléments nutritifs par chromatographie ionique ainsi que le suivi des signaux d' $\text{O}_2$  enregistrés *via* la sonde d' $\text{O}_2$ .

Il est intéressant de noter que, dans les conditions de culture en mode semi-continu, les productivités volumiques maximales (Figure VI.3b) ont été observées entre le jour 9 et 11 pour

les deux PBRs ( $P_{v,max}$  ( $e = 2$  mm) = 7,2 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> au jour 11 et  $P_{v,max}$  ( $e = 4$  mm) = 5,4 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> au jour 9).

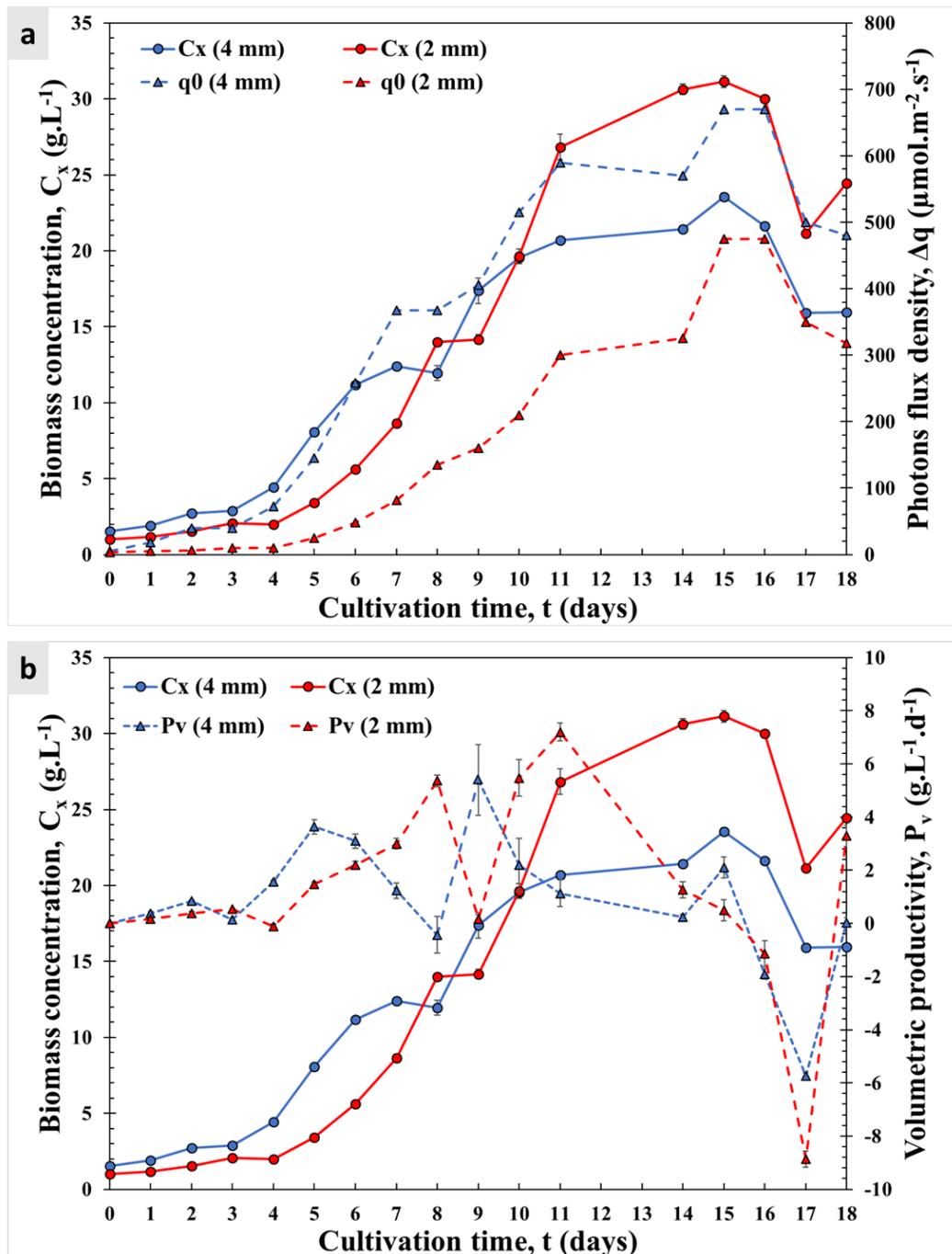


Figure VI.3 : Evolution de : (a) la concentration en biomasse et l'intensité lumineuse et (b) la concentration en biomasse et la productivité volumique, au cours du temps dans les deux PBRs

### 2.2.2. Suivi de la teneur en pigments et indice de stress

Pour vérifier l'état de stress de la culture, des mesures quotidiennes de la concentration en pigments ont été effectuées durant la phase de culture en mode semi-continu et ont permis de

remonter à l'indice de stress dans le PBR 2 mm (Figure VI.4) et du PBR 4 mm (Figure VI.5). Cet indice est défini comme le rapport des densités optiques (OD) de l'extrait de pigment des cellules aux longueurs d'onde 480 et 665 nm (Heath et al., 1990). C'est un indicateur du « statut nutritif » des cellules tel que proposé par Heath et al. (1990).

Les figures VI.4 et VI.5 présentent les résultats des analyses pigmentaires (Chl a, b et PPC) effectuées, ainsi que le calcul de l'indice de stress ( $SI = OD_{480}/OD_{665}$ ), respectivement dans les PBRs de 2 mm et 4 mm. Ces résultats montrent, qu'à partir du jour 11, un léger stress a commencé ( $SI > 1$ ) dans le PBR de 2 mm (Figure VI.4). Pendant cette période de stress (11 j  $< t < 18$  j), le pourcentage de Chl 'a' a diminué de 65% à 59% (m/m), tandis que le pourcentage de caroténoïdes (PPC) a augmenté (passant de 16% à 21,5% (m/m) entre le jour 0 et le jour 11), ce qui peut refléter un début de stress de la culture dans ce PBR. Dans le PBR de 4 mm, les valeurs de SI sont restées inférieures à 1 et la composition pigmentaire semble être identique (Figure VI.5a) tout au long de la période de culture en mode semi-continu.

Dans les deux PBRs, une diminution de la teneur en pigments a été constatée au fil du temps (Figures VI.4b et VI.5b), principalement au niveau de la Chl 'a' (passant de 4,5% à 1,3% dans le PBR de 2 mm et de 4,4% à 1,4% dans le PBR de 4 mm). Cette observation peut s'expliquer par le phénomène de photoadaptation (Artu, 2016) : les pigments photosynthétiques absorbent la lumière nécessaire à la photosynthèse. Lorsque les microalgues sont exposées à une intensité lumineuse trop élevée, la quantité de photons absorbée par la culture devient excessive, ce qui incite les microalgues à réduire leur concentration en pigments pour s'adapter. Ainsi, en comparant ces résultats avec la concentration cellulaire de biomasse au fil du temps (Figure VI.3a), on peut observer que lorsque la concentration en biomasse est faible, les microalgues produisent une quantité importante de pigments nécessaires à leur croissance, car l'intensité lumineuse appliquée à la culture est faible au début de la culture ( $q_0 < 10 \mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ). En revanche, lorsque la concentration en biomasse atteint un niveau élevé, l'intensité lumineuse augmente, ce qui pousse les microalgues à réduire leur concentration en pigments afin de s'adapter et d'éviter le phénomène de photoinhibition. Il est possible de conclure que même si la teneur totale en pigments a changé de manière significative au cours des transitions lumineuses successives, le profil pigmentaire semble être le même (66 % de Chl 'a', 18% de Chl 'b' et 16 % de PPC) dans les deux PBRs à l'exception de quelques jours de stress dans le PBR de 2 mm (Figure VI.4a). Cette stabilité dans le profil pigmentaire indique notamment qu'aucun stress lumineux marqué n'a été observé, ce qui induirait une augmentation de la

concentration relative en caroténoïdes, effet bien connu de la réponse au stress lumineux (Bonnanfant, 2020). Cette dernière conclusion est logique puisque dans ce travail, la lumière a été adaptée suivant le MRPA permettant de travailler en condition optimale de lumière.

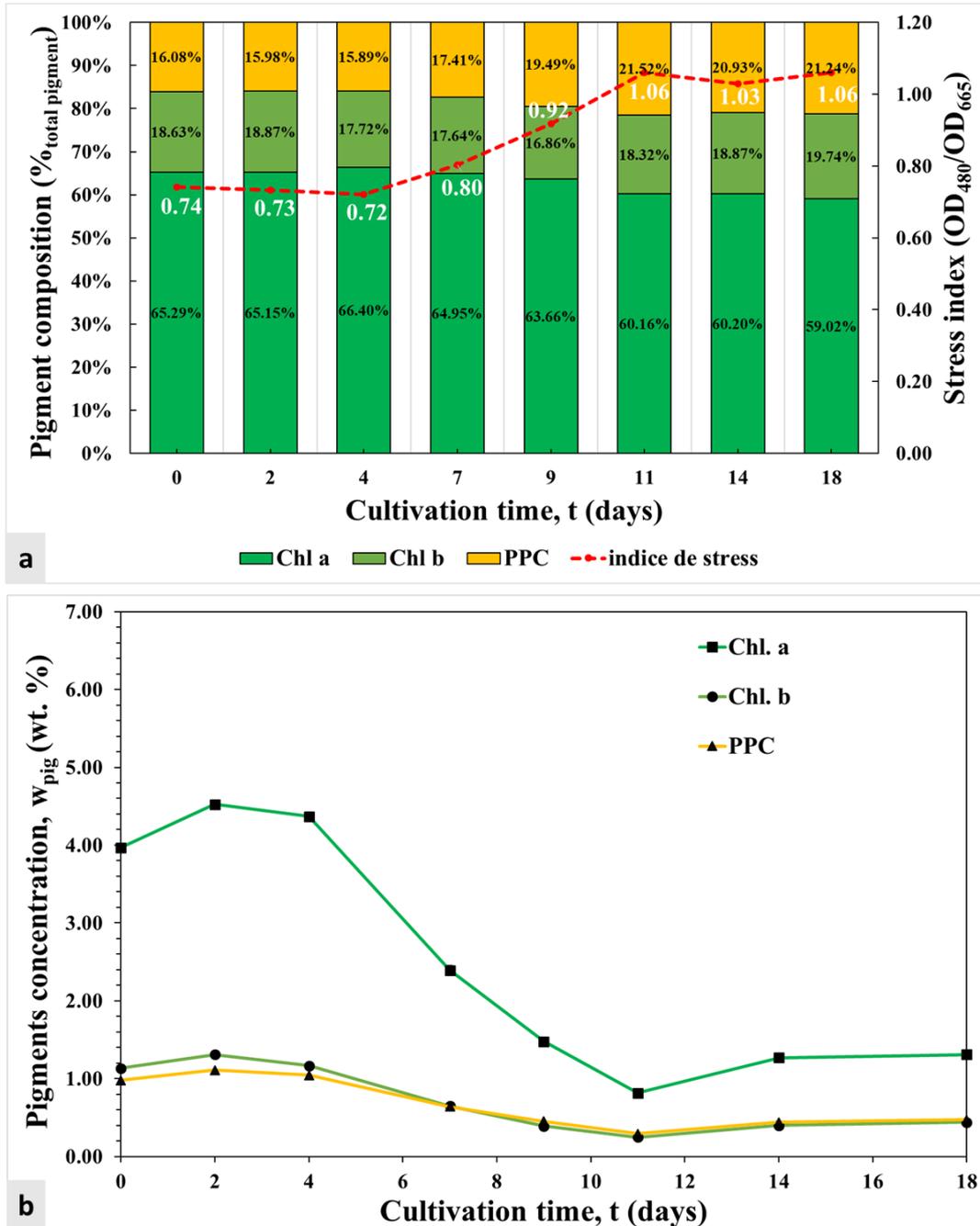


Figure VI. 4 : Evolution en fonction du temps de culture - dans le PBR de 2 mm - de : (a) la composition pigmentaire (en % de pigments totaux) et l'indice de stress ; (b) la concentration en pigments

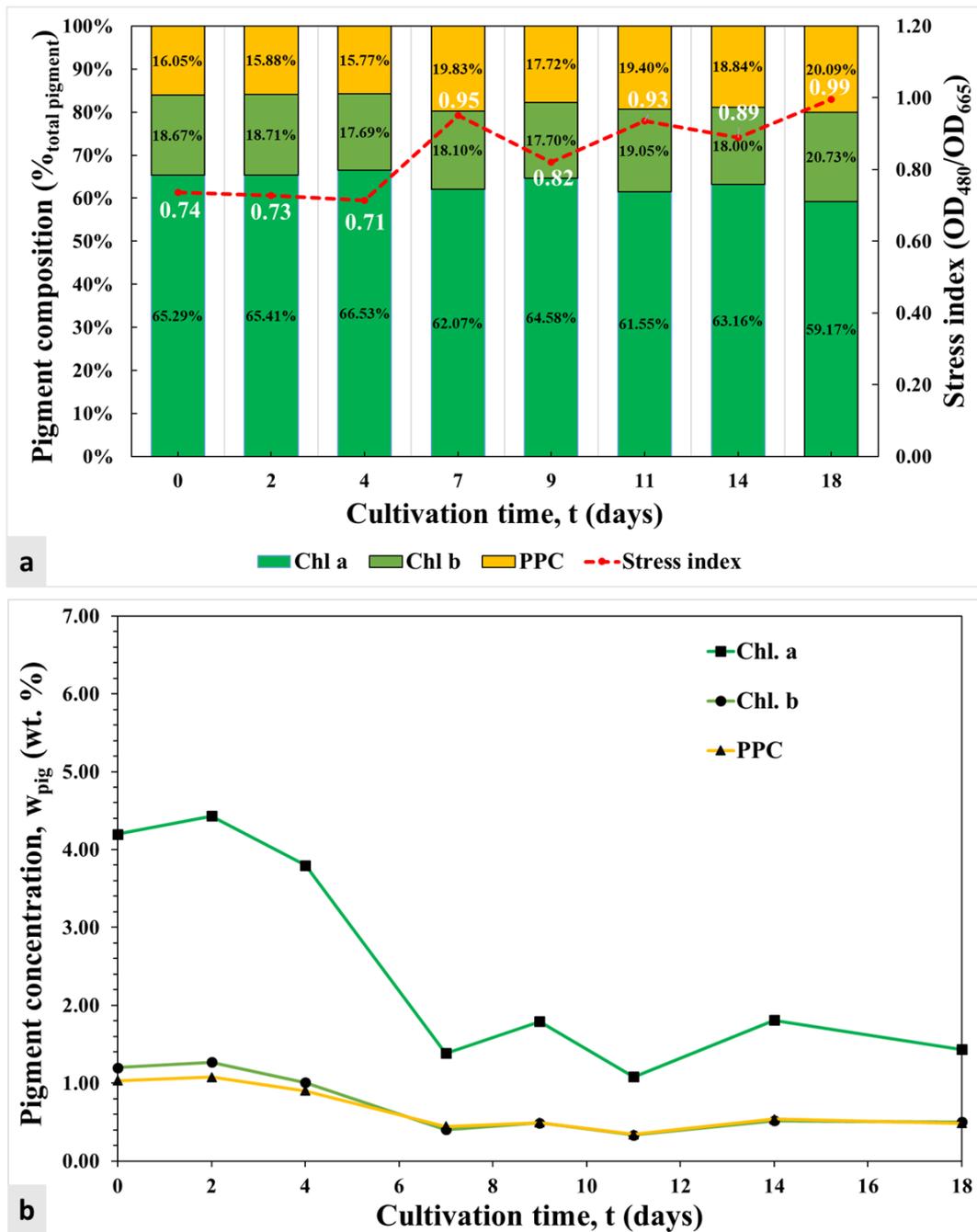


Figure VI. 5 : Evolution en fonction du temps de culture - dans le PBR de 4 mm - de : (a) la composition pigmentaire (en % de pigments totaux) et l'indice de stress ; (b) la concentration en pigments

### 2.2.3. Suivi de la concentration en O<sub>2</sub> dissous dans la culture

La figure VI.6 présente l'évolution de la concentration en O<sub>2</sub> dissous dans les deux PBRs (2 et 4 mm d'épaisseur) en fonction du temps de culture. Dans cette figure, il est possible de voir que les valeurs de concentration en O<sub>2</sub> dissous varient dans le PBR de 2 mm entre 8 (au début de la culture) et 15-17 mg.L<sup>-1</sup> (lorsque C<sub>x</sub> > 20 g.L<sup>-1</sup>). Dans le PBR de 4 mm, la concentration en O<sub>2</sub> varie entre 8 (au début de la culture) et 28 mg.L<sup>-1</sup>. Cette augmentation significative de la

concentration en O<sub>2</sub>, dans le PBR de 4 mm, peut être attribuée à la réponse de la culture 24 heures après l'ajout d'un volume de 25% d'un milieu de culture neuf de 16 g.L<sup>-1</sup>. Avant cet ajout, la croissance était stable, principalement en raison de la consommation des nutriments présents. Cependant, suite à l'apport du milieu de culture neuf concentré, la croissance a repris de manière significative. Cette reprise de la croissance s'est traduite par une augmentation marquée de la consommation de CO<sub>2</sub> et, par conséquent, par une augmentation notable de la production d'O<sub>2</sub>.

Ces valeurs d'O<sub>2</sub> dissous indiquent qu'il n'y avait pas de limitation due à l'O<sub>2</sub> dissous dans les deux PBRs, étant donné que les concentrations en O<sub>2</sub> dissous étaient toujours inférieures à 31 mg.L<sup>-1</sup>, seuil au-delà duquel la productivité en biomasse de *Chlorella vulgaris* peut diminuer en raison de l'accumulation d'O<sub>2</sub> dissous dans le PBR (Kazbar et al., 2019).

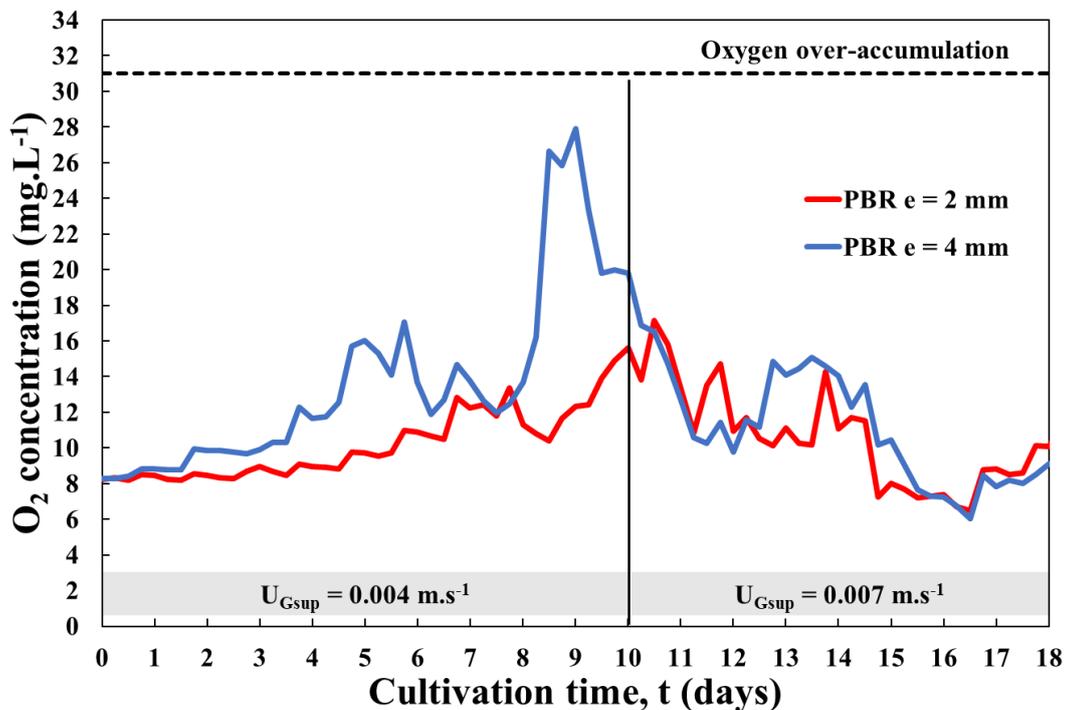


Figure VI. 6 : Signaux de concentration en O<sub>2</sub> dissous enregistrés dans la culture de 2 et 4 mm avec la sonde d'O<sub>2</sub>

#### 2.2.4. Dosage des éléments nutritifs par chromatographie ionique

De manière parallèle, des analyses quotidiennes de la composition du milieu de culture dans les PBRs ont été réalisées par chromatographie ionique. Il est important de noter, qu'en raison de contraintes techniques (problèmes de calibration et le choix de la méthode d'analyse), il n'a pas été possible de mener ces analyses simultanément avec la culture semi-continue afin

## Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées

d'adapter la composition du milieu de culture ajoutée périodiquement (lors des prélèvements et de l'ajout de 25% du volume du PBR). Cette adaptation visait à éviter toute limitation en nutriments pour les cultures. Les résultats de ces analyses serviront tout d'abord à examiner les éléments nutritifs consommés en priorité et à vérifier la présence éventuelle de limitations causées par un ou plusieurs éléments. Ensuite, l'objectif sera de recueillir des données en vue de développer ultérieurement une stratégie pour la conduite des cultures intensifiées. Cette stratégie visera à ajuster la formulation du milieu de culture en fonction des besoins spécifiques des microalgues sans accumulation d'éléments qui, à concentrations élevées, peuvent avoir un effet néfaste sur les microalgues.

Pour cela, à partir de la concentration théorique des nutriments qui composent le milieu de culture de base, les rapports théoriques entre chacun des éléments ont été calculés, puis comparés avec les rapports expérimentaux (obtenus après analyse). Le milieu est ensuite formulé de sorte que les rapports soient de nouveau proches de ceux des valeurs théoriques (cf. Tableau II.8).

Le calcul des concentrations théoriques permet de déterminer les ratios théoriques entre les nitrates, les phosphates et les sulfates, afin d'ajuster l'apport en milieu de culture selon les besoins des microalgues.

Tableau VI. 2 : Composition ionique d'un milieu BBM permettant d'atteindre 16 g.L<sup>-1</sup> de biomasse

Concentration en biomasse souhaitée [g.L <sup>-1</sup> ]		Composition du milieu	Masse [g]	Masse molaire [g.mol <sup>-1</sup> ]	Nombre de mole [mol]
16	Base	NaNO <sub>3</sub>	14,30	85,0	1,68E-01
		MgSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	1,44	246,5	5,84E-03
		CaCl <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,30	147,0	2,04E-03
		EDTANa <sub>2</sub> , 2H <sub>2</sub> O	0,80	372,2	2,15E-03
		FeSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	0,16	278,0	5,76E-04
		K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	1,60	174,2	9,18E-03
		KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1,28	136,1	9,40E-03
		NaHCO <sub>3</sub>	2,00	84,0	2,38E-02
	Additif 1	ZnSO <sub>4</sub> , 7H <sub>2</sub> O	1,78E-03	287,5	6,18E-06
		Co(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , 6H <sub>2</sub> O	3,52E-04	291,0	1,21E-06
		CuSO <sub>4</sub>	6,32E-04	159,6	3,96E-06
		H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	2,29E-02	61,8	3,70E-04
		MnCl <sub>2</sub> , 4H <sub>2</sub> O	1,45E-02	197,9	7,32E-05
Additif 2	Na <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	1,76E-03	205,9	8,55E-06	

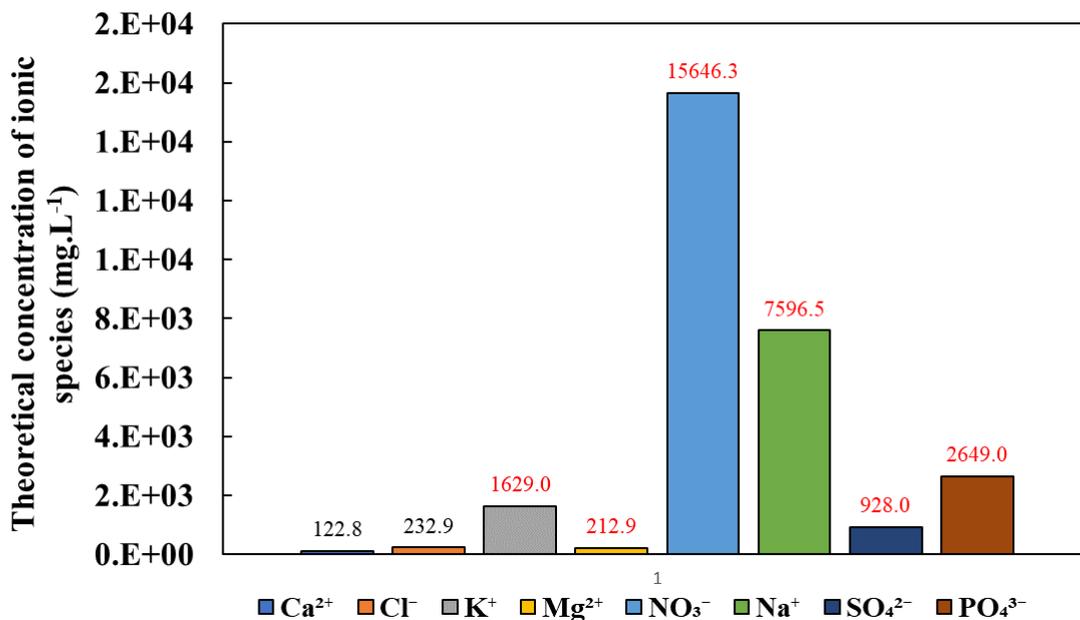


Figure VI. 7 : Concentrations des espèces ioniques qui composent un milieu BBM destiné à atteindre une concentration en biomasse de 16 g.L<sup>-1</sup> (dosage par chromatographie ionique)

Le tableau VI.2 et la figure VI.7 présentent les concentrations de chaque espèce ionique pour un milieu BBM permettant d'atteindre 16 g.L<sup>-1</sup> en biomasse. Le tableau VI.2 présente la composition détaillée de ce milieu de culture. Les concentrations des espèces ioniques qui composent ce milieu, dosées par chromatographie ionique, sont présentées dans la figure VI.7. Dans cette figure, les valeurs en rouge sont celles dépassant la concentration limite supportée par l'appareil (cf. Tableau II.4). Pour la partie analytique, les solutions ont donc été diluées.

Les concentrations réelles des espèces ioniques présentes dans les surnageants des échantillons de culture récupérés quotidiennement sont données dans la figure VI.8. Seuls les nitrates, les phosphates et les sulfates sont présentés dans cette figure et ceci pour les deux PBRs. Le moment d'ajout d'un milieu de culture neuf, correspondant à la concentration cellulaire visée, est précisé sur cette figure. Le reste des ions qui constituent le milieu de culture sont illustrés dans les tableaux VI.3 et VI.4 (pour les PBRs de 2 mm et 4 mm, respectivement).

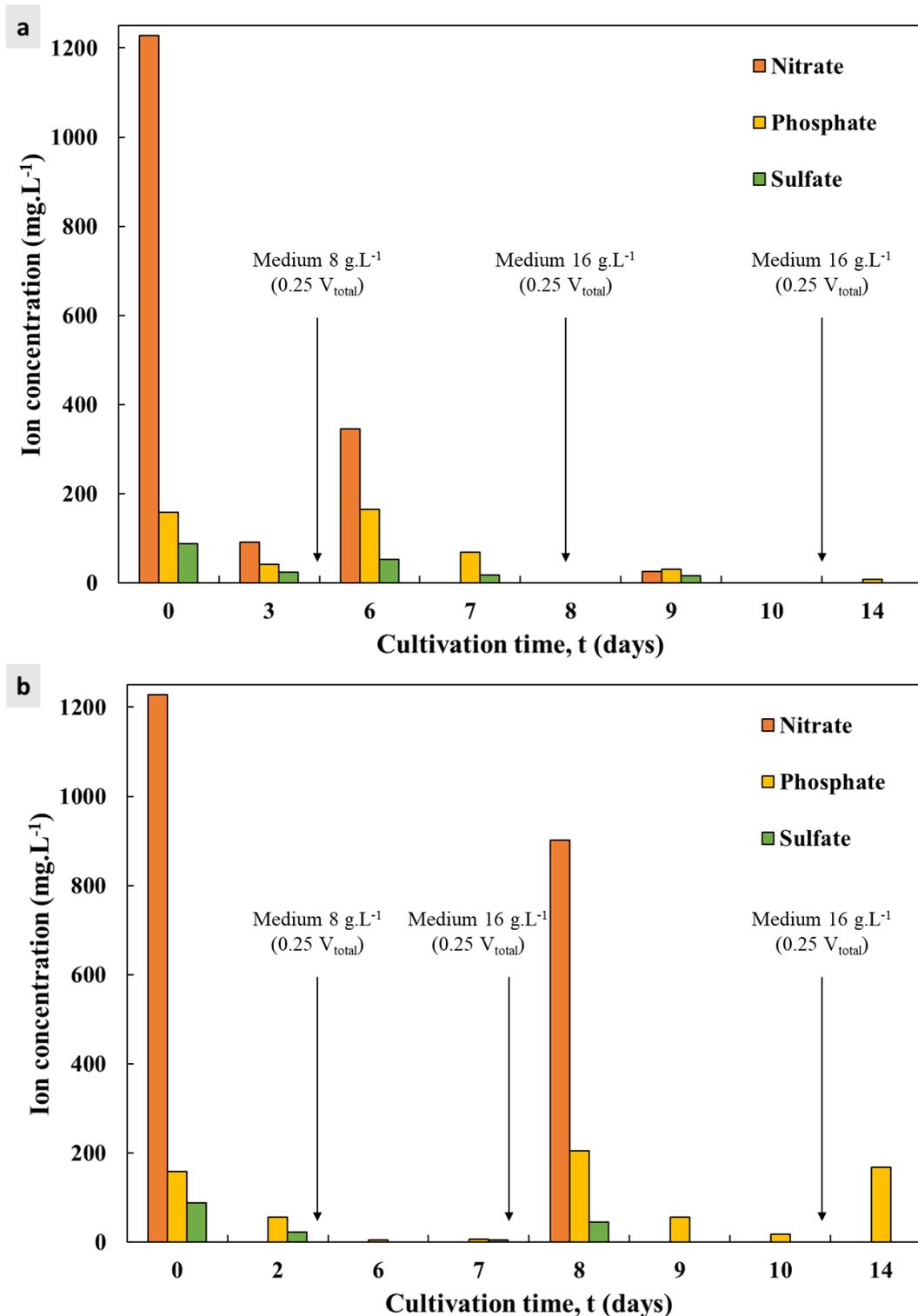


Figure VI. 8 : Evolution de la composition des surnageants de culture en ions nitrates, phosphates et sulfates (a) PBR de 2 mm ; (b) PBR de 4 mm

Dans les figures VI.8a et 8b, il est possible de voir que jusqu'au jour 9, pour les deux cultures, l'ajout de milieu nutritif neuf à un jour J a maintenu la présence de tous les nutriments jusqu'au jour J+1 (par exemple, avec l'ajout de milieu le jour 8 dans le PBR de 2 mm ou avec l'ajout de milieu le jour 7 dans le PBR de 4 mm, tous les nutriments sont toujours présents). A

## Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées

partir du jour 9, les éléments ajoutés sont rapidement consommés, à l'exception des phosphates à certains moments. Dans les deux cas, les nitrates et les sulfates sont les composés qui sont consommés le plus rapidement, même en présence d'une concentration initiale élevée dans le milieu (Figure VI.7). En conséquence, il semble que l'ajout de 25% du volume total en milieu neuf n'était pas suffisant pour maintenir une concentration adéquate de ces éléments dans le milieu de culture.

Néanmoins, il n'est pas possible de suivre réellement l'évolution de la concentration de ces trois nutriments quotidiennement puisque certaines valeurs n'ont pas pu être analysées (par exemple, les jours 4, 5, 11, 12 et 13).

La figure VI.8a montre également qu'à partir du jour 8 dans la culture de 2 mm, l'ajout du milieu de culture n'est pas suffisant pour compenser la limitation en nutriments, ce qui peut confirmer que le stress observé dans la culture du PBR de 2 mm est un stress nutritif. D'autre part, les résultats obtenus avec le PBR de 4 mm (Figure VI.8b) sont contradictoires par rapport à ce qui a été observé par les analyses des pigments (cf. Partie 2.2.2) où l'indice de stress était toujours inférieur à 1 pendant toute la durée de culture. En effet, la figure VI.8b montre que seuls les phosphates sont encore présents dans ce PBR à partir du jour 8 jusqu'à la fin de culture.

En ce qui concerne les autres espèces ioniques figurant dans les tableaux VI.3 et VI.4, la plupart de ces ions s'accumulent dans la culture avec un rythme de consommation moins rapide que celui du nitrate, phosphate et sulfate. Par exemple, la concentration en calcium  $\text{Ca}^{2+}$  a augmenté progressivement en cours de la culture de 6,38 à 33,51  $\text{mg.L}^{-1}$  dans le PBR de 2 mm (Tableau VI.3). Cette observation suggère que la quantité de  $\text{Ca}^{2+}$  dans le milieu était en excès, indiquant ainsi la nécessité d'apporter des ajustements à cet élément afin d'éviter une accumulation excessive dans la culture. Cette suraccumulation peut entraîner la formation de précipités dans la culture au fil du temps, réduisant ainsi l'accessibilité des autres éléments pour les microalgues en croissance (Karl, 2014) et pouvant induire des erreurs dans la mesure de la biomasse sèche.

Tableau VI. 3 : Evolution de la composition des surnageants de culture en éléments en fonction des ajustements en nutriments, PBR de 2 mm

<b>PBR 2 mm (concentration du reste des ions en <math>\text{mg.L}^{-1}</math>)</b>							
<b>Jour</b>	<b>F<sup>-</sup></b>	<b>Cl<sup>-</sup></b>	<b>NO<sub>2</sub><sup>-</sup></b>	<b>Na<sup>+</sup></b>	<b>K<sup>+</sup></b>	<b>Mg<sup>2+</sup></b>	<b>Ca<sup>2+</sup></b>
<b>0</b>	Ajout du milieu BBM 2 $\text{g.L}^{-1}$						

**Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées**

3	0	25,05	0	677,06	92,59	14,02	6,38
3	Ajout du milieu BBM 8 g.L <sup>-1</sup>						
6	2,74	51,96	17,44	1295,38	202,04	20,41	16,36
7	19,21	55,42	25,80	1273,74	174,24	16,73	17,23
8	49,14	59,36	26,46	1309,95	166,28	14,40	19,15
8	Ajout du milieu BBM 16 g.L <sup>-1</sup>						
9	13,80	56,85	22,01	1396,48	206,63	18,79	24,89
10	19,93	93,15	60,09	2424,29	268,75	22,37	33,16
11	Ajout du milieu BBM 16 g.L <sup>-1</sup>						
14	59,41	77,62	24,26	2199,98	262,92	12,22	33,51

Tableau VI. 4 : Evolution de la composition des surnageants de culture en éléments s en fonction des ajustements en nutriments, PBR de 4 mm

PBR 4 mm (concentration du reste des ions en mg.L <sup>-1</sup> )							
Jour	F <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>
0	Ajout du milieu BBM 2 g.L <sup>-1</sup>						
2	0	23,68	6,82	623,18	69,63	12,47	8,49
2	Ajout du milieu BBM 8 g.L <sup>-1</sup>						
6	7,97	41,30	18,11	1157,54	130,30	12,91	13,49
7	2,18	42,90	19,10	1213,05	129,02	14,09	13,69
7	Ajout du milieu BBM 16 g.L <sup>-1</sup>						
8	8,95	68,17	46,59	2079,32	321,43	32,77	28,23
9	33,41	77,50	51,62	2111,72	248,94	22,52	28,84
10	22,01	88,29	56,24	2465,51	289,49	23,59	33,26
11	Ajout du milieu BBM 16 g.L <sup>-1</sup>						
14	56,59	116,65	67,22	3467,54	480,14	31,01	43,63

Dans cette étude, étant donné qu'il n'a pas été possible de suivre quotidiennement les éléments nutritifs en raison de contraintes techniques, l'ajustement de la concentration du milieu de culture doit être basé, dans les futures cultures, sur le principe de maintenir un ratio, entre les concentrations des éléments (nitrates, phosphates et sulfates) mesurées expérimentalement ( $R_{exp}$ ), identique à celui déterminé théoriquement ( $R_{théo}$ ) en se basant sur la composition élémentaire des microalgues (à stœchiométrie égale). Par exemple, si on analyse les concentrations théoriques et expérimentales obtenues le jour 8 dans le PBR de 4 mm (Figure VI.9), pour la relation nitrates-phosphates, le  $R_{théo}$  est de 5,87 tandis que le  $R_{exp}$  est de 4,41. Ainsi, afin d'aligner ces ratios, une quantité X de nitrates doit être ajoutée, calculée comme suit :  $[NO_3^-]_{exp} = [PO_4^{3-}]_{exp} \times R_{théo} = 204,69 \times 5,87 = 1201,53 \text{ mg.L}^{-1} \rightarrow X = 1201,53 - 901,89 = 299,64 \text{ mg.L}^{-1}$ . De manière similaire, pour la relation nitrates-sulfates, cette démarche est

répétée, avec un  $R_{théo}$  de 16,89 et un  $R_{exp}$  de 20,28. En conséquence, environ 9 mg.L<sup>-1</sup> de sulfates devraient être ajoutés pour atteindre le ratio théorique souhaité.

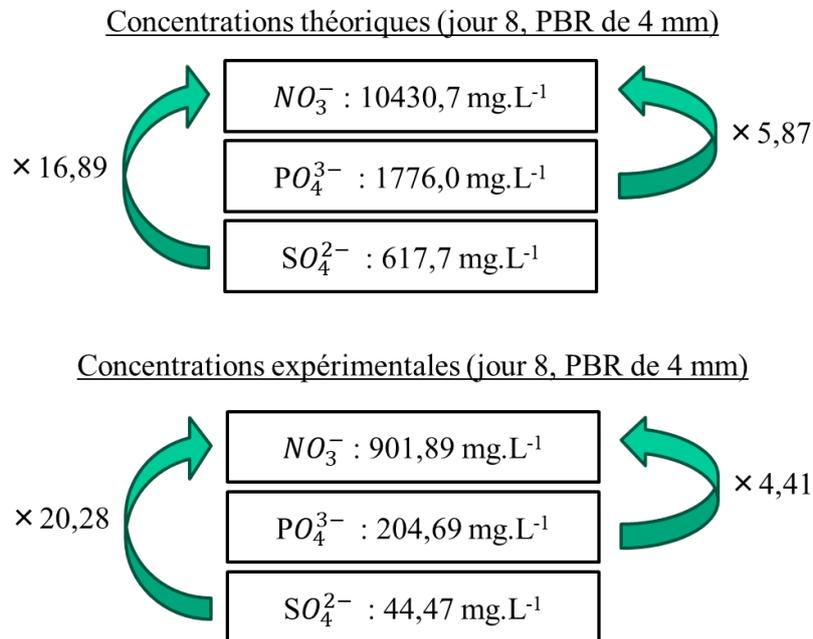


Figure VI. 9 : Rapports théoriques et expérimentaux des concentrations en nutriments du jour 8 pour le PBR de 4 mm

### 2.3. Culture en mode continu

#### 2.3.1. Détermination de la productivité volumique maximale pour différentes intensités lumineuses

En mode semi-continu, des concentrations maximales en biomasse proches de 30 g.L<sup>-1</sup> ont été atteintes dans les deux PBRs pendant 15 jours de culture. À cette concentration, la culture présente un comportement non-Newtonien, comme a été précédemment observé par Souliès et al. (2013). Suite à la stabilisation de cette concentration maximale, il a été décidé de passer en mode de culture continu.

Dans un système de culture qui fonctionne en mode continu, l'obtention d'une productivité maximale nécessite de fonctionner à la concentration optimale de biomasse  $C_{x,opt}$  qui correspond au taux de dilution optimal  $D_{opt}$  (en plus des conditions de culture conventionnelles optimales : pH, température, milieu, etc...). L'objectif de cette partie est donc de conduire une culture en continu dans des PBRs intensifiés (2 et 4 mm d'épaisseur) afin d'obtenir une productivité volumique maximale  $P_{v,max}$  pour différentes intensités lumineuses  $q_0$  (320, 400, 500 et 600  $\mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) et pour un taux de dilution fixe et optimal. D'après Le Borgne (2011),

pour la microalgue *Chlorella vulgaris*, le taux de dilution optimal  $D_{opt}$  est  $0,03 \text{ h}^{-1}$ . En parallèle avec le premier objectif, le but est d'identifier l'intensité lumineuse à partir de laquelle la productivité volumique diminue à cause du phénomène de photoinhibition, c.à.d. lorsque l'intensité lumineuse est trop importante et que la photosynthèse décroît avec l'augmentation de l'irradiance reçue par les microalgues (le phénomène de saturation de la photosynthèse). Pour chaque intensité lumineuse testée, une fois que la concentration en biomasse est stabilisée (environ une semaine), la productivité volumique moyenne est calculée.

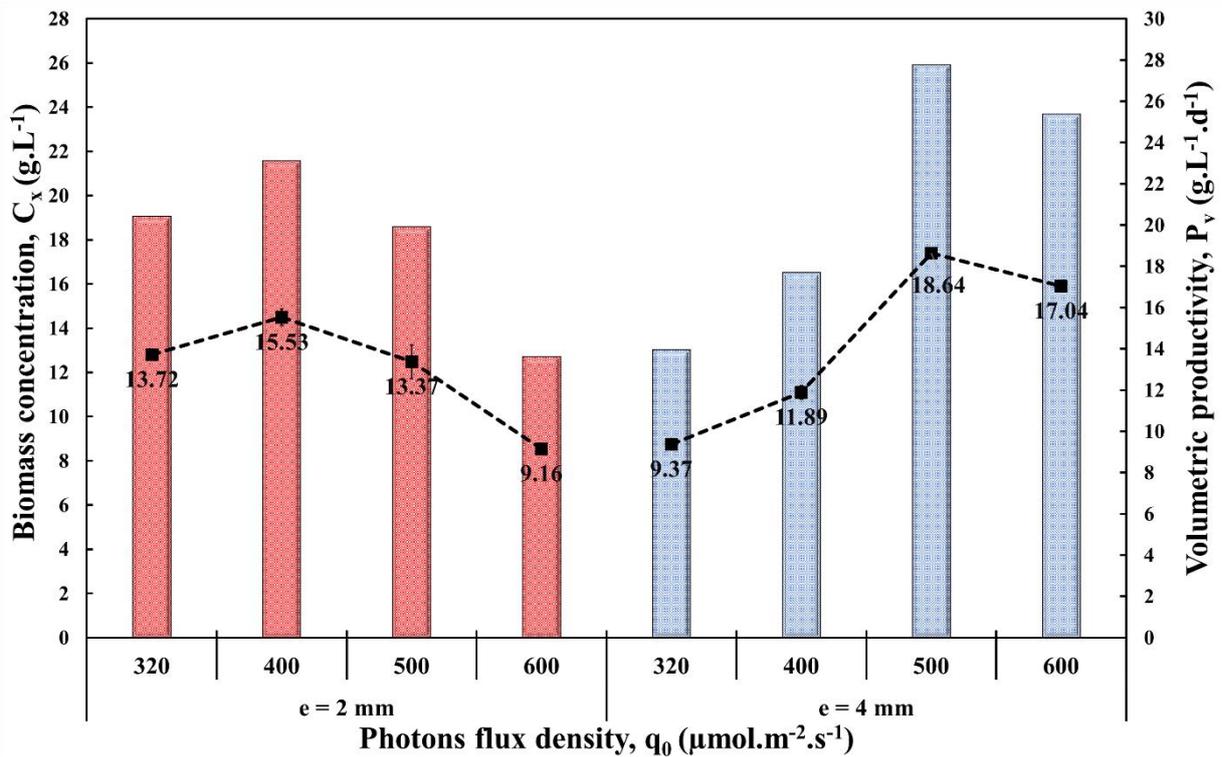


Figure VI. 10 : Evolution de la concentration en biomasse et de la productivité volumique en mode continu en fonction des différentes intensités lumineuses appliquées dans les deux PBRs (2 et 4 mm d'épaisseur)

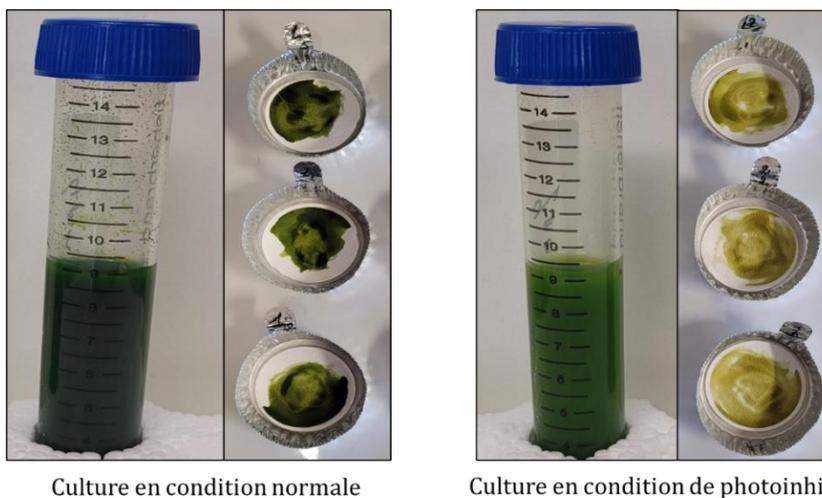


Figure VI. 11 : La couleur de culture en condition normale et en condition de photoinhibition

La figure VI.10 présente la concentration en biomasse  $C_x$  et la productivité volumique  $P_v$  obtenues pour les quatre intensités lumineuses  $q_0$  testées avec les deux PBRs avec un taux de dilution de  $0,03 \text{ h}^{-1}$ . Ces résultats montrent qu'une productivité volumique maximale  $P_{v_{max}}$  de  $15,53 \text{ g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  a été atteinte à une intensité lumineuse de  $400 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour le PBR de 2 mm, et une  $P_{v_{max}}$  de  $18,64 \text{ g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  à  $500 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour le PBR de 4 mm. Ces valeurs de productivité correspondent à des concentrations en biomasse de 21,6 et 25,9  $\text{g.L}^{-1}$  respectivement dans les PBRs 2 et 4 mm.

Au-delà de  $400 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , l'irradiance est trop forte dans le PBR de 2 mm. En effet, le MRPA, dont la valeur doit normalement se situer entre 6 et  $10 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ , est largement supérieur dans le cas de la culture 2 mm exposée à une intensité lumineuse de  $500 \mu\text{mol}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (MRPA =  $12,75 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) et  $600 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (MRPA =  $17,8 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) (Tableau VI.5). Dans ce cas, la culture semble être dans une condition de photoinhibition, ce qui entraîne une baisse de la concentration en biomasse et de la productivité volumique (Figure VI.10). En effet, du fait de la faible atténuation lumineuse (cas du régime cinétique  $\gamma > 1$ ), la quantité d'énergie absorbée par les microalgues est importante, pouvant induire un phénomène de sursaturation de la photosynthèse voire de photoinhibition, endommageant l'appareil photosynthétique des microalgues et diminuant les performances du PBR de manière significative (Artu, 2016). Ainsi, la présence de photoinhibition se manifeste par une coloration jaune de la culture comme il est possible de voir dans la figure VI.11.

Pour le PBR de 4 mm, même si la concentration en biomasse et la productivité volumique diminuent légèrement à  $q_0 = 600 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  par rapport à celles de  $500 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , la culture n'est pas considérée comme étant en état de photoinhibition car le MRPA reste à une valeur proche de la gamme optimale (MRPA =  $6,3 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) (Tableau VI.5).

D'autre part, l'analyse des compositions pigmentaires et de l'indice de stress (SI) confirment les résultats précédents (Tableau VI.5). En effet, pour le PBR de 2 mm, l'indice de stress est inférieur à 1 pour  $q_0 = 320$  et  $400 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Cependant, une fois que la culture est exposée à une intensité lumineuse égale ou supérieure à  $500 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (cas de la culture en photoinhibition), la valeur de l'indice de stress devient supérieure à 1 (SI = 1,20 et 1,33 pour  $q_0 = 500$  et  $600 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , respectivement). Alors que pour le PBR de 4 mm, le SI reste toujours inférieur à 1, atteignant une valeur proche de 1 à une intensité lumineuse de  $600 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Cela indique que, dans ce dernier PBR, la condition de photoinhibition peut se produire pour une intensité lumineuse comprise entre 600 et  $700 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

## Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées

Tableau VI. 5 : Récapitulatif des résultats obtenus lors de la culture en mode continu dans les deux PBRs (2 et 4 mm d'épaisseur) pour différentes intensités lumineuses (320 ; 400 ; 500 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et pour un taux de dilution  $D = 0,03 \text{ h}^{-1}$

	Taux de dilution, $D = 0,03 \text{ h}^{-1}$							
	PBR ( $e = 2 \text{ mm}$ )				PBR ( $e = 4 \text{ mm}$ )			
<b>Densité de flux de photons, <math>q_0</math> (<math>\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}</math>)</b>	<b>320</b>	<b>400</b>	<b>500</b>	<b>600</b>	<b>320</b>	<b>400</b>	<b>500</b>	<b>600</b>
Concentration en biomasse, $C_x$ ( $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ )	19,05	21,57	18,58	12,72	13,02	16,52	25,89	23,67
Productivité volumique, $P_v$ ( $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$ )	13,72	15,53	13,37	9,16	9,37	11,89	18,64	17,04
Concentration en pigment, $w_{\text{pig}}$ (% m/m)	3,03	2,06	1,50	1,10	3,78	3,05	3,19	1,97
Indice de stress ( $\text{DO}_{480}/\text{DO}_{665}$ )	0,84	0,97	1,20	1,33	0,77	0,84	0,80	0,97
MRPA ( $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ )	7,7	8,7	12,8	17,8	6,0	6,1	4,9	6,3
EPS (% m/m)	3,67	3,31	2,99	3,71	2,27	3,82	1,62	2,14

Les teneurs en exopolysaccharides (EPS) obtenues pour chaque intensité lumineuse testée lors de la culture en mode continu sont présentées dans le tableau VI.5. Les résultats montrent que, dans les deux PBRs, la teneur en EPS ne varie pas significativement (entre 1,62 et 3,82 %) quelle que soit l'intensité lumineuse appliquée même en condition de photoinhibition ( $\geq 500 \mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  dans le PBR de 2 mm). Il est possible de conclure que le dosage des EPS ne semble pas être un moyen pour confirmer le stress causé par la lumière en mode continu, vu que les pourcentages en EPS sont de même ordre de grandeur pour toutes les conditions de culture étudiées.

La recherche bibliographique effectuée sur la production des EPS par la souche *Chlorella vulgaris* n'a pas permis d'identifier d'articles scientifiques qui quantifient la concentration en ce produit. Par conséquent, il n'est pas possible de déterminer si cette concentration en EPS se situe dans la moyenne ou elle est plus basse ou plus élevée que celle obtenue en conditions de cultures en PBR conventionnel.

### 2.3.2. Comparaison avec les productivités volumiques maximales théoriques

La figure VI.12 présente une comparaison entre les valeurs expérimentales des productivités volumiques obtenues en mode continu dans les deux PBRs et les valeurs maximales théoriques estimées dans la partie 2.1. Cette figure montre que, pour toutes les intensités lumineuses

testées, les valeurs expérimentales sont toujours supérieures par rapport aux valeurs théoriques, sauf en condition de photoinhibition pour le PBR de 2 mm ( $600 \mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ). Par exemple, à  $320 \mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ , l'écart entre les productivités théoriques expérimentales est de 33% pour le PBR de 2 mm et 51% pour le PBR de 4 mm. Ces résultats indiquent que le modèle théorique sous-estime les valeurs des productivités volumiques obtenues dans cette géométrie confinée.

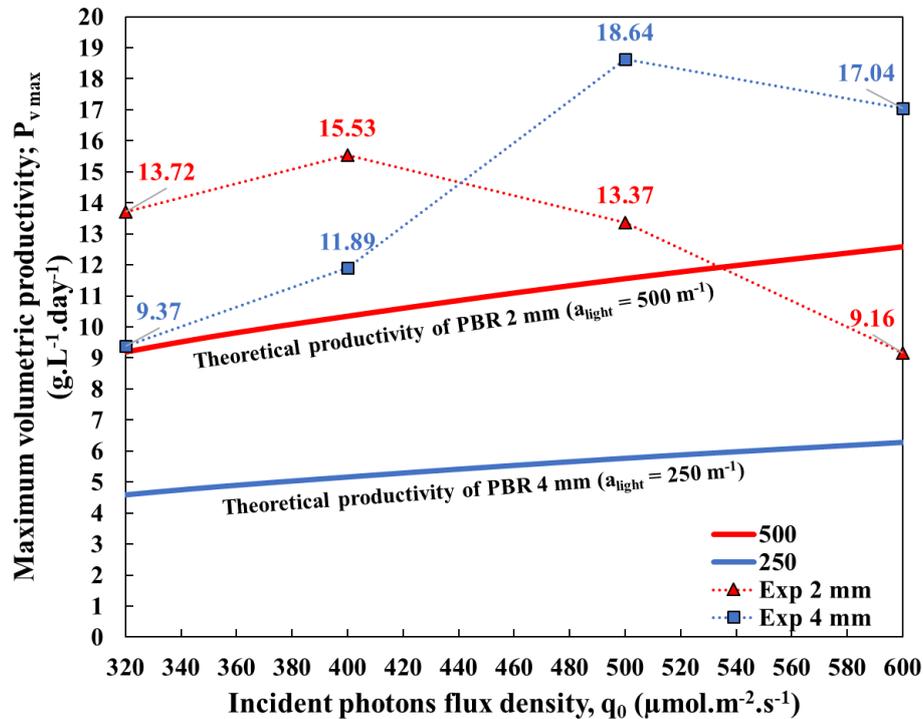


Figure VI. 12 : Comparaison des valeurs de productivité volumique expérimentales et théoriques pour les deux PBRs

Le modèle de Cornet et Dussap (2009) utilisé pour déterminer la productivité volumique maximale théorique, a été vérifié et validé par ces auteurs pour différentes géométries de PBR classiques et avec la souche *Arthrospira platensis*. Les résultats obtenus par ces auteurs ont révélé une déviation inférieure à 15%. Par conséquent, il est essentiel de conclure que l'équation théorique présentée dans la partie 2.1 semble présenter des limites, en particulier dans le cas des PBRs avec des géométries confinées.

### 2.3.3. Comparaison avec d'autres systèmes de culture

Une comparaison entre les productivités de divers systèmes de culture est présentée dans le tableau VI.6. Ce tableau met en évidence que l'utilisation d'une colonne à bulles d'une épaisseur de 2 mm a entraîné une augmentation de la productivité volumique de plus de 50 fois par rapport à un système de type *raceway*, tout en réduisant considérablement la quantité d'eau

## Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées

nécessaire pour la culture, avec une diminution allant de 50 à 150 fois en fonction de l'épaisseur du *raceway*.

Tableau VI. 6 : Comparaison de la productivité volumique obtenue dans cette étude (PBR de 2 et 4 mm d'épaisseur) avec celles d'autres géométries de systèmes de culture

Système de culture	$e$ [m]	$a_{light}$ [ $m^{-1}$ ]	Mode de culture	$q_0$ [ $\mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$ ]	$P_v$ [ $g.L^{-1}.j^{-1}$ ]	Quantité d'eau nécessaire [ $L.m^{-2}$ ]	Référence
<i>Raceways</i>	0,1 - 0,3	3 - 10	-	200 - 500	0,1 - 0,3	100 - 300	Pruvost et al. (2017)
PBR <i>airlift</i>	0,03	33	Continu ( $D = 0,01 - 0,05 h^{-1}$ )	270	0,5 - 1	30	Artu (2016)
PBR torique	0,04	25	Continu ( $D = 0,01 - 0,05 h^{-1}$ )	760	0,6 - 1,2	40	Artu (2016)
Technologie <i>Algofilm</i>	0,002	500	Semi-continu ( $D = 0,015 h^{-1}$ )	270	7	2,1	Pruvost et al. (2017)
Colonne à bulles confinée	0,004	250	Continu ( $D = 0,03 h^{-1}$ )	320 - 600	9,4 - 18,6	4	Cette étude
Colonne à bulles confinée	0,002	500	Continu ( $D = 0,03 h^{-1}$ )	320 - 600	13,7 - 15,5	2	Cette étude

En comparaison avec un PBR *airlift* classique de 3 cm d'épaisseur, fonctionnant avec une intensité lumineuse de  $270 \mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$  (Artu, 2016), on observe que la productivité volumique est respectivement 13 et 9 fois plus élevée dans les PBRs de 2 mm et 4 mm, sachant que les conditions de culture sont proches de celles utilisées dans cette étude ( $q_0 = 320 \mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$  et  $D = 0,03 h^{-1}$ ).

La comparaison avec la technologie *Algofilm*, qui est un PBR intensifié d'une épaisseur de culture de 2 mm ( $a_{light} = 500 m^{-1}$ ), développé au sein du laboratoire GEPEA à Saint-Nazaire (Pruvost et al., 2017), montre que les productivités volumiques obtenues dans notre étude sont significativement plus élevées pour toutes les intensités lumineuses appliquées. Par exemple, avec le PBR de 2 mm utilisé dans ce travail, la productivité volumique est environ deux fois supérieure à celle obtenue avec la technologie *Algofilm* ( $13,7 g.L^{-1}.j^{-1}$  à  $320 \mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$  contre  $7 g.L^{-1}.j^{-1}$  à  $270 \mu mol_{hv}.m^{-2}.s^{-1}$ ), malgré une légère différence dans les flux lumineux appliqués. Cette différence en termes de productivité volumique par rapport à la technologie *Algofilm* peut être expliquée par plusieurs hypothèses :

- Le taux de dilution est plus faible dans le cas d'*Algofilm* ( $D = 0,015 h^{-1}$ ) par rapport à un taux de dilution de  $0,03 h^{-1}$  (optimal pour *Chlorella vulgaris*) utilisé dans notre étude.

- La fraction sombre  $f_a$ , qui dépend de la conception du PBR, est de 20% dans le cas d'*Algofilm*. Dans le cas de cette étude, la fraction sombre est égale à zéro. Cette fraction sombre de 20% peut être responsable de cette différence en termes de productivité volumique par rapport à la technologie *Algofilm*.
- Pour *Algofilm*, l'intensité lumineuse appliquée est de  $270 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (MRPA =  $6,7 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ), tandis que dans le cas de cette étude, l'intensité lumineuse la plus faible est de  $320 \mu\text{mol}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (MRPA =  $7,7 \mu\text{mol}_{\text{hv}}.\text{g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ). En effet, la productivité volumique est directement proportionnelle à l'intensité lumineuse appliquée : plus la lumière est importante, plus la productivité est importante.
- Dans la technologie *Algofilm*, l'agitation ne se fait pas par injection d'air. Une pompe péristaltique est utilisée pour réintroduire la culture en haut du PBR.

#### 2.3.4. Estimation du coefficient de transfert gaz-liquide ( $k_L a_{O_2}$ ) dans la culture

Le coefficient de transfert gaz-liquide de l'oxygène  $k_L a_{O_2}$  dans la culture a été estimé pour la condition où les productivités maximales ont été atteintes ( $15,53 \text{ g}.\text{L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le PBR de 2 mm et  $18,6 \text{ g}.\text{L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le PBR de 4 mm).

Pour un PBR à l'état stationnaire, le taux de production d'oxygène  $P_{O_2}$  ( $\text{gO}_2.\text{L}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) peut être lié à la productivité volumique de la biomasse  $P_v$  ( $\text{g}.\text{L}^{-1}.\text{j}^{-1}$ ) via le rendement spécifique de production d'oxygène  $Y_{O_2/X}$  ( $\text{gO}_2/\text{gX}$ ) selon l'équation suivante :

$$P_{O_2} = Y_{O_2/X} \cdot P_v \quad (\text{VI.3})$$

avec  $Y_{O_2/X} = 1,5$  grammes d' $\text{O}_2$  par gramme de biomasse (Pruvost et al., 2017).

A l'état stationnaire, un bilan massique pour l'oxygène conduit à :

$$N_{O_2} = P_{O_2} \quad (\text{VI.4})$$

où  $N_{O_2}$  correspond au flux d' $\text{O}_2$  ( $\text{gO}_2.\text{L}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ).

Cela permet de calculer le coefficient de transfert gaz-liquide de l'oxygène,  $k_L a_{O_2}$ , en culture grâce à l'équation ci-dessous :

$$k_L a_{O_2} = \frac{P_{O_2}}{(c_{O_2} - c_{O_2}^*)} \quad (\text{VI.5})$$

avec  $C_{O_2}^*$ , la concentration en  $O_2$  à l'équilibre avec l'air ( $C_{O_2}^* = 8,1 \text{ mg.L}^{-1}$ ) et  $C_{O_2}$ , la concentration en  $O_2$  obtenue dans cette condition de culture ( $15,53 \text{ g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le PBR de 2 mm et  $18,6 \text{ g.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le PBR de 4 mm, qui correspondent aux valeurs de productivités maximales obtenues) avec l'enregistrement en continu de la sonde d'oxygène :  $C_{O_2} = 12,7 \text{ mg.L}^{-1}$  (2 mm) et  $C_{O_2} = 14,7 \text{ mg.L}^{-1}$  (4 mm).

Cela conduit à une valeur du coefficient de transfert gaz-liquide dans le milieu de culture de  $k_L a_{O_2} = 0,059 \text{ s}^{-1}$  (PBR de 2 mm) et  $k_L a_{O_2} = 0,049 \text{ s}^{-1}$  (PBR de 4 mm). Ces valeurs de  $k_L a_{O_2}$  sont entre 14 et 17 fois plus importantes par rapport à celle obtenue à ce débit d'air dans la gomme xanthane à  $1 \text{ g.L}^{-1}$  (cf. Chapitre IV). Ces valeurs élevées en  $k_L a_{O_2}$  peuvent être expliquées par l'absence de la régulation du débit de  $CO_2$ . En effet, le  $CO_2$  pur est injecté pour maintenir le pH à sa valeur optimale de 7,5 (absence de débitmètre massique), ce qui entraîne donc la désorption de l' $O_2$ . En réalité, sans régulation du débit de  $CO_2$ , l'oxygène dissous dans le réacteur peut être désorbé par le  $CO_2$  plutôt que par l'air comprimé injecté, ce qui se traduit par une diminution de la valeur de  $C_{O_2}$  dans l'équation VI.5 et par conséquent une valeur très élevée de  $k_L a_{O_2}$ .

Afin d'avoir une bonne estimation de la valeur de  $k_L a_{O_2}$  en condition de culture, il est recommandé d'envisager l'utilisation de deux débitmètres massiques distincts pour contrôler le débit d'air comprimé et de  $CO_2$  lors des cultures futures, ou bien de faire une régulation du pH avec un mélange d'air et de  $CO_2$ . Cette approche permettrait de précisément déterminer la valeur de  $k_L a_{O_2}$  en condition de culture. En conséquence, il serait possible de détecter toute éventuelle accumulation excessive d' $O_2$ .

#### *2.4. Suivi du développement de biofilm*

Les résultats expérimentaux obtenus dans les deux colonnes à bulles confinées, d'épaisseur de 2 mm et 4 mm, confirment les avantages de cette nouvelle technologie en termes d'intensification de la productivité volumique grâce à une augmentation de la concentration en microalgues. Cependant, il convient de noter qu'au cours de la culture, une observation macroscopique a montré qu'un développement de biofilm indésirable a été observé principalement sur la paroi du PBR de 2 mm, comme le montre la figure VI.13. En revanche, aucun biofilm visible n'a été observé dans le PBR de 4 mm à la fin de culture. Dans le paragraphe suivant, le problème de développement du biofilm à la paroi a été étudié afin de

déterminer sa contribution à la diminution du flux lumineux transmis à travers le réacteur, ce qui peut entraîner une baisse de la productivité en biomasse.

Les mesures de l'intensité lumineuse ont été effectuées en prenant en compte la présence du biofilm sur les deux faces du PBR. En effet, la différenciation des mesures sur chaque façade nécessite de faire des mesures in-situ et donc ouvrir le PBR, ce qui pourrait endommager la structure du biofilm. La figure VI.13a présente une photographie de la face arrière du PBR de 2 mm d'entrefer. Sur cette face, 25 points de mesure ont été sélectionnés pour couvrir la majeure partie du volume de culture. À chaque position, une mesure de l'intensité lumineuse a été effectuée à l'aide d'un appareil Quantum mètre LI-COR, à la fois avec le biofilm et sans biofilm (après le nettoyage) pour déterminer la perte de flux lumineux entrant causée par le développement du biofilm. Dans chaque position, l'intensité lumineuse incidente,  $q_0$ , a été variée entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ .

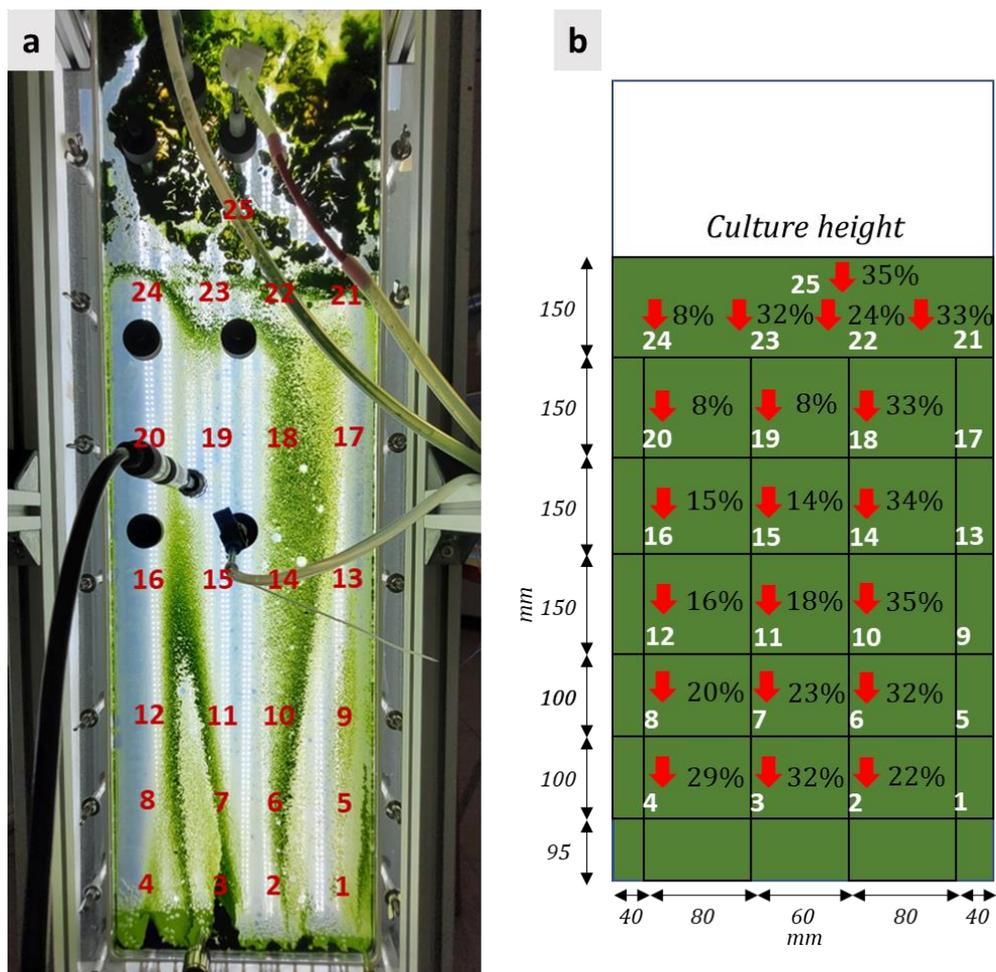


Figure VI. 13 : (a) Photographie de la face arrière du PBR de 2 mm avec les 25 positions fixées pour la mesure de l'intensité lumineuse et (b) Schéma détaillé du PBR de 2 mm avec les pourcentages moyens de pertes en lumière sur les positions de mesures numérotées de 1 à 25 zones, pour les intensités lumineuses  $q_0$  comprises entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

La figure VI.13b illustre que le biofilm entraîne une diminution moyenne du flux lumineux entre 23 et 25% pour des intensités lumineuses  $q_0$  comprises entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  après 77 jours de culture en mode semi-continu et continu dans le PBR de 2 mm d'entrefer. Cette diminution du flux lumineux est cohérente avec les observations de Fanesi et al. (2021), bien que leur expérimentation ait été de durée plus courte. Plus précisément, ils ont constaté une réduction de la lumière incidente ( $q_0 = 70 \mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) de 20-30% après seulement 12 jours de culture de biofilms de *Chlorella vulgaris*, lorsque la contrainte de cisaillement appliquée variait entre 0,001 et 0,011 Pa.

Une perte en lumière moins importante a été observée aux positions 11, 12, 15, 16, 19, 20 et 24, avec une perte moyenne d'environ 12%, correspondant aux zones où il n'y a pas ou peu de biofilm visible (Figure VI.13b). Ces résultats peuvent s'expliquer par le fait que le cisaillement moyen est plus élevé à ces positions, qui se trouvent relativement en bas et au centre de la colonne, contribuant ainsi à l'absence de biofilm visible à ces emplacements (cf. Figure V.4). Ainsi, cette baisse de luminosité dans les zones sans biofilm visible peut s'expliquer par la présence d'une fine couche microscopique transparente (Thobie et al., 2022a). Cette couche a été observée également dans l'étude réalisée par Thobie et al. (2022) où une analyse microscopique a révélé la présence d'une fine couche transparente d'une épaisseur inférieure à 10  $\mu\text{m}$ . Cette couche a été responsable d'une diminution de la transmission de la lumière d'environ 11% après 35 jours de culture (Thobie et al., 2022). Dans la littérature, aucune des conditions de bullage testées n'était efficace pour détacher cette couche de conditionnement. La figure VI.13b révèle également une perte de lumière plus significative dans la partie supérieure de la colonne, notamment autour de la position 25. Cette observation peut être expliquée par les valeurs moins élevées de la composante moyenne de cisaillement pariétal dans la partie haute de la colonne, comme déjà constaté dans le chapitre précédent (cf. Figure V.4).

Il est important de noter qu'aucun biofilm visible n'a été observé pendant la phase de culture en semi-continu dans les deux PBRs (après 18 jours de culture). Dans le PBR de 2 mm, le biofilm est apparu pendant la culture en continu avec les intensités lumineuses les plus élevées (500 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ). En effet, ces flux lumineux ont entraîné une photoinhibition de la culture, qui se traduit par un état de stress et donc une condition favorable pour le développement du biofilm à la paroi du PBR.

D'autre part, dans cette étude où le PBR de 2 mm d'entrefer est confiné c.à.d. la taille de bulles est supérieure à l'entrefer du PBR ( $d_b/e' > 1$ ), l'agitation générée par la dynamique des bulles peut être moins prononcée par rapport au PBR de 4 mm qui a un degré de confinement moins important ( $d_b/e' < 1$ ). Par conséquent, une fois le biofilm commence à se développer dans le PBR de 2 mm, ce biofilm peut être compacté par le passage des bulles très confinées (Thobie et al., 2022) et devient plus difficile à arracher.

### 3. Conclusion et perspectives

L'objectif de ce chapitre est d'évaluer l'adaptabilité des deux PBRs de type colonnes à bulles confinées pour la croissance de cultures de microalgue *Chlorella vulgaris* à de fortes concentrations de biomasse et d'identifier d'éventuels défis opérationnels tels que la formation de biofilm et les différents types de limitations possibles dans ces géométries (nutriments, lumière et suraccumulation de l'oxygène dissous).

Tout d'abord, les cultures ont été conduites en mode semi-continu. Pendant cette étape, plusieurs mesures ont été faites (la biomasse sèche, les pigments etc...) et la lumière incidente a été modifiée manuellement avec l'évolution de la biomasse dans le but d'atteindre la concentration en biomasse ciblée. Les concentrations cellulaires maximales de biomasse obtenues dans nos conditions, en mode semi-continu, ont été de 31 g.L<sup>-1</sup> pour le PBR 2 mm et de 24 g.L<sup>-1</sup> pour le PBR 4 mm. Toutefois, les résultats obtenus à partir des analyses de la composition pigmentaire, ainsi que le calcul de l'indice de stress (SI), ont mis en évidence qu'à compter du 11<sup>ème</sup> jour, des signes de stress léger ont été observés (SI > 1) dans le PBR de 2 mm. Le stress identifié dans ce PBR correspondait à un stress nutritif, comme l'ont confirmé les résultats obtenus des analyses en chromatographie ionique. Plus précisément, les analyses en chromatographie ionique ont mis en évidence les périodes de carence, offrant ainsi des indications sur la manière d'ajuster le milieu de culture en réponse à l'évolution de la biomasse microalgale.

Dans la culture en semi-continu, il a été donc possible d'obtenir une concentration en biomasse proche de 30 g.L<sup>-1</sup>. Par la suite, le mode de culture en continu a été adopté dans les deux PBRs pour différentes intensités lumineuses avec un taux de dilution optimal. Dans ces conditions, les productivités volumiques maximales obtenues sont égales à 15,53 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> pour une intensité lumineuse de 400 μmol<sub>hv</sub>.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> dans le PBR de 2 mm et à 18,64 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> pour une intensité lumineuse de 500 μmol<sub>hv</sub>.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> dans le PBR de 4 mm. Cependant, il faut noter que

la culture dans le PBR de 2 mm a montré des signes de photoinhibition pour les intensités lumineuses de 500 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ , avec des valeurs de MRPA dépassant la plage optimale pour *Chlorella vulgaris*.

Les valeurs de productivité maximale obtenues lors de ce travail ont été ensuite comparées avec les divers systèmes de culture utilisés dans la littérature. Malgré certaines variations dans les conditions opératoires avec ces systèmes, cette étude a montré des performances nettement plus élevées en termes de productivité volumique par rapport aux systèmes de culture présents dans la littérature. Ces productivités élevées ont été obtenues grâce au suivi de plusieurs paramètres qui contrôlent la croissance cellulaire (lumière, nutriments, pH, température, bullage).

Il convient également de noter qu'à la fin de la culture, des biofilms visibles ont été observés sur la paroi du PBR de 2 mm. Aucun biofilm visible n'était observé dans le PBR de 4 mm à la fin de culture. Des mesures d'intensité lumineuse ont alors été réalisées en tenant compte de la présence du biofilm sur les deux faces du PBR de 2 mm. Les résultats ont montré que le biofilm entraîne en moyenne une réduction du flux lumineux entre 23 à 25% pour des intensités lumineuses  $q_0$  comprises entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  après 77 jours de culture en modes semi-continu et continu dans ce PBR. Il est intéressant de noter que ce biofilm est apparu durant la phase de culture en continu lorsque la culture était exposée à des conditions de photoinhibition, ce qui induit un état de stress pour la culture. Ces circonstances favorables à la formation du biofilm ont contribué à son développement.

En outre, dans ce travail, le coefficient de transfert gaz-liquide de l'oxygène  $k_L a_{O_2}$  en culture a été estimé pour la condition où les productivités maximales ont été atteintes dans les deux PBRs en mode de culture continu. Des valeurs élevées de  $k_L a_{O_2}$  ont été obtenues par rapport à celles observées à ce débit d'air dans les fluides visqueux. Ces valeurs élevées en  $k_L a_{O_2}$  ont été expliquées par l'absence de régulation du débit de  $\text{CO}_2$ , qui est responsable de maintenir le pH à sa valeur optimale. Pour cela, pour des cultures futures, il est recommandé d'envisager l'utilisation de deux débitmètres massiques distincts pour contrôler le débit d'air comprimé et de  $\text{CO}_2$  pour savoir la valeur exacte de  $k_L a_{O_2}$  dans la culture.

En conclusion, les résultats expérimentaux obtenus au sein de ces deux PBRs intensifiés confirment le potentiel de cette nouvelle technologie. L'objectif principal visant à obtenir des productivités volumiques élevées a été réalisé. De plus, les PBRs ont montré leur robustesse à

***Chapitre VI : Culture de la microalgue *Chlorella vulgaris* dans des PBRs de type colonnes à bulles confinées***

---

savoir que la culture a été réalisée sur plus de deux mois en modes semi-continu et continu avec différentes intensités lumineuses sans subir de contaminations bactériennes ou autres. Pour les prochaines cultures en continu, il serait intéressant de prévoir, des analyses quotidiennes des nutriments (par chromatographie ionique). Cela permettrait d'ajuster le milieu de culture en réponse à l'évolution de la biomasse microalgale.

## *Conclusion générale et perspectives*

---

---

Ce travail de thèse a visé à étudier expérimentalement un photobioréacteur de type colonne à bulles intensifiée ayant une épaisseur de 2 mm. L'objectif de réduire l'épaisseur du PBR est d'intensifier les conditions de culture, car cela permet d'augmenter la surface spécifique éclairée ' $a_{light}$ ', permettant ainsi d'obtenir des concentrations cellulaires et des productivités volumiques élevées (Pruvost et al., 2017). Ainsi, le fait de travailler avec des concentrations élevées peut réduire les coûts : de production de la biomasse, de la récolte et de traitement des déchets. Cependant, l'intensification peut entraîner plusieurs problèmes susceptibles d'affecter le fonctionnement du PBR et, par conséquent, le rendement en productivité. Cela concerne en particulier le changement de comportement rhéologique de la culture avec, comme conséquence, un mauvais mélange dû à la forte viscosité, la diminution des performances du transfert de matière et le risque de formation de biofilm sur les parois du PBR. Des études antérieures ont montré que le comportement rhéologique passe du Newtonien à non-Newtonien lorsque la concentration en biomasse augmente (Souliès et al., 2013).

Le comportement des essaims de bulles, l'hydrodynamique globale et locale ainsi que le transfert gaz-liquide ont été caractérisés dans une colonne à bulles à faible entrefer (2 mm) fonctionnant avec une phase liquide Newtonienne et non-Newtonienne. Pour cela, plusieurs phases liquides ont été testées : une solution de glycérol, à 50% m/m, pour tenir compte du comportement rhéologique Newtonien à viscosité élevée ; deux solutions non-Newtoniennes rhéofluifiantes (XG à 0,5 et 1 g.L<sup>-1</sup>) pour mettre en évidence la modification du comportement rhéologique de la culture de *Chlorella vulgaris* à une concentration d'environ 42 g.L<sup>-1</sup> et de l'eau utilisée comme fluide Newtonien de référence.

Dans cette configuration du PBR, les diamètres de bulles sont du même ordre de grandeur que l'entrefer, ce qui entraîne des hydrodynamiques diphasiques particulières (Ruiz-Rus et al., 2022). Par conséquent, il est essentiel de déterminer les paramètres hydrodynamiques globaux (taux de vide, transitions des régimes d'écoulement et temps de mélange), le transfert de matière gaz-liquide, ainsi que les paramètres hydrodynamiques locaux (taille et vitesse de bulles et composantes moyenne et fluctuante du cisaillement près de la paroi). Ceci revêt une importance cruciale pour l'application réussie de cette colonne à bulles dans la culture de microalgues à hautes concentrations cellulaires.

Tout d'abord, la caractérisation de l'hydrodynamique a commencé par la détermination du taux de vide *via* une méthode de mesure de la pression différentielle. Les résultats ont montré que pour les faibles vitesses superficielles de gaz, le taux de vide est plus élevé dans les fluides visqueux et non-Newtoniens que dans le cas de l'eau. En plus, le taux de vide est plus élevé dans la colonne à bulles confinée que dans le cas des colonnes classiques. Cette observation découle du rôle des parois vis-à-vis de l'ascension des bulles lorsque la géométrie est confinée ( $d_b/e' > 1$ ) : les bulles sont ralenties et leur temps de séjour est augmenté par rapport aux colonnes classiques. Par conséquent, les valeurs plus élevées du taux de vide observées dans cette configuration confinée pourraient potentiellement améliorer le transfert de matière gaz-liquide par rapport au cas des colonnes non confinées.

La caractérisation des régimes d'écoulement par identification des transitions, a révélé l'apparition de nouveaux régimes d'écoulement (par exemple le régime organisé pour les fluides visqueux) et d'interactions entre les bulles par rapport à ce qui est observé dans les colonnes à bulles classiques. Ces différences sont dues aux propriétés de la phase liquide ainsi que le degré de confinement,  $d_b/e'$ , qui est supérieur à 1. En outre, les résultats ont révélé que les transitions de régime se produisent à des  $U_{Gsup}$  bien plus basses dans le cas des fluides non-Newtoniens que dans le cas de l'eau, en raison d'une tendance à la coalescence plus marquée dans ces fluides visqueux. Les résultats ont montré également que les transitions de régimes apparaissent à des  $U_{Gsup}$  plus basses dans les colonnes à bulles confinées que dans les colonnes classiques. Ce constat est dû au fait que, dans les conditions confinées, les bulles ne peuvent se déplacer que dans un plan, favorisant ainsi leur coalescence. Cela a des implications significatives à l'échelle des PBRs, en particulier lorsque l'objectif est de fonctionner dans le régime homogène, souvent préféré pour la culture de microalgues. En effet, cela entraînera une plage limitée de vitesses superficielles de gaz, impactant ainsi le taux de vide, le transfert de matière gaz-liquide et l'efficacité du mélange dans les PBRs intensifiés.

La caractérisation du temps de mélange dans cette colonne à bulles confinée a été également effectuée. En effet, dans un PBR, l'agitation provoquée par le bullage vise à rendre les nutriments accessibles aux microalgues dans l'ensemble du volume du réacteur tout en évitant le phénomène de sédimentation. Des expériences de temps de mélange ont été réalisées avec deux méthodes : une injection locale et une injection sur toute la surface libre. Les deux méthodes ont montré que le mélange dans les liquides visqueux et non-Newtoniens est assez médiocre surtout à de faibles  $U_{Gsup}$ , avec des valeurs plus élevées de 407 à 120 fois par rapport

à celles observées en régime hétérogène, respectivement pour chaque méthode d'injection. Une augmentation significative du temps de mélange a été également observée avec l'augmentation de la viscosité, ce qui peut se traduire par une mauvaise agitation dans les PBRs à haute concentration cellulaire. Une comparaison entre les temps de mélange dans l'eau et des fluides visqueux/non-Newtoniens a révélé des valeurs plus élevées dans le dernier cas. Ce phénomène a été expliqué par la dynamique des bulles au sein de fluides Newtoniens de faible viscosité (eau), qui génèrent des vorticités, favorisant ainsi un mélange plus efficace. La comparaison avec l'étude d'Almani (2021) dans une colonne à bulles ayant une épaisseur de 4 mm et un rapport ' $d_b/e$ ' < 1 a montré que, quel que soit le type d'injection, le temps de mélange augmentait avec le degré de confinement, en particulier à faibles  $U_{Gsup}$ . L'augmentation des temps de mélange avec le degré de confinement ' $d_b/e$ ' a été attribuée à la diminution de la capacité d'agitation résultant du confinement, en particulier en raison du mouvement des bulles en deux dimensions (2D) plutôt qu'en trois dimensions (3D).

Dans la seconde partie de cette thèse, nous avons examiné la dynamique des bulles en ascension ainsi que le transfert de matière gaz-liquide dans cette colonne à bulles confinée. À l'aide de la méthode d'ombroscopie, la phase gazeuse a été caractérisée afin de déterminer la distribution de la taille des bulles ainsi que leurs vitesses de montée dans cette colonne. Cela a été effectué pour deux zones situées à deux hauteurs différentes de la colonne afin de mettre en évidence l'effet de la coalescence, et pour des débits de gaz correspondant aux régimes homogène (ou organisé) et au début du régime transitoire. Une analyse statistique a été réalisée pour identifier différentes classes de tailles de bulles dans les deux zones et à différentes  $U_{Gsup}$ . Cette expérience a montré que pour de faibles  $U_{Gsup}$  la population de bulles est principalement monomodale. En augmentant  $U_{Gsup}$ , il a été possible d'observer l'apparition de nouvelles classes de bulles résultant de la coalescence de deux bulles ou plus. Les différentes classes de bulles ont été également identifiées en traçant les composantes de la vitesse des bulles ( $u$  et  $v$ ) ainsi que la norme de la vitesse ( $U$ ) en fonction du diamètre équivalent,  $d_b$ , et ceci pour chaque configuration testée. La surface spécifique d'échange ' $a$ ' a été ensuite calculée pour de faibles débits d'air, en utilisant les données de diamètre de bulles. Les résultats ont montré que les valeurs de ' $a$ ' sont plus faibles pour l'eau que pour les fluides visqueux en raison de la coalescence significative des bulles à faibles  $U_{Gsup}$ . Pour les fluides visqueux Newtoniens/non-Newtoniens, la valeur de ' $a$ ' augmente rapidement avec l'augmentation d' $U_{Gsup}$ . Cette information est importante, car la détermination de la surface spécifique d'échange ' $a$ ' a permis de mieux comprendre son influence sur la valeur du coefficient de transfert gaz-liquide  $k_L a$  et,

par conséquent, d'améliorer notre compréhension des contributions individuelles de ' $k_L$ ' et ' $a$ ' dans le transfert global.

En ce qui concerne les expériences du transfert de matière gaz-liquide, le modèle de dispersion axiale a été utilisé pour prendre en compte l'hydrodynamique de la phase liquide pour la détermination du coefficient de transfert de matière gaz-liquide  $k_{LA}$ . Les résultats ont montré que l'augmentation de la viscosité des liquides Newtonien et non-Newtoniens a peu d'influence sur la valeur de  $k_{LA}$ , notamment à de faibles  $U_{Gsup}$ . Ce résultat est attribué à l'effet compensatoire entre ' $k_L$ ' et ' $a$ '. Cela revêt une importance cruciale pour la culture de microalgues, notamment au sein des PBRs intensifiés, étant donné que ces résultats suggèrent que l'augmentation de la viscosité du milieu de culture, liée à une augmentation de la concentration cellulaire, n'affecte pas significativement le  $k_{LA}$ . Cette observation est particulièrement valable à des débits d'air faibles et couramment utilisés lors du fonctionnement des PBRs. Ces résultats ont montré également que le transfert de matière gaz-liquide est moins efficace dans une colonne confinée par rapport à une colonne classique et diminue avec le degré du confinement (le  $k_{LA}$  est inférieur à celui observé dans la colonne de 4 mm d'entrefer). Cette constatation a été expliquée par la réduction de ' $k_L$ ' due à une agitation moins intense dans les conditions de confinement.

En résumé, il est évident que le confinement et les propriétés rhéologiques de la phase liquide influent de manière significative sur l'hydrodynamique, le mélange et le transfert gaz-liquide au sein de cette colonne à bulles confinée. En caractérisant tous les paramètres mentionnés ci-dessus, il devient possible de déterminer les conditions opérationnelles pour réaliser efficacement des cultures de microalgues à des concentrations élevées dans cette colonne. En régime homogène (ou organisé pour les fluides visqueux), le mélange était assez médiocre, ce qui peut poser des problèmes au sein du PBR (distribution des nutriments et de la lumière, etc...). Concernant le transfert gaz-liquide inadéquat observé dans ce PBR, en particulier à des faibles  $U_{Gsup}$ , des conséquences défavorables pourraient avoir lieu et affecter la croissance de la culture, notamment une limitation possible en carbone par absorption du  $CO_2$  injecté et une inhibition par l' $O_2$  produit. Une des solutions potentielles pour améliorer le mélange et le transfert gaz-liquide consiste à utiliser le régime transitoire au sein de cette colonne. Cependant, en augmentant le débit de gaz (en régimes transitoire et hétérogène), la coalescence de bulles se produit et peut entraîner une réduction de la valeur de  $k_{LA}$  (suite à une réduction de ' $a$ '). Par conséquent, l'utilisation du début de régime transitoire ( $U_{Gsup} = 0,007$

m.s<sup>-1</sup>), lorsque la concentration de microalgues devient élevée, pourrait représenter une solution possible pour améliorer le mélange et le transfert gaz-liquide. Le but étant d'améliorer relativement le temps de mélange ( $t_m$ ) et le  $k_{LA}$  par rapport à ce qui a été obtenu en régime organisé ( $t_m$  de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> = 85 min et  $k_{LA} = 0,0018 \text{ s}^{-1}$  pour  $U_{Gsup} = 0,004 \text{ m.s}^{-1}$ ). Au final, en utilisant la  $U_{Gsup}$  de 0,007 m.s<sup>-1</sup>, le  $t_m$  peut être réduit de 85 à 5 min (facteur 17) et le  $k_{LA}$  peut être augmenté de 0,0018 à 0,0032 s<sup>-1</sup> (facteur 1,8).

Une étude en proche paroi a ensuite été effectuée afin de déterminer les niveaux de cisaillement (moyen et fluctuant) généré par le passage des bulles, dans le but d'éviter le développement de biofilms en utilisant simplement le bullage. Les résultats obtenus ont révélé que les niveaux de cisaillement près de la paroi varient selon la position dans la colonne. Dans le cas de l'eau, la partie supérieure de la colonne a montré des valeurs plus faibles, indépendamment du régime d'écoulement, probablement en raison de l'influence de la surface libre sur le ralentissement des bulles. Dans le cas de fluides non-Newtoniens, les niveaux de cisaillement étaient relativement similaires pour des positions variées, en particulier à faibles débits d'air. Cependant, en régime transitoire et hétérogène, la solution de XG à 0,5 g.L<sup>-1</sup> a affiché des valeurs plus élevées dans la partie supérieure de la colonne, ce qui peut s'expliquer par la coalescence accrue dans cette partie de la colonne. Pour la solution la plus concentrée (XG à 1 g.L<sup>-1</sup>), les composantes du cisaillement moyenne et fluctuante sont uniformes dans ces deux régimes et ceci quelle que soit la position de mesure. D'autre part, la comparaison des valeurs moyennes entre les différentes solutions a révélé des niveaux de cisaillement plus élevés dans les fluides non-Newtoniens par rapport à l'eau, et cette différence augmente avec la viscosité du fluide, en particulier dans les régimes transitoire et hétérogène.

L'analyse spectrale du gradient de vitesse pariétal a démontré des structures périodiques à différentes échelles. À faible débit, le régime homogène a présenté des pics d'énergie correspondant au passage des bulles devant la sonde. En régime transitoire, ces pics ont été moins visibles en raison de l'instabilité du système. Dans le régime hétérogène, les structures observées ont été attribuées à des oscillations de panaches centraux ou à des vortex latéraux à des fréquences spécifiques. Dans la plupart des débits étudiés, une pente de -5/4, représentant la partie dissipative de l'énergie, a été observée. Cette pente, plus faible par rapport aux colonnes conventionnelles, indique une dissipation énergétique plus lente due au confinement, ce qui pourrait limiter le développement de biofilms photosynthétiques sur les parois des PBRs intensifiés.

La comparaison des niveaux de contrainte de cisaillement avec les données existantes de la littérature a révélé des contradictions quant à leur impact sur le développement des biofilms sur les parois. En effet, la gamme de contrainte moyenne de cisaillement obtenue dans cette étude (entre 0,05 et 0,25 Pa pour l'eau) semble être notablement plus élevée que celle utilisée dans certaines études, comme celle de Fanesi et al. (2021), et qui a conduit à compacter davantage le biofilm déjà formé à la paroi. Cette observation indique qu'en cas du développement de biofilm sur les parois du PBR dans notre cas, ce biofilm pourrait devenir plus résistant et plus difficile à détacher. D'autre part, une autre étude dans la littérature (Pechaud et al., 2012) suggère que dans le cadre de contraintes moyennes similaires à celles appliquées dans nos conditions, il serait envisageable d'anticiper un détachement maximal d'environ 55% du biofilm une fois qu'il s'est formé et ce en supposant que la formation de ce biofilm se produise dans des conditions hydrodynamiques similaires.

Enfin, une dernière phase, correspondant à la culture de microalgues, a été menée en tenant compte des paramètres optimaux de transfert et de mélange identifiés lors de l'étude en maquette froide. Deux épaisseurs de culture, 2 mm et 4 mm, ont été testées dans des conditions similaires dans le but de comparer les performances en matière de production de biomasse et de formation du biofilm microalgal. En culture en mode semi-continu, une concentration en biomasse d'environ 30 g.L<sup>-1</sup> a été atteinte. En mode de culture continu, avec différentes intensités lumineuses et un taux de dilution optimal, les productivités volumiques maximales obtenues sont : 15,53 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> pour une intensité lumineuse de 400  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  dans le PBR de 2 mm, et 18,64 g.L<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> pour une intensité lumineuse de 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  dans le PBR de 4 mm. Il est à noter que des signes de photoinhibition ont été observés dans le PBR de 2 mm avec les intensités lumineuses de 500 et 600  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ . Il est important de noter que les productivités obtenues dans cette thèse sont nettement supérieures à celles de la littérature (malgré certaines variations dans les conditions opératoires avec ces systèmes), grâce à la gestion de plusieurs paramètres de croissance cellulaire.

À la fin de la phase de culture, un biofilm était visible sur la paroi du PBR de 2 mm, tandis qu'aucun biofilm n'était visible au niveau du PBR de 4 mm. Des mesures d'intensité lumineuse ont révélé que le biofilm réduisait en moyenne le flux lumineux de 23 à 25% pour des intensités entre 100 et 500  $\mu\text{mol}_{\text{hv}}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  après 77 jours de culture et ceci sur l'ensemble de la façade du PBR de 2 mm. Ce biofilm s'est formé pendant la culture en mode continu, en particulier en présence de conditions de stress par photoinhibition de la culture. De plus, dans cette étude, le

coefficient de transfert gaz-liquide de l'oxygène,  $k_L a_{O_2}$ , dans culture a été calculé pour les conditions de productivité maximale en mode continu et ceci dans les deux PBRs. Des valeurs élevées de  $k_L a_{O_2}$ , par rapport à celles obtenues en maquette froide, ont été observées et cette augmentation est attribuée au mode d'injection du  $CO_2$  adopté pour maintenir le pH optimal et fournir le carbone inorganique.

En conclusion, cette étude ouvre de nouvelles perspectives concernant l'utilisation de PBRs intensifiés pour la culture de microalgues, en particulier lorsque l'objectif est d'augmenter la concentration en biomasse. Ces PBRs se sont révélés robustes, dépassant nettement les performances des PBRs classiques en termes de productivité volumique.

Comme perspectives, pour les futurs travaux sur ce type de colonne à bulles, il serait judicieux de faire une caractérisation locale de l'hydrodynamique de la phase liquide à l'aide de la vélocimétrie par images de particules (PIV) dans le but de mettre en évidence la dynamique des structures générées dans le sillage des bulles après leur passage et l'impact de la taille des bulles sur l'activité de ces structures. De plus, une étude à l'échelle locale devrait être menée pour estimer le coefficient de transfert gaz-liquide dans le film liquide entre la bulle et la paroi. Cette étude contribuera à une meilleure compréhension des raisons pour lesquelles le transfert gaz-liquide n'était pas amélioré avec le confinement dans ce travail. L'étude de l'hydrodynamique locale, par ombroscopie, pour une bulle isolée pourrait également s'avérer essentielle pour expliquer davantage les résultats obtenus dans cette étude. Plus précisément, la détermination de la vitesse terminale d'une bulle en ascension dans des fluides Newtoniens et non-Newtoniens et dans cette géométrie confinée, pourrait fournir des informations intéressantes permettant d'approfondir notre compréhension des résultats relatifs aux temps de mélange et aux composantes moyennes et fluctuantes du cisaillement pariétal. En outre, l'utilisation de bulles de plus petites tailles ( $d_b \approx 3$  mm), en réduisant le diamètre intérieur des capillaires d'injection (passant de 1 mm à 0,7 ou 0,5 mm), pourrait constituer une solution pour améliorer le transfert de matière et le mélange dans cette géométrie, tout en générant davantage de fluctuations. Cela contribuerait à créer des conditions plus appropriées pour la culture de microalgues sans le développement de biofilms indésirables.

Comme perspectives sur la partie culture, il est prévu d'établir un modèle prédictif visant à estimer les besoins en nutriments des microalgues, en se basant sur des données théoriques et expérimentales. Ce modèle offre la possibilité d'ajuster la composition du milieu de culture en fonction des besoins spécifiques des microalgues. Les résultats obtenus dans cette thèse vont

contribuer à la création d'une base de données permettant de suivre l'évolution de la concentration cellulaire en corrélation avec la composition du milieu, l'intensité lumineuse ainsi que le taux d'oxygène. Il serait aussi envisageable d'explorer d'autres conditions de culture dans ces PBRs, telles que l'utilisation d'une souche de microalgue différente, un taux de dilution plus faible ( $D < 0,03 \text{ h}^{-1}$ ) combiné à une intensité lumineuse plus élevée ( $q_0 > 600 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ). L'objectif serait d'augmenter davantage la productivité volumique, tout en évitant la photoinhibition, une contrainte majeure à prendre en compte lors de la culture des microalgues. Au final, les résultats obtenus dans cette thèse permettent d'ores et déjà d'envisager de développer des outils de contrôle avancés permettant la gestion optimisée des PBRs en conditions de culture intensifiée.

## *Nomenclature*

$\langle \mathcal{A} \rangle$	vitesse moyenne d'absorption des photons	$[\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{g}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}]$
$A$	aire projetée du contour	$[\text{m}^2]$
$a$	surface spécifique d'échange	$[\text{m}^{-1}]$
$A_{\text{électrode}}$	surface active de la microélectrode	$[\text{m}^2]$
$a_{\text{light}}$	surface spécifique éclairée du réacteur	$[\text{m}^{-1}]$
$Ar$	nombre d'Archimède	[adimensionnel]
$C$	concentration locale instantanée de l'oxydant	$[\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_x$	concentration en biomasse	$[\text{g} \cdot \text{L}^{-1}]$
$C_G$	concentration d'O <sub>2</sub> dans la phase gazeuse	$[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_L$	concentration d'O <sub>2</sub> dans la phase liquide	$[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_L^*$	concentration d'O <sub>2</sub> à la saturation dans la phase liquide	$[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_G^i$	concentration d'O <sub>2</sub> à l'interface côté liquide	$[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_L^i$	concentration d'O <sub>2</sub> à l'interface côté liquide	$[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$
$C_{\infty}$	concentration en ions ferricyanure	$[\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}]$
$D$	taux du dilution	$[\text{h}^{-1}]$
$D_{ax}$	coefficient de dispersion axiale	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$
$d_b$	diamètre équivalent de bulle	[m]
$d_i$	diamètre équivalent de la bulle 'i'	[m]
$D_L$	coefficient de diffusion d'O <sub>2</sub> dans la phase liquide	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$
$D_{ox}$	coefficient de diffusion moléculaire de l'oxydant	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$
$d_s$	diamètre de la sonde	[m]
$d_0$	diamètre moyen des bulles formées à l'injection	[m]
$d_{32}$	diamètre de Sauter moyen	[m]
$e$	entrefer du réacteur	[m]
$F$	constante de Faraday	$[\text{C} \cdot \text{mol}^{-1}]$
$f_{\text{max}}$	fréquence maximale du signal	[Hz]
$g$	accélération de la pesanteur	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-2}]$
$G$	irradiance locale	$[\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$
$G_c$	irradiance de compensation	$[\mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$

## Nomenclature

---

$G_{sat}$	irradiance de saturation	$[\mu\text{mol}_{hv}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$H_L$	hauteur du liquide non aéré	[m]
$H_{L+G}$	hauteur totale sous aération	[m]
$H_{O_2}$	constante de Henry d'O <sub>2</sub>	$[\text{Pa}.\text{m}^3.\text{mol}^{-1}]$
$I_{lim}$	courant limite de diffusion	[A]
$J_{G-L}$	flux de dispersion moyen ou drift flux	$[\text{m}.\text{s}^{-1}]$
$J_G$	densité de flux volumique moyen de la phase gaz	$[\text{m}.\text{s}^{-1}]$
$J_L$	densité de flux volumique moyen de la phase liquide	$[\text{m}.\text{s}^{-1}]$
$J_{O_2}$	flux de matière échangé par unité de volume de liquide	$[\text{kg}.\text{m}^{-3}.\text{s}^{-1}]$
$K$	coefficient de demi-saturation de la photosynthèse	$[\mu\text{mol}_{hv}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$k$	indice de consistance	$[\text{Pa}.\text{s}^n]$
$k_G$	coefficient de transfert individuel de la phase gazeuse	$[\text{m}.\text{s}^{-1}]$
$k_L$	coefficient de transfert individuel de la phase liquide	$[\text{m}.\text{s}^{-1}]$
$k_{La}$	coefficient du transfert de matière gaz-liquide	$[\text{s}^{-1}]$
$k_m$	coefficient de transfert de matière	[adimensionnel]
$L_c$	largeur de la colonne	[m]
$m$	coefficient de solubilité	[adimensionnel]
$M_x$	masse molaire de la souche	$[\text{kg}_x.\text{mol}_x^{-1}]$
$n$	indice de l'écoulement	[adimensionnel]
$n_e$	nombre d'électrons dans la réaction stœchiométrique	[adimensionnel]
$N_A$	densité de flux de matière	$[\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$N_{O_2}$	densité du flux de matière échangé à travers l'interface	$[\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$P$	périmètre de bulle	[m]
$P_{O_2}$	taux de production d'oxygène	$[\text{gO}_2.\text{L}^{-1}.\text{s}^{-1}]$
$P_v$	productivité volumique de biomasse	$[\text{g}.\text{L}^{-1}.\text{j}^{-1}]$
$q_0$	densité du flux de photons incident	$[\mu\text{mol}_{hv}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$q_L$	densité du flux de photons sortant	$[\mu\text{mol}_{hv}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}]$
$Q_e$	débit d'alimentation en milieu neuf	$[\text{m}^3.\text{j}^{-1}]$
$Q_s$	débit de sortie de soutirage	$[\text{m}^3.\text{j}^{-1}]$
$R$	constante des gaz parfaits	$[\text{Pa}.\text{m}^3.\text{mol}^{-1}.\text{K}^{-1}]$
$R1$ et $R2$	rayons de courbure de la goutte	[m]
$Sh$	nombre de Sherwood	[adimensionnel]

## Nomenclature

---

$S_{light}$	surface éclairée du réacteur	[m <sup>2</sup> ]
$S_x$	productivité surfacique de biomasse	[]
$S_0$	gradient pariétal de vitesse moyen	[s <sup>-1</sup> ]
$S_{qs}$	gradient pariétal de vitesse calculé par la solution quasi-stationnaire	[s <sup>-1</sup> ]
$S_{sob}$	gradient pariétal de vitesse corrigé par Sobolik	[s <sup>-1</sup> ]
$\bar{S}$	valeur moyenne du gradient pariétal de vitesse	[s <sup>-1</sup> ]
$\overline{S'^2}$	valeur fluctuante du gradient pariétal de vitesse	[s <sup>-1</sup> ]
$t$	temps	[j]
$T$	température	[°C]
$t_{exp}$	temps d'exposition ou de contact	[s]
$t_m$	temps de mélange	[min]
$u$	composante horizontale de la vitesse	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U$	vitesse d'une bulle en ascension dans un liquide	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_{Gsup}$	vitesse superficielle de gaz	[m.s <sup>-1</sup> ]
$U_{swarm}$	swarm velocity	[m.s <sup>-1</sup> ]
$v$	composante verticale de la vitesse	[m.s <sup>-1</sup> ]
$V_b$	vitesse de bulle	[m.s <sup>-1</sup> ]
$V_d$	volume sombre du réacteur	[L]
$V_G$	volume de la phase gazeuse	[L]
$V_L$	volume de la phase liquide	[L]
$V_I$	volume éclairé du réacteur	[L]
$V_R$	volume réactionnel du réacteur	[L]
$V_t$	volume total du réacteur	[L]
$\vec{V}$	vitesse locale instantanée de l'écoulement	[m.s <sup>-1</sup> ]
$W_{SS}(f)$	densité spectrale de puissance du gradient pariétal de vitesse	[s <sup>-1</sup> ]
$W_{SS}^i$	densité spectrale de puissance élémentaire	[s <sup>-1</sup> ]
$Y_{O_2/X}$	rendement spécifique de production d'oxygène	[gO <sub>2</sub> /gx]
$z$	profondeur de la culture	[m]
$\Delta C$	gradient de concentration ou potentiel d'échange	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\Delta h$	distance entre les deux entrées du capteur de pression	[m]
$\Delta p$	différence de pression à travers l'interface du réacteur	[Pa]

## *Abréviations*

ATP	adénosine triphosphate
BBM	Bold's Basal Medium
Chl 'a'	chlorophylle a
Chl 'b'	chlorophylle b
CI	chromatographie ionique
CID	carbone inorganique dissous
CMC	carboxyméthylcellulose
DO	densité optique
EOSS	efficient overproducing screening system
EPS	exopolysaccharide
$f_d$	fraction sombre du réacteur
FI	faux inconnus
HPV	haute productivité volumique
$h\nu$	énergie lumineuse
LED	light emitting diode
MRPA	mean rate of photons absorption
NADPH	nicotinamide adénine dinucléotide phosphate
nN	non-Newtonien
PAR	photosynthetically active radiation
PBR	photobioréacteur
PFD	photons flux density
PIV	particle image velocimetry
PLIF	fluorescence induite par plan laser
PMMA	polyméthacrylate de méthyle
PPC	caroténoïdes photoprotecteurs
RMSE	racine de l'erreur quadratique moyenne
rpm	rotations par minute
SI	indice de stress
TFS	taux de fluctuations du gradient pariétal de vitesse [%]
UV	ultraviolet

XG	gomme xanthane
2D	deux dimensions de l'espace

### *Lettres grecques*

$\alpha$	module de diffusion linéaire	[adimensionnel]
$\delta_L$	épaisseur du film côté liquide	[m]
$\rho_L$	masse volumique du liquide	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_M$	rendement énergétique maximal pour la conversion des photons	[adimensionnel]
$\varepsilon_G$	taux de vide	[adimensionnel]
$\gamma$	fraction volumique éclairée	[adimensionnel]
$\omega$	vitesse angulaire de l'électrode	[rad.s <sup>-1</sup> ]
$\tau_p$	taux de renouvellement de la culture	[j]
$\overline{\tau}_p$	contrainte de cisaillement à la paroi	[Pa]
$\sigma$	tension superficielle	[N.m <sup>-1</sup> ]
$\mu_L$	viscosité dynamique du fluide	[Pa.s]
$\nu$	viscosité cinématique du fluide	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$\Phi'_x$	rendement quantique moyen de la biomasse pour le schéma Z de la photosynthèse	[mol <sub>x</sub> .μmol <sub>hv</sub> <sup>-1</sup> ]
$\Phi$	flux massique	[kg.s <sup>-1</sup> ]

### *Indices*

0	initial
exp	expérimental
max	maximal
opt	optimal
théo	théorique

## Annexes

---

---

### ANNEXE I : Influence des différents paramètres sur le taux de vide

#### I.1. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase liquide sur le taux de vide

L'effet de la viscosité du liquide sur l'hydrodynamique a fait l'objet de nombreuses études (Fan et al., 1999; Ruzicka et al., 2003; Yang et al., 2007; Deng et al., 2010; Olivieri et al., 2011; Kajero et al., 2012; Shilapuram and Sai, 2012; Wu et al., 2013; Xing et al., 2013). La plupart des chercheurs ont signalé la tendance décroissante du taux de vide par rapport à l'augmentation de la viscosité du liquide. La diminution du taux de vide avec l'augmentation de la viscosité du liquide peut être attribuée au taux plus élevé de coalescence des bulles dans les solutions visqueuses, ainsi qu'à la présence de bulles plus grosses provenant du distributeur.

Besagni et al. (2018) ont résumé le « double effet de la viscosité » sur le taux de vide dans une revue complète qui traite des colonnes à bulles conventionnelles fonctionnant avec des fluides Newtoniens visqueux (solutions de monoéthylène glycol avec des viscosités allant de 0,9 à 7,97 mPa.s). Cette étude montre que lorsque la solution est Newtonienne à faible viscosité, le taux de vide est plus élevé que dans l'eau et ce paramètre devient plus faible que dans l'eau lorsque la viscosité de la phase liquide augmente. La viscosité critique qui modifie l'effet dépend du type de fluide (composition moléculaire, propriétés physico-chimiques...) (Ruzicka et al., 2003; Olivieri et al., 2011; Besagni et al., 2017b). Ces auteurs expliquent cet effet par la limitation de la coalescence dans les fluides à faible viscosité et l'augmentation la force de traînée qui réduit les vitesses de montée des bulles provoquant un taux de vide global plus élevé dans ces fluides par rapport à l'eau. Lorsque la viscosité de la phase liquide augmente, la coalescence prévaut, créant de grosses bulles avec des vitesses plus élevées, réduisant ainsi le taux de vide dans les fluides visqueux par rapport à l'eau. Pour les fluides non-Newtoniens, un effet similaire de la viscosité a été observé par Hwang and Cheng (1997) et Godbole et al. (1982).

Récemment, pour une colonne cylindrique de 9 cm, Jamshidi and Mostoufi (2018), travaillant avec des solutions de CMC (0,5, 1, 2, 6 g.L<sup>-1</sup>), ont observé que le taux de vide augmente avec l'augmentation de la viscosité du liquide jusqu'à 0,0042 Pa.s correspondant à une solution de CMC à 2 g.L<sup>-1</sup>. Avec une viscosité plus élevée (0,021 Pa.s correspondant à une solution de CMC à 6 g.L<sup>-1</sup>), le taux de vide devient même plus important que celui de l'eau. Ils

ont expliqué que cette tendance à la hausse est due au changement du régime d'écoulement en un régime de poches (*slug flow regime*). En effet, pour les colonnes à bulles de petit diamètre et fonctionnant à des viscosités très élevées, les effets de paroi induisent la formation de poches de bulles (Godbole et al., 1982; Kajero et al., 2012), qui montent plus lentement que les bulles dans les régimes homogènes et hétérogènes, augmentant ainsi le taux de vide dans cette configuration.

Esmaeili et al. (2015) ont réalisé des expériences sur une colonne à bulles fonctionnant avec des fluides visqueux Newtoniens (eau, solution de glucose à 70% m/m et solution de Boger « solution composée de 60 % v/v de glucose + 0,04 % m/m de PAA dans l'eau ») et non-Newtoniens (CMC à 0,5 % m/m et XG à 0,5 % m/m) pour étudier l'effet de la rhéologie de la phase liquide sur l'hydrodynamique. Ils ont comparé les comportements viscoélastiques des phases liquides et ont observé que la viscosité favorise davantage les phénomènes de coalescence alors que la propriété élastique de la phase liquide pourrait empêcher la coalescence des bulles en raison du comportement rigide, semblable à un solide, à l'interface des bulles. Ils ont expliqué ces résultats par une nouvelle approche des modules dynamiques (rapport entre le module élastique et le module visqueux,  $G'/G''$ ) qui interprètent ces effets rhéologiques. De plus, les résultats obtenus dans l'étude de Esmaeili et al. (2015) montre que le taux de vide est plus élevé dans l'eau par rapport aux fluides non-Newtoniens (CMC et XG). Des conclusions similaires concernant le taux de vide ont été observées dans les travaux de Fransolet et al. (2005) avec la tomographie par résistance électrique (ERT) et la technique de désengagement dynamique du gaz pour les fluides Newtoniens et non-Newtoniens.

## I.2. Influence de la géométrie du réacteur sur le taux de vide

Les effets de la géométrie (diamètre ( $D_c$ ) et hauteur ( $H_c$ )) sur le taux de vide ont été étudiés dans la littérature, d'une façon séparée ou combinée en discutant le rapport d'aspect de la colonne ( $H_c/D_c$ ).

- Effet du diamètre de la colonne ( $D_c$ ) :

En général, dans une colonne à bulles de petit diamètre, les effets de paroi altèrent la taille des bulles, la vitesse de montée et la recirculation du liquide ; par conséquent, lorsque  $D_c$  augmente,  $\varepsilon_G$  peut diminuer (Ohki and Inoue, 1970; Krishna and Ellenberger, 1996; Krishna et al., 2000; Urseanu et al., 2003). De même, Urseanu et al. (2003) ont observé la diminution de  $\varepsilon_G$  lorsque le diamètre de la colonne  $D_c$  passe de 0,15 et 0,23 m en travaillant avec des fluides

visqueux, en accord avec Behkish et al. (2007), qui ont constaté que l'effet du diamètre de la colonne sur le taux de vide est plus marqué avec les fluides visqueux. Contrairement à l'étude précédente, Fair et al. (1962) et Yoshida and Akita (1965) ont montré que l'effet du diamètre de la colonne sur  $\varepsilon_G$  est négligeable pour les colonnes de plus de 0,15 m de diamètre. Cette dernière conclusion a été également observé par Shah et al. (1982).

- Effet de la hauteur de la colonne ( $H_c$ ) :

Luo et al. (2011) ont constaté que l'effet de la hauteur de la colonne sur le taux de vide disparaît lorsque  $H_c$  passe de 1 à 3 m et que le rapport d'aspect est supérieur à 5. D'un autre côté, Daly et al. (1992) ont constaté que le taux de vide est indépendant de la hauteur, tandis qu'il varie significativement avec le diamètre de la colonne.

### I.3. Influence de l'injection sur le taux de vide

Pour les colonnes à bulles conventionnelles, le taux de vide augmente avec la vitesse superficielle du gaz (Fransolet et al., 2005; Esmaeili et al., 2015).

En raison des nombreux paramètres impliqués et couplés (la conception de l'injecteur de gaz et les conditions de fonctionnement), des résultats controversés présentés dans la littérature. En général, le type et le diamètre d'injection de distributeur de gaz sont des paramètres importants qui peuvent influencer les caractéristiques des bulles telles que la taille et la forme de la bulle et les phénomènes de coalescence/rupture. Selon Besagni et al. (2018), les distributeurs peuvent être classés en tant que « distributeurs fins » (*needle gas sparger* ou *perforated plate sparger*) et « distributeurs grossiers » (*spider gas sparger*). L'évolution du taux de vide par rapport à  $U_{Gsup}$  dépend du type de distributeur qui régit la formation des bulles au diffuseur ainsi que les cycles de coalescence et de rupture. Dans les distributeurs grossiers, la présence de grosses bulles est toujours constatée, tandis que dans les diffuseurs fins, les grosses bulles apparaissent au début du régime transitoire. Malgré certaines divergences, plusieurs études ont montré que lors de l'utilisation d'un "distributeur fin", la courbe de  $\varepsilon_G$  augmente linéairement dans le régime homogène, atteint ensuite un pic, puis augmente à nouveau (Schumpe and Grund, 1986; Krishna and Ellenberger, 1996; Al-Oufi et al., 2011; Besagni et al., 2018b) ; en revanche, lors de l'utilisation d'un "distributeur grossier", la courbe de  $\varepsilon_G$  croît de manière continue (Yoshida and Akita, 1965; Krishna and Ellenberger, 1996; Urseanu et al., 2003). En accord avec cette discussion, les "distributeurs fins" ont un  $\varepsilon_G$  plus élevé par rapport aux "distributeurs grossiers"

en raison de vitesse de montée de bulles plus faible (Krishna and Ellenberger, 1996; Zahradník et al., 1997; Bouaifi et al., 2001).

## ANNEXE II : Influence des différents paramètres sur les régimes d'écoulement

II.1. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase liquide sur les régimes d'écoulement

- Fluides Newtoniens :

D'après Besagni et al. (2018b), l'augmentation de la viscosité dans la phase liquide (monoéthylène glycol 0,05 et 80 % m/m) contribue à déplacer les limites du régime d'écoulement homogène vers des débits de gaz très bas. L'effet de la viscosité sur la transition du régime d'écoulement dans les colonnes à bulles a été caractérisé par Ruzicka et al. (2003) avec des solutions aqueuses de glycérol (1,6 à 22 mPa.s) et l'eau comme fluide de référence Newtonien à faible viscosité. Ainsi, ces auteurs ont observé que la stabilité du régime homogène peut être maintenue jusqu'à une  $U_{Gsup} = 0,09 \text{ m.s}^{-1}$  pour des solutions de faible viscosité (1-3 mPa.s), alors qu'à des viscosités élevées (3-22 mPa.s), la valeur critique de transition entre le régime homogène et hétérogène diminue avec l'augmentation de la viscosité (la transition vers le régime hétérogène arrive plus tôt entre 0,03 et 0,07  $\text{m.s}^{-1}$  suivant la viscosité de la solution).

- Fluides non-Newtoniens :

Vélez-Cordero and Zenit (2011) ont montré que dans les colonnes à bulles fonctionnant avec des fluides non-Newtoniens (différentes solutions de XG mélangées avec des solutions de glycérol), la transition du régime homogène à l'hétérogène se produit pour de faibles  $U_{Gsup}$ . Olivieri et al. (2011) ont étudié les effets des propriétés de liquides sur l'hydrodynamique d'un réacteur de type colonne à bulles. Ils ont montré que l'intervalle du régime d'écoulement homogène est relativement long dans les liquides non-Newtoniens possédant des propriétés élastiques et que la vitesse de transition du régime augmente avec l'élasticité du liquide.

II.2. Influence de la géométrie du réacteur sur les régimes d'écoulement

Dans la littérature, il n'est pas clair si l'augmentation de diamètre de la colonne «  $D_c$  » stabilise (Ohki and Inoue, 1970; Sarrafi et al., 1999) ou déstabilise (Zahradník et al., 1997;

Ruzicka et al., 2001; Al-Oufi et al., 2011) le régime d'écoulement homogène. Ruzicka et al. (2001) ont étudié plusieurs diamètres de colonnes ( $D_c = 0,14, 0,29$  et  $0,4$  m,  $H_c = 0,1-1,2$  m) comme Zahradnik et al. (1997) ( $D_c = 0,14, 0,15$  et  $0,29$ ,  $H_c = 0,25-1,5$  m) et ils ont montré qu'une augmentation de  $D_c$  réduit la vitesse de transition entre les régimes.

Selon Sarrafi et al. (1999), l'augmentation de la hauteur du liquide ou la diminution du diamètre du réacteur favorisent la précocité de la transition. Il apparait donc qu'une augmentation du rapport de la hauteur sur le diamètre de la colonne (rapport d'aspect) tend à favoriser l'apparition du régime hétérogène.

### II.3. Influence de l'injection sur les régimes d'écoulement

D'après Zahradník et al. (1997) et Ruzicka et al. (2001), la région de transition dépend principalement du diamètre de l'orifice d'injection du distributeur de gaz. Pour cela, ils ont comparé les régimes pour un système eau-air avec des distributeurs ayant des diamètres de 0,5 et 1,6 mm et ils ont conclu que la transition du régime, en particulier vers le régime hétérogène, est difficile à caractériser. En outre, les travaux de Vial (2000) et Olmos et al. (2003a) ont montré que le distributeur de gaz joue un rôle essentiel dans l'évolution du taux de vide en régime homogène, étant donné qu'il conditionne la taille des bulles à l'injection et l'uniformité de leur distribution sur la section du réacteur. En régime hétérogène, lorsque le régime est bien établi, le type de distributeur de gaz n'influence pas l'écoulement. En générale, les distributeurs poreux ou à membrane permettent d'obtenir des distributions de tailles étroites et donc une meilleure stabilité du régime homogène que les distributeurs perforés. Camarasa et al. (1999) ont identifié le changement de régime d'écoulement lors de l'utilisation d'une plaque poreuse, ainsi que pour les buses à plusieurs orifices. Pour la plaque poreuse et le distributeur à orifices multiples, le taux de vide a augmenté puis a diminué avec l'augmentation de la vitesse superficielle du gaz dans la plage de transition du régime d'écoulement. D'un autre côté, Vial (2000) ont trouvé que l'augmentation de la distance entre les orifices a un effet retardateur de la transition. Cependant, la diminution de la taille et l'augmentation du nombre d'orifices peuvent améliorer la stabilité du régime homogène (Simonnet, 2005).

## **ANNEXE III : Influence des différents paramètres sur le temps de mélange**

III.1. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase liquide sur le temps de mélange

Dans une colonne à bulles, l'augmentation de la viscosité entraîne une augmentation du temps de mélange (Triveni et al., 2010). Ceci peut être expliqué par le fait qu'avec l'augmentation de la viscosité de la phase liquide, la tendance des bulles à la coalescence devient plus importante, mais aussi en raison de la modification de la trajectoire des bulles en ascension. En effet, avec l'augmentation de la viscosité, la trajectoire en zigzag des grosses bulles devient de plus en plus rectiligne jusqu'à ce qu'elles restent dans une ligne verticale avec peu de fluctuations (Böhm et al., 2014; Liu et al., 2015).

L'effet de la viscosité des fluides Newtoniens et non-Newtoniens sur le temps de mélange dans deux diamètres de colonne à bulles de 0,15 et 0,2 m ( $H_c/D_c = 2-8$ ) a été étudiée par Pandit and Joshi (1983). Lors de ce travail, des solutions aqueuses de glycérol ayant des viscosités comprises entre 12,25 et 395 mPa.s ont été utilisées. Ces auteurs ont conclu que le temps de mélange augmente avec l'augmentation de la viscosité du fluide de fonctionnement et que cet effet est plus prononcé pour les faibles vitesses superficielles de gaz. Dans ces mêmes colonnes, des solutions non-Newtoniennes de CMC et de gomme de Guar ont été étudiées. Dans ces conditions, il a été montré que le temps de mélange augmente lorsque la valeur de l'indice de consistance de fluide «  $k$  » augmente (Pandit and Joshi, 1983). Ainsi, l'évolution de la viscosité du liquide, suite à une augmentation de la concentration en CMC, augmente également le temps de mélange. Une conclusion similaire a été donnée par Al-Ezzi and Najmuldeen (2014) : selon eux, lorsque la viscosité du fluide augmente, la vitesse de circulation du liquide diminue, ce qui confirme l'augmentation du temps de mélange.

Récemment, Plais and Augier (2016) ont étudié le temps de mélange avec de l'eau et des solutions de polyéthylène glycol et de CMC en utilisant la technique colorimétrique dans une colonne à bulles cylindrique de 42 L ( $D_c = 0,3$  m,  $H_L = 0,53$  m, 6 capillaires d'injection de 1 mm de diamètre interne). Ces auteurs ont montré que la viscosité du liquide influence non seulement la valeur du temps de mélange mais augmente également légèrement la taille des bulles et altère profondément la propagation du colorant.

En étudiant l'effet de la tension superficielle des solutions alcooliques (alcools éthylique et butylique) sur le temps de mélange dans une colonne à bulles de 0,2 m de diamètre ( $H_c/D_c = 4$ ), Pandit and Joshi (1983) ont conclu que le mélange est moins bon en présence de solutions d'alcool par rapport à l'eau pure. Cela a été expliqué par le taux de vide plus élevé dans les solutions alcooliques qui a finalement augmenté la hauteur de dispersion et diminué la vitesse

de circulation moyenne qui, dans l'ensemble, augmente le temps de mélange (Pandit and Joshi, 1983).

### III.2. Influence de la géométrie du réacteur sur le temps de mélange

L'analyse des résultats de la littérature dans les colonnes conventionnelles est difficile en raison de la différence dans la géométrie de la colonne, la taille et le type de distributeur, la plage de vitesse superficielle du gaz, le mode d'injection du traceur et l'emplacement de l'injection (McClure et al., 2015). Le temps de mélange dépend également de la nature du traceur notamment sa solubilité dans la phase liquide.

Pandit and Joshi (1983) ont étudié quatre colonnes à bulles ayant des diamètres internes compris entre 150 et 1000 mm ainsi que différentes hauteurs de liquide. En ce qui concerne l'effet du diamètre de la colonne, ils ont observé une augmentation du temps de mélange lorsque le diamètre de la colonne augmente. Ils ont aussi caractérisé les colonnes à bulles en fonction de leur rapport d'aspect ( $H_c/D_c$ ). Ces auteurs ont montré que pour une gamme de rapport d'aspect entre 2 et 8, il y a augmentation du temps de mélange avec l'augmentation de ce rapport.

### III.3. Influence de l'injection sur le temps de mélange

En général, le temps de mélange diminue avec l'augmentation de la vitesse superficielle du gaz dans une colonne à bulles. Dans les colonnes à bulles classiques, McClure et al. (2015) ont trouvé que la vitesse superficielle du gaz a une influence limitée sur le temps de mélange pour des valeurs d' $U_{Gsup}$  supérieures à  $0,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

En régime homogène, un mélange uniforme est observé en raison de la distribution uniforme des bulles et leurs faibles interactions, alors qu'à des vitesses superficielles du gaz élevées correspondant au régime hétérogène, un bon mélange dû à la formation d'agrégats et une large gamme de tailles de bulles sont observées (Hyndman et al., 1997).

## ***ANNEXE IV : Influence des différents paramètres sur le transfert de matière gaz-liquide***

### IV.1. Influence des propriétés physico-chimiques la phase liquide sur le transfert gaz-liquide

Des études de transfert de matière dans des colonnes à bulles conventionnelles ont montré que le transfert de matière gaz-liquide global diminue avec l'augmentation de la viscosité pour les fluides Newtoniens et non-Newtoniens (Álvarez et al., 2000; Li et al., 2012; Böhm et al., 2013; de Jesus et al., 2017; Han et al., 2017; Dong et al., 2019). Ces auteurs ont expliqué cette diminution de la valeur de  $k_{LA}$  par une forte tendance à la coalescence, synonyme d'une surface spécifique d'échange « a » plus faible, lorsque la viscosité augmente.

L'écoulement et le transfert de matière gaz-liquide  $k_{LA}$  dans les fluides non-Newtoniens ont été largement étudiés dans de nombreux domaines, notamment la protection de l'environnement et l'industrie chimique en utilisant des méthodes expérimentales et théoriques (Dong et al., 2019). Han et al. (2017) ont montré l'influence significative de la viscosité apparente du liquide sur le transfert de matière gaz-liquide dans un réacteur *airlift* avec des fluides non-Newtoniens (CMC à 0,04 ; 0,07 et 0,14 % m/m). Ainsi, ils ont observé que le coefficient de transfert en phase liquide ' $k_L$ ' diminue de manière significative avec l'augmentation de la concentration en CMC pour une  $U_{Gsup}$  donnée. Cette diminution a été expliquée par l'intensité de la turbulence qui diminue avec la viscosité du liquide mais qui augmente avec  $U_{Gsup}$ . De plus, la viscosité du liquide augmente également la résistance au transfert de matière en raison d'une diffusivité plus faible. Par conséquent, l'augmentation de la concentration de la solution entraîne une diminution de ' $k_L$ ' tandis que ' $k_L$ ' augmente avec  $U_{Gsup}$ . De même, Li et al. (2012) ont étudié le transfert de matière avec des essais de bulles dans trois solutions différentes (Glycérol, CMC et PAA). Ils ont observé une diminution des valeurs de  $k_{LA}$  avec l'augmentation de la viscosité apparente de la phase liquide.

En outre, Dong et al. (2019) ont étudié les performances de transfert de matière dans les colonnes à bulles avec des fluides Newtoniens (eau du robinet) et non-Newtoniens (solutions aqueuses de CMC ayant des concentrations comprises entre 0,3 et 0,6 % m/m correspondant à des valeurs de viscosité comprises entre 0,01 et 0,1 Pa.s) sur la base d'une étude expérimentale et d'une analyse théorique. Ils ont conclu que le comportement rhéologique des solutions aqueuses de CMC avait un effet significatif sur les paramètres hydrodynamiques des bulles et les performances de transfert de matière avec des valeurs de  $k_{LA}$  plus faibles dans les solutions de CMC par rapport à l'eau pour la même  $U_{Gsup}$ . De plus, ce coefficient de transfert de matière a diminué avec l'augmentation des pourcentages en masse des solutions de CMC.

### IV.2. Influence de la géométrie du réacteur sur le transfert gaz-liquide

Selon Deckwer and Schumpe (1993), le diamètre de la colonne à bulles influence le transfert de matière gaz-liquide uniquement pour les colonnes ayant un diamètre inférieur à 0,6 m et ceci en maintenant constantes les autres variables telles que les conditions de bullage. Par ailleurs, dans une autre étude réalisée par Akita and Yoshida (1974), il a été conclu que l'influence du diamètre de la colonne de bulles sur  $k_{LA}$  devient négligeable lorsque celui-ci devient supérieur à 0,15 m. Terasaka et al. (2013) ont étudié quatre diamètres de colonne à bulles (0,03 ; 0,06 ; 0,10 ; 0,20 m) en utilisant des solutions de XG et ils ont conclu qu'en diminuant le diamètre de la colonne, le  $k_{LA}$  peut être amélioré.

D'après Shah et al. (1982) et Vandu and Krishna (2004), le  $k_{LA}$  ne dépend pas de la hauteur (ou le volume) du liquide dans la colonne à bulles.

#### IV.3. Influence de l'injection sur le transfert gaz-liquide

Koide et al. (1983) ont utilisé des colonnes à bulles équipées de plaques perforées de différents diamètres d'orifices (0,5 ; 1 et 2,5 mm). Les résultats ont montré que le coefficient  $k_{LA}$  augmente lorsque le diamètre d'orifice du gaz diminue et qu'il augmente avec une augmentation du taux de vide. Des conclusions similaires pour l'effet du distributeur de gaz sur le  $k_{LA}$  ont été données par Han and Al-Dahhan (2007). L'augmentation du transfert de matière avec une diminution de la taille des orifices du diffuseur de gaz est liée au régime d'écoulement déterminé par le distributeur de gaz (Şal et al., 2013; Besagni et al., 2017a, 2018a) : la diminution de diamètre interne de l'orifice déplace la distribution de taille des bulles à l'injection vers un diamètre équivalent de bulle plus petit et augmente ainsi la surface spécifique d'échange « a ».

D'autre part, Il existe une relation qui relie la vitesse superficielle de gaz ( $U_{Gsup}$ ) et le  $k_{LA}$ , cette relation peut être présentée par l'équation suivante :

$$k_{LA} \propto U_{Gsup}^n$$

où n peut être compris entre 0,7 et 0,92 (Shah et al., 1982 ; Vandu and Krishna, 2004). Ainsi, la relation pourrait ne pas être parfaitement linéaire.

**ANNEXE V : Simplification de l'équation de convection-diffusion (Equation II.31), suivant les hypothèses de Mitchell and Hanratty (1966) et les conditions aux limites appliquées dans la méthode électrochimique**

Les hypothèses utilisées pour simplifier l'équation II.31 :

- (i) Dans le cas d'un régime permanent,  $\frac{\partial C}{\partial t} = 0$  ;
- (ii) Le gradient pariétal de vitesse  $S_0$  est défini par :  $V_x = S_0(x,t)y$  et  $V_y = 0$  c'est-à-dire que la concentration ne varie considérablement qu'au voisinage immédiat de la paroi, où les forces de viscosité prédominent. Ainsi, la couche limite de diffusion est suffisamment mince devant la sous-couche visqueuse (grand nombre de Schmidt ( $Sc=v/D \gg 1$ )) pour que le profil de vitesse dans cette dernière varie linéairement en fonction de la distance  $y$  ;
- (iii)  $\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \ll \frac{\partial^2 C}{\partial y^2}$ , suivant l'hypothèse de Ling (1963) qui montre que la diffusion axiale peut être négligée devant la diffusion normale pour de forts nombres de Péclet ( $Pe > 5000$ ).

Les conditions aux limites sont représentées dans la figure A :

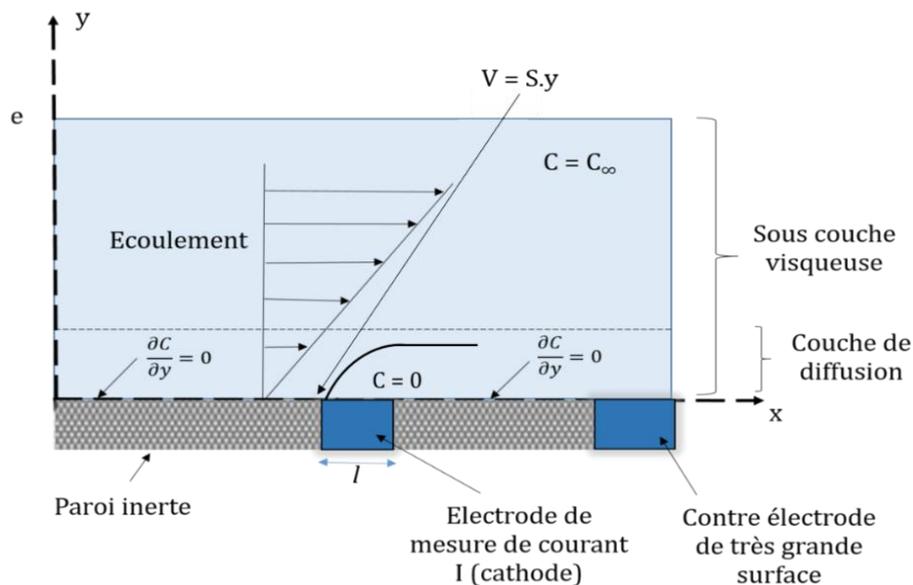


Figure A : Les conditions aux limites appliquées dans la méthode électrochimique (Schéma modifié de Blel, 2007; Thobie, 2018)

- $C=0$  à la surface de l'électrode (réaction infiniment rapide par rapport au phénomène de diffusion) ;

- $(\frac{\partial c}{\partial y})_{y=0} = 0$  sur la paroi inerte (pas de transfert de matière sur la paroi inerte) ;
- $C = C_{\infty}$  (concentration constante au cœur de l'écoulement) ; pour  $y \rightarrow \infty$  (en dehors de la couche de diffusion)

**ANNEXE VI : Traitement du signal par la technique d'analyse spectrale (Approche de Quinquis et al., 2007)**

Tout d'abord, le signal de départ est divisé en  $N$  blocs comprenant le même nombre de points,  $N_p$ , et chaque bloc est utilisé pour calculer un spectre élémentaire. Pour avoir un spectre moyen plus lisse, les  $N$  blocs sont moyennés afin d'atténuer les perturbations aléatoires non reproductibles. Dans ce cas, plus le nombre de blocs,  $N$ , est important et plus le spectre moyen est net et précis. Le nombre de points,  $N_p$ , au sein des blocs est choisi en fonction de la résolution temporelle du phénomène mis en jeu. Dans les conditions avec un taux de turbulence élevé, une plus grande fréquence d'acquisition des données est nécessaire afin de bien décrire tous les phénomènes y compris les plus rapides.

Puis, le signal doit être multiplié par une fenêtre temporelle telle que la fenêtre de Hanning afin d'éviter les phénomènes de lobes lors de l'application de la transformée de Fourier à un signal temporel (fini) :

$$F_{ha}(t) = 0,5 \times (1 - \cos \frac{2\pi k}{N_p})$$

Pour tout  $k$  allant de 0 à  $N_p-1$ .

En effet, l'application de la transformée de Fourier sur les  $N$  blocs de la valeur fluctuante de la vitesse de cisaillement s'écrit ainsi (pour  $i$  compris entre 0 et  $N$ ) :

$$S^i(f) = \sum_{k=0}^{N_p-1} s'_N(k) F_{ha}(k) \exp(-2j\pi k f)$$

La densité spectrale de puissance élémentaire,  $W_{ss}^i(f)$ , est définie comme étant le carré du module de la transformée de Fourier par le temps d'intégration. La densité spectrale de puissance élémentaire peut donc être déterminée par la relation suivante (pour  $i$  compris entre 0 et  $N$ ) :

$$W_{ss}^i(f) = \frac{|S^i(f)|^2}{N_p}$$

**ANNEXE VII : Caractéristiques des colonnes cationique et anionique et du passeur d'échantillon de la chromatographie ionique**

- **ICS 1100 : Chromatographie cationique avec SRS électro-chimique**
  - Pré-colonne : CG16 (5×50mm)
  - Colonne : CS16 (5×250mm)
  - Eluant : Acide sulfurique à 17 mmol.L<sup>-1</sup>
  - Pression : 2500 – 3500 psi
  - Débit : 1,2 mL.min<sup>-1</sup>
  - Suppresseur : Electrochimique CSRS<sup>®</sup>300 4 mm (suppression du signal de l'éluant par électrolyse)
  - Détecteur : Conductimètre
  
- **ICS 900 : Chromatographie anionique avec SRS chimique externe (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)**
  - Pré-colonne : AG9-HC (4×50mm)
  - Colonne : AS9-HC (4×250mm)
  - Eluant : Carbonate de sodium 7,7 mmol.L<sup>-1</sup> et bicarbonate de sodium 1,3 mmol.L<sup>-1</sup>
  - Pression : 900 - 1500 psi
  - Débit : 1,0 mL.min<sup>-1</sup>
  - Suppresseur : Chimique AMMS<sup>®</sup>300 4 mm (alimentation H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> à 25 mmol.L<sup>-1</sup>)
  - Détecteur : Conductimètre DS5
  
- **Passeur d'échantillon AS-DV**
  - Alimentation en série dans les boucles cationique et anionique, puis injection en parallèle
  - Carrousel de 50 positions accueillant des vials de 5 mL

Annexes

**ANNEXE VIII : Characteristics (size, velocity, aspect ratio and shape factor) of bubble classes for tap water in two zones 1 and 2 for the homogeneous regime and for the transition regime**

Tap water											
Zone 1											
Homogeneous regime											
$U_{Gsup}$ (m.s <sup>-1</sup> )	Bubble classes	% of bubbles in number	$d_{32}$ (mm)	Coalescence factor			Aspect ratio	Shape factor	$u$ (m.s <sup>-1</sup> )	$v$ (m.s <sup>-1</sup> )	$U$ (m.s <sup>-1</sup> )
0.002	3.5 - 4.5	97.1	4.02 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.74	1.16	-0.0005	0.11	0.11
	4.5 - 5.0	0	-								
	5.0 - 6.0	2.8	5.64	$\sqrt{2} d_0$	5.68	0.72	0.62	1.26	-0.0078	0.13	0.13
	> 6.0	0.1	-								
0.003	3.5 - 4.5	87.4	4.09 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.73	1.17	-0.0005	0.12	0.12
	4.5 - 5.5	0.2	-								
	5.5 - 6.5	10.7	5.80	$\sqrt{2} d_0$	5.78	0.32	0.61	1.27	-0.0009	0.14	0.14
	6.5 - 7.5	1.5	7.06	$\sqrt{3} d_0$	7.08	0.29	0.57	1.34	-0.0079	0.15	0.15
	> 7.5	0.2	-								
0.004	3.5 - 4.5	74.3	4.15 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.72	1.17	-0.0016	0.13	0.13
	4.5 - 5.5	0.4	-								
	5.5 - 6.5	17.4	5.85	$\sqrt{2} d_0$	5.86	0.24	0.61	1.28	0.0004	0.15	0.15
	6.5 - 7.5	6.3	7.14	$\sqrt{3} d_0$	7.18	0.60	0.53	1.38	-0.0024	0.15	0.15
	7.5 - 8.5	1.4	8.28	$\sqrt{4} d_0$	8.29	0.12	0.49	1.47	-0.0116	0.16	0.16
	> 8.5	0.2	-								
Transition regime											
0.007	< 3.5	1.4	-								
	3.5 - 5.0	47.3	4.41 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.69	1.20	0.0019	0.15	0.15
	5.0 - 6.5	17.4	6.15	$\sqrt{2} d_0$	6.23	1.28	0.59	1.31	0.0025	0.18	0.18
	6.5 - 8.0	12.7	7.53	$\sqrt{3} d_0$	7.63	1.36	0.53	1.42	-0.0068	0.18	0.18

**Annexes**

	8.0 - 9.5	8.4	8.81	$\sqrt{4} d_0$	8.81	0.07	0.51	1.50	-0.0037	0.19	0.19
	9.5 - 11.0	6.8	10.2	$\sqrt{5} d_0$	9.85	3.35	0.49	1.58	0.0059	0.19	0.19
	> 11.0	6.1					-				

Tap water											
Zone 2											
Homogeneous regime											
$U_{Gsup}$ (m.s <sup>-1</sup> )	Bubble classes	% of bubbles in number	$d_{32}$ (mm)	Coalescence factor			Aspect ratio	Shape factor	$u$ (m.s <sup>-1</sup> )	$v$ (m.s <sup>-1</sup> )	$U$ (m.s <sup>-1</sup> )
0.002	3.5 - 5.0	77.7	4.12 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.75	1.16	-0.0013	0.12	0.12
	5.0 - 6.5	13.2	5.74	$\sqrt{2} d_0$	5.82	1.42	0.63	1.24	-0.0017	0.14	0.14
	6.5 - 8.0	5.5	7.08	$\sqrt{3} d_0$	7.13	0.70	0.56	1.33	-0.0018	0.16	0.16
	8.0 - 9.5	2.7	8.47	$\sqrt{4} d_0$	8.24	2.69	0.49	1.47	-0.0035	0.17	0.17
	> 9.5	0.9					-				
0.003	< 3.5	1.3					-				
	3.5 - 5.0	55.4	4.18 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.74	1.16	-0.0003	0.13	0.13
	5.0 - 6.5	13.9	5.86	$\sqrt{2} d_0$	5.91	0.87	0.62	1.25	0.0020	0.16	0.16
	6.5 - 8.0	12.1	7.24	$\sqrt{3} d_0$	7.24	0.02	0.54	1.35	-0.0012	0.16	0.16
	8.0 - 9.5	7.7	8.83	$\sqrt{4} d_0$	8.36	5.39	0.48	1.49	-0.0004	0.18	0.18
> 9.5	9.5					-					
0.004	< 3.5	2.7					-				
	3.5-5.0	40.1	4.25 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.73	1.17	-0.0027	0.14	0.14
	5.0-6.5	15.7	5.86	$\sqrt{2} d_0$	6.00	2.39	0.60	1.27	-0.0082	0.16	0.16
	6.5-8.0	9.8	7.26	$\sqrt{3} d_0$	7.35	1.29	0.53	1.36	-0.0021	0.16	0.16
	8.0-9.5	7.5	8.60	$\sqrt{4} d_0$	8.49	1.32	0.48	1.47	-0.0050	0.19	0.19
	9.5-11.0	6.7	10.29	$\sqrt{6} d_0$	10.40	1.02	0.46	1.52	0.0024	0.19	0.19
	11.0-12.5	7.4					-				
12.5-14.0	4.7	13.31	$\sqrt{10} d_0$	13.42	0.87	0.44	1.67	-0.0166	0.22	0.22	

## Annexes

	14.0-15.5	2.7	-								
	15.5-17.0	1.8	16.04	$\sqrt{14} d_0$	15.88	0.94	0.44	1.71	-0.0060	0.20	0.20
	> 17.0	0.9	-								
Transition regime											
0.007	< 3.5	32.8	-				-				
	3.5-5.5	24.6	4.45 ( $d_0$ )	$d_{theo} = C \times d_0$		Error (%)	0.72	1.17	0.0139	0.15	0.15
	5.5-7.5		6.39	$\sqrt{2} d_0$	6.29	1.50	0.56	1.32	-0.0078	0.18	0.18
	7.0-8.0	3.5	-								
	8.0-9.5	4.1	8.77	$\sqrt{4} d_0$	8.90	1.43	0.51	1.44	0.0178	0.23	0.23
	9.5-11.0	1.9	-								
	11.0-12.5	2.2	11.86	$\sqrt{7} d_0$	11.77	0.77	0.44	1.64	0.0491	0.21	0.22
	12.5-14.5	3.9	-				-				
	14.5-16.5	3.2	15.40	$\sqrt{12} d_0$	15.41	0.09	0.46	1.76	-0.0100	0.24	0.24
	16.5-18.5	2.8	-								
	18.5-20.5	2.7	-				-				
		20.5-22.5	4.1	21.46	$\sqrt{23} d_0$	21.34	0.56	0.47	1.80	0.0297	0.26
	> 22.5	4.5	-								

- Definition of the parameters used in shadowgraphy method:

$$\text{Sauter diameter: } d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^n d_i^3 n_i}{\sum_{i=1}^n d_i^2 n_i}$$

$d_i$  is the equivalent diameter of bubble 'i' and  $n_i$  is the number of bubbles with diameter  $d_i$

$$\text{Norm of velocity: } U = \sqrt{u^2 + v^2}$$

$u$  and  $v$  are the horizontal and vertical components of the bubble velocity

$$\text{Aspect ratio: } E = \frac{\text{Min axis}}{\text{Major axis}}$$

$$\text{Shape factor: } S_f = \frac{P^2}{4 \times \pi \times A}$$

$P$  is the perimeter and  $A$  is the projected area

*Annexes*

***ANNEXE IX : Characteristics (size, velocity, aspect ratio and shape factor) of bubble classes for glycerol 50 wt % in two zones 1 and 2 for the organized regime and for the homogeneous regime***

Glycerol 50 wt %							
Zone 1							
Organized regime							
$U_{Gsup}$ (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles	$d_{32}$ (mm)	Aspect ratio	Shape factor	$u$ (m.s <sup>-1</sup> )	$v$ (m.s <sup>-1</sup> )	$U$ (m.s <sup>-1</sup> )
0.002	8781	3.87	0.88	1.12	-0.0006	0.09	0.09
0.003	12503	4.03	0.87	1.12	-0.0006	0.10	0.10
0.004	14486	4.13	0.86	1.12	-0.0006	0.10	0.10
Homogeneous regime							
0.007	19112	4.39	0.83	1.13	-0.0018	0.12	0.12

Glycerol 50 wt %							
Zone 2							
Organized regime							
$U_{Gsup}$ (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles	$d_{32}$ (mm)	Aspect ratio	Shape factor	$u$ (m.s <sup>-1</sup> )	$v$ (m.s <sup>-1</sup> )	$U$ (m.s <sup>-1</sup> )
0.002	8312	3.81	0.86	1.12	-0.0001	0.10	0.10
0.003	11950	3.99	0.85	1.13	-0.0002	0.10	0.10
0.004	13840	4.08	0.84	1.13	-0.0002	0.11	0.11
Homogeneous regime							
0.007	22954	4.33	0.81	1.16	0.0000	0.10	0.10

Annexes

ANNEXE X : Characteristics (size, velocity, aspect ratio and shape factor) of bubble classes for XG 0.5 g.L<sup>-1</sup> in two zones 1 and 2 for the organized regime and for the transition regime

XG 0.5 g.L <sup>-1</sup>							
Zone 1							
Organized regime							
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles	d <sub>32</sub> (mm)	Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )
0.002	6157	4.27	0.86	1.13	0.0000	0.11	0.11
0.003	8901	4.47	0.85	1.14	-0.0003	0.11	0.11
0.004	10361	4.58	0.85	1.14	-0.0005	0.11	0.11
Transition regime							
0.007	14024	4.92	0.83	1.14	-0.0009	0.12	0.12

XG 0.5 g.L <sup>-1</sup>										
Zone 2										
Organized regime										
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles		d <sub>32</sub> (mm)	Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )		
0.002	6094		4.28	0.85	1.13	-0.0006	0.11	0.11		
0.003	8709		4.50	0.84	1.13	-0.0008	0.11	0.11		
0.004	10188		4.62	0.84	1.13	-0.0011	0.11	0.11		
Transition regime										
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Bubble classes	% of bubbles in number	d <sub>32</sub> (mm)	Coalescence factor	Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )	
0.007	< 4.0	0	-							
	4.0 - 5.5	46	5.01 (d <sub>0</sub> )	d <sub>theo</sub> = C × d <sub>0</sub>	Error (%)	0.82	1.1389	-0.0012	0.13	0.13
	5.5 - 6.0	0	-							

**Annexes**

	6.0 - 7.5	48.6	6.90	$\sqrt{2} d_0$	7.09	2.79	0.68	1.20	-0.0014	0.12	0.12
	7.5 - 9.0	3.8	8.58	$\sqrt{3} d_0$	8.68	1.22	0.61	1.28	0.0040	0.12	0.12
	9.0 - 10.5	1.4	9.82	$\sqrt{4} d_0$	10.03	2.10	0.55	1.33	0.0018	0.12	0.12
	>10.5	0.4	-								

**ANNEXE XI : Characteristics (size, velocity, aspect ratio and shape factor) of bubble classes for XG 1 g.L<sup>-1</sup> in two zones 1 and 2 for the organized regime and for the transition regime**

XG 1 g.L <sup>-1</sup>											
Zone 1											
Organized regime											
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles		d <sub>32</sub> (mm)	Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )			
0.002	7741		4.56	0.98	1.12	-0.0006	0.08	0.08			
0.003	10292		4.78	0.97	1.12	-0.0007	0.08	0.08			
0.004	11637		4.91	0.97	1.12	-0.0010	0.09	0.09			
Transition regime											
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Bubble classes	% of bubbles in number	d <sub>32</sub> (mm)	Coalescence factor		Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )	
0.007	< 4.0	0	-								
	4.0 - 6.0	98.6	5.28 (d <sub>0</sub> )	d <sub>theo</sub> = C × d <sub>0</sub>	Error (%)	0.95	1.13	-0.0049	0.10	0.10	
	6.0 - 8.0	0.9	7.5	$\sqrt{2} d_0$	7.5	0.3	0.86	1.14	-0.0016	0.10	0.10
	> 8.0	0.5	-								

Annexes

XG 1 g.L <sup>-1</sup>											
Zone 2											
Organized regime											
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Number of bubbles			d <sub>32</sub> (mm)	Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )		
0.002	7529			4.57	0.98	1.12	-0.0007	0.08	0.08		
0.003	9885			4.79	0.97	1.12	-0.0010	0.09	0.09		
0.004	11251			4.93	0.96	1.12	-0.0011	0.09	0.09		
Transition regime											
U <sub>Gsup</sub> (m.s <sup>-1</sup> )	Bubble classes	% of bubbles in number	d <sub>32</sub> (mm)	Coalescence factor			Aspect ratio	Shape factor	u (m.s <sup>-1</sup> )	v (m.s <sup>-1</sup> )	U (m.s <sup>-1</sup> )
0.007	< 2.0	0	-								
	2.0 - 4.0	0.6	2.33	-			0.96	1.12	0.0052	0.02	0.03
	4.0 - 6.0	83.3	5.22 (d <sub>0</sub> )	d <sub>theo</sub> = C × d <sub>0</sub>	Error (%)	0.89	1.21	0.0021	0.09	0.09	
	6.0 - 8.0	10.3	7.4	√2 d <sub>0</sub>	7.4	0.5	0.68	1.43	-0.0002	0.10	0.10
	8.0 - 10.0	2.1	9.1	√3 d <sub>0</sub>	9.0	0.6	0.66	1.62	0.0169	0.13	0.13
	> 10.0	3.7	-								

---

---

## Références bibliographiques

---

---

- Adamson, A. W., and Gast, A. P. (1997). *Physical chemistry of surfaces*. Wiley.
- Adesanya, V. O., Vadillo, D. C., and Mackley, M. R. (2012). The rheological characterization of algae suspensions for the production of biofuels. *Journal of Rheology* 56, 925–939. doi: 10.1122/1.4717494.
- Akita, K., and Yoshida, F. (1974). Bubble Size, Interfacial Area, and Liquid-Phase Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* 13, 84–91. doi: 10.1021/i260049a016.
- AL-Dallal, A. (2016). Study on Mixing Time and Gas Hold-up in an Airlift Bioreactor. 12–14.
- Al-Ezzi, A., and Najmuldeen, G. F. (2014). Gas Hold-Up, Mixing Time and Circulation Time in Internal Loop Airlift Bubble Column. *International Journal of Engineering Research and Applications* 4, 286–294.
- Almani, S. (2021). Experimental and numerical study of the hydrodynamics and gas-liquid mass transfer in a thin gap bubble column in presence of Newtonian or non-Newtonian liquid phase. Available at: <https://www.theses.fr/2021NANT4086> [Accessed April 1, 2022].
- Almérás, E., Risso, F., Roig, V., Plais, C., and Augier, F. (2018). Mixing mechanism in a two-dimensional bubble column. *Phys. Rev. Fluids* 3, 074307. doi: 10.1103/PhysRevFluids.3.074307.
- Al-Oufi, F. M., Rielly, C. D., and Cumming, I. W. (2011). An experimental study of gas void fraction in dilute alcohol solutions in annular gap bubble columns using a four-point conductivity probe. *Chemical Engineering Science* 66, 5739–5748. doi: 10.1016/j.ces.2011.03.061.
- Álvarez, E., Sanjurjo, B., Cancela, A., and Navaza, J. M. (2000). Mass Transfer and Influence of Physical Properties of Solutions in a Bubble Column. *Chemical Engineering Research and Design* 78, 889–893. doi: 10.1205/026387600527950.
- Artu, A. (2016). Etude et optimisation de la culture de microalgues en photobioréacteurs solaires. Available at: <http://www.theses.fr/2016NANT4019> [Accessed August 21, 2020].
- Bakke, R., Trulear, M. G., Robinson, J. A., and Characklis, W. G. (1984). Activity of *Pseudomonas aeruginosa* in biofilms: Steady state. *Biotechnology and Bioengineering* 26, 1418–1424. doi: 10.1002/bit.260261204.
- Barbosa, M. J., Hadiyanto, H., and Wijffels, R. H. (2004). Overcoming shear stress of microalgae cultures in sparged photobioreactors. *Biotechnology and Bioengineering* 85, 78–85. doi: 10.1002/bit.10862.
- Behkish, A., Lemoine, R., Sehabiague, L., Oukaci, R., and Morsi, B. I. (2007). Gas holdup and bubble size behavior in a large-scale slurry bubble column reactor operating with an

- organic liquid under elevated pressures and temperatures. *Chemical Engineering Journal* 128, 69–84. doi: 10.1016/j.cej.2006.10.016.
- Belohlav, V., Zakova, T., Jirout, T., and Kratky, L. (2020). Effect of hydrodynamics on the formation and removal of microalgal biofilm in photobioreactors. *Biosystems Engineering* 200, 315–327. doi: 10.1016/j.biosystemseng.2020.10.014.
- Bernaerts, T. M. M., Kyomugasho, C., Van Looveren, N., Gheysen, L., Foubert, I., Hendrickx, M. E., et al. (2018). Molecular and rheological characterization of different cell wall fractions of *Porphyridium cruentum*. *Carbohydrate Polymers* 195, 542–550. doi: 10.1016/j.carbpol.2018.05.001.
- Bernaerts, T. M. M., Panozzo, A., Doumen, V., Foubert, I., Gheysen, L., Goiris, K., et al. (2017). Microalgal biomass as a (multi)functional ingredient in food products: Rheological properties of microalgal suspensions as affected by mechanical and thermal processing. *Algal Research* 25, 452–463. doi: 10.1016/j.algal.2017.05.014.
- Besagni, G., Gallazzini, L., and Inzoli, F. (2017a). On the scale-up criteria for bubble columns. *Petroleum*. doi: 10.1016/j.petlm.2017.12.005.
- Besagni, G., Gallazzini, L., and Inzoli, F. (2018a). Effect of gas sparger design on bubble column hydrodynamics using pure and binary liquid phases. *Chemical Engineering Science* 176, 116–126. doi: 10.1016/j.ces.2017.10.036.
- Besagni, G., Guédon, G. R., and Inzoli, F. (2018b). Computational fluid-dynamic modeling of the mono-dispersed homogeneous flow regime in bubble columns. *Nuclear Engineering and Design* 331, 222–237. doi: 10.1016/j.nucengdes.2018.03.003.
- Besagni, G., and Inzoli, F. (2016). Influence of internals on counter-current bubble column hydrodynamics: Holdup, flow regime transition and local flow properties. *Chemical Engineering Science* 145, 162–180. doi: 10.1016/j.ces.2016.02.019.
- Besagni, G., and Inzoli, F. (2017). The effect of liquid phase properties on bubble column fluid dynamics: Gas holdup, flow regime transition, bubble size distributions and shapes, interfacial areas and foaming phenomena. *Chemical Engineering Science* 170, 270–296. doi: 10.1016/j.ces.2017.03.043.
- Besagni, G., Inzoli, F., De Guido, G., and Pellegrini, L. A. (2017b). The dual effect of viscosity on bubble column hydrodynamics. *Chemical Engineering Science* 158, 509–538. doi: 10.1016/j.ces.2016.11.003.
- Besagni, G., Inzoli, F., and Ziegenhein, T. (2018c). Two-Phase Bubble Columns: A Comprehensive Review. *ChemEngineering* 2, 13. doi: 10.3390/chemengineering2020013.
- Bitog, J. P., Lee, I.-B., Lee, C.-G., Kim, K.-S., Hwang, H.-S., Hong, S.-W., et al. (2011). Application of computational fluid dynamics for modeling and designing photobioreactors for microalgae production: A review. *Computers and Electronics in Agriculture* 76, 131–147. doi: 10.1016/j.compag.2011.01.015.
- Blel, W. (2007). Caractérisation hydrodynamique de la structure des écoulements dans les lignes de transformation des industries agroalimentaires et conséquences sur le

- nettoyage de souillures bactériennes : étude exploratoire sur l'intérêt des écoulements pulsés. <http://www.theses.fr>. Available at: <http://www.theses.fr/2007NANT2104> [Accessed February 13, 2023].
- Blel, W., Le Gentil-Lelièvre, C., Bénézech, T., Legrand, J., and Legentilhomme, P. (2009a). Application of turbulent pulsating flows to the bacterial removal during a cleaning in place procedure. Part 1: Experimental analysis of wall shear stress in a cylindrical pipe. *Journal of Food Engineering* 90, 422–432. doi: 10.1016/j.jfoodeng.2008.07.008.
- Blel, W., Legentilhomme, P., Bénézech, T., Legrand, J., and Le Gentil-Lelièvre, C. (2009b). Application of turbulent pulsating flows to the bacterial removal during a cleaning in place procedure. Part 2: Effects on cleaning efficiency. *Journal of Food Engineering* 90, 433–440. doi: 10.1016/j.jfoodeng.2008.07.019.
- Blel, W., Legentilhomme, P., Legrand, J., Bénézech, T., and Gentil-Lelièvre, C. L. (2008). Hygienic design: Effect of hydrodynamics on the cleanability of a food processing line. *AIChE J.* 54, 2553–2566. doi: 10.1002/aic.11559.
- Böhm, L., Brehmer, M., and Kraume, M. (2016). Comparison of the Single Bubble Ascent in a Newtonian and a Non-Newtonian Liquid: A Phenomenological PIV Study. *Chemie Ingenieur Technik* 88, 93–106. doi: 10.1002/cite.201500105.
- Böhm, L., Drews, A., and Kraume, M. (2013). Bubble induced shear stress in flat sheet membrane systems—Serial examination of single bubble experiments with the electrodiffusion method. *Journal of Membrane Science* 437, 131–140. doi: 10.1016/j.memsci.2013.02.036.
- Böhm, L., and Kraume, M. (2015). Fluid dynamics of bubble swarms rising in Newtonian and non-Newtonian liquids in flat sheet membrane systems. *Journal of Membrane Science* 475, 533–544. doi: 10.1016/j.memsci.2014.11.003.
- Böhm, L., Kurita, T., Kimura, K., and Kraume, M. (2014). Rising behaviour of single bubbles in narrow rectangular channels in Newtonian and non-Newtonian liquids. *International Journal of Multiphase Flow* 65, 11–23. doi: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2014.05.001.
- Bonnanfant, M. (2020). Étude des mécanismes de conversion photosynthétique de l'énergie lumineuse par *Chlorella vulgaris* en photobioréacteur solaire. Available at: <https://www.theses.fr/en/2020LEMA1015> [Accessed July 18, 2023].
- Borowitzka, M. A. (2013). High-value products from microalgae—their development and commercialisation. *J Appl Phycol* 25, 743–756. doi: 10.1007/s10811-013-9983-9.
- Bouaifi, M., Hébrard, G., Bastoul, D., and Roustan, M. (2001). A Comparative Study of Gas Hold-Up, Bubble Size, Interfacial Area and Mass Transfer Coefficients in Stirred Gas–Liquid Reactors and Bubble Columns. *Chemical Engineering and Processing - CHEM ENG PROCESS* 40, 97–111. doi: 10.1016/S0255-2701(00)00129-X.
- Bouche, E., Roig, V., Risso, F., and Billet, A.-M. (2012). Homogeneous swarm of high-Reynolds-number bubbles rising within a thin gap. Part 1. Bubble dynamics. *Journal of Fluid Mechanics* 704, 211–231. doi: 10.1017/jfm.2012.233.

- Bouche, E., Roig, V., Risso, F., and Billet, A.-M. (2014). Homogeneous swarm of high-Reynolds-number bubbles rising within a thin gap. Part 2. Liquid dynamics. *Journal of Fluid Mechanics* 758, 508–521. doi: 10.1017/jfm.2014.544.
- Brennan, L., and Owende, P. (2010). Biofuels from microalgae--A review of technologies for production, processing, and extractions of biofuels and co-products. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 14, 557–577.
- Breuer, G., Lamers, P. P., Martens, D. E., Draaisma, R. B., and Wijffels, R. H. (2013). Effect of light intensity, pH, and temperature on triacylglycerol (TAG) accumulation induced by nitrogen starvation in *Scenedesmus obliquus*. *Bioresour Technol* 143, 1–9. doi: 10.1016/j.biortech.2013.05.105.
- Bux, F., and Chisti, Y. eds. (2016). *Algae Biotechnology: Products and Processes*. Cham: Springer International Publishing doi: 10.1007/978-3-319-12334-9.
- Camarasa, E., Vial, C., Poncin, S., Wild, G., Midoux, N., and Bouillard, J. (1999). Influence of coalescence behaviour of the liquid and of gas sparging on hydrodynamics and bubble characteristics in a bubble column. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 38, 329–344. doi: 10.1016/S0255-2701(99)00024-0.
- Cassano, A. E., Martin, C. A., Brandi, R. J., and Alfano, O. M. (1995). Photoreactor Analysis and Design: Fundamentals and Applications. *Ind. Eng. Chem. Res.* 34, 2155–2201. doi: 10.1021/ie00046a001.
- Chaumat, H., Billet, A. M., and Delmas, H. (2007). Hydrodynamics and mass transfer in bubble column: Influence of liquid phase surface tension. *Chemical Engineering Science* 62, 7378–7390. doi: 10.1016/j.ces.2007.08.077.
- Chen, R. C., Reese, J., and Fan, L.-S. (1994). Flow structure in a three-dimensional bubble column and three-phase fluidized bed. *AIChE Journal* 40, 1093–1104. doi: 10.1002/aic.690400702.
- Christaki, E., Florou-Paneri, P., and Bonos, E. (2011). Microalgae: a novel ingredient in nutrition. *International Journal of Food Sciences and Nutrition* 62, 794–799. doi: 10.3109/09637486.2011.582460.
- Chun, S., Ji, B., Yang, Z., Malik, V. K., and Feng, J. (2022). Experimental observation of a confined bubble moving in shear-thinning fluids. *Journal of Fluid Mechanics* 953, A12. doi: 10.1017/jfm.2022.926.
- Converti, A., Casazza, A. A., Ortiz, E. Y., Perego, P., and Del Borghi, M. (2009). Effect of temperature and nitrogen concentration on the growth and lipid content of *Nannochloropsis oculata* and *Chlorella vulgaris* for biodiesel production. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 48, 1146–1151. doi: 10.1016/j.cep.2009.03.006.
- Cornet, J.-F., and Dussap, C.-G. (2009). A Simple and reliable formula for assessment of maximum volumetric productivities in photobioreactors. *Biotechnology Progress* 25, 424–435. doi: 10.1002/btpr.138.

- Costache, T. A., Acién Fernández, F. G., Morales, M. M., Fernández-Sevilla, J. M., Stamatina, I., and Molina, E. (2013). Comprehensive model of microalgae photosynthesis rate as a function of culture conditions in photobioreactors. *Appl Microbiol Biotechnol* 97, 7627–7637. doi: 10.1007/s00253-013-5035-2.
- Cournac, L., Pruvost, J., and Legrand, J. (2012). Production d'hydrogène par les micro-organismes photosynthétiques. *Chimie verte*. doi: 10.51257/a-v1-bio3352.
- Daly, J. G., Patel, S. A., and Bukur, D. B. (1992). Measurement of gas holdups and sauter mean bubble diameters in bubble column reactors by dynamics gas disengagement method. *Chemical Engineering Science* 47, 3647–3654. doi: 10.1016/0009-2509(92)85081-L.
- De Beer, D., and Stoodley, P. (2006). “Microbial Biofilms,” in *The Prokaryotes*, eds. M. Dworkin, S. Falkow, E. Rosenberg, K.-H. Schleifer, and E. Stackebrandt (New York, NY: Springer New York), 904–937. doi: 10.1007/0-387-30741-9\_28.
- de Jesus, S. S., Moreira Neto, J., and Maciel Filho, R. (2017). Hydrodynamics and mass transfer in bubble column, conventional airlift, stirred airlift and stirred tank bioreactors, using viscous fluid: A comparative study. *Biochemical Engineering Journal* 118, 70–81. doi: 10.1016/j.bej.2016.11.019.
- Deckwer, W.-D., and Schumpe, A. (1993). Improved tools for bubble column reactor design and scale-up. *Chemical Engineering Science* 48, 889–911. doi: 10.1016/0009-2509(93)80328-N.
- Deng, Z., Wang, T., Zhang, N., and Wang, Z. (2010). Gas holdup, bubble behavior and mass transfer in a 5m high internal-loop airlift reactor with non-Newtonian fluid. *Chemical Engineering Journal* 160, 729–737. doi: 10.1016/j.cej.2010.03.078.
- Dhaouadi, H., Poncin, S., Hornut, J. M., and Midoux, N. (2008). Gas–liquid mass transfer in bubble column reactor: Analytical solution and experimental confirmation. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 47, 548–556. doi: 10.1016/j.cep.2006.11.009.
- Dhaouadi, H., Poncin, S., Hornut, J. M., Wild, G., Oinas, P., and Korpijarvi, J. (1997). Mass transfer in an external-loop airlift reactor: experiments and modeling. *Chemical Engineering Science* 52, 3909–3917. doi: 10.1016/S0009-2509(97)00273-X.
- Dong, X., Liu, Z., Liu, F., Li, Z., Wei, W., Wang, X., et al. (2019). Effect of liquid phase rheology and gas–liquid interface property on mass transfer characteristics in bubble columns. *Chemical Engineering Research and Design* 142, 25–33. doi: 10.1016/j.cherd.2018.11.035.
- Donlan, R. M., and Costerton, J. W. (2002). Biofilms: Survival Mechanisms of Clinically Relevant Microorganisms. *Clinical Microbiology Reviews* 15, 167. doi: 10.1128/CMR.15.2.167-193.2002.
- DuBois, Michel., Gilles, K. A., Hamilton, J. K., Rebers, P. A., and Smith, Fred. (1956). Colorimetric Method for Determination of Sugars and Related Substances. *Anal. Chem.* 28, 350–356. doi: 10.1021/ac60111a017.

- Esmaeili, A., Guy, C., and Chaouki, J. (2015). The effects of liquid phase rheology on the hydrodynamics of a gas–liquid bubble column reactor. *Chemical Engineering Science* 129, 193–207. doi: 10.1016/j.ces.2015.01.071.
- Fair, J. R., Lambright, A. J., and Andersen, J. W. (1962). Heat Transfer and Gas Holdup in a Sparged Contactor. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* 1, 33–36. doi: 10.1021/i260001a006.
- Fan, L.-S., Yang, G. Q., Lee, D. J., Tsuchiya, K., and Luo, X. (1999). Some aspects of high-pressure phenomena of bubbles in liquids and liquid–solid suspensions. *Chemical Engineering Science* 54, 4681–4709. doi: 10.1016/S0009-2509(99)00348-6.
- Fanesi, A., Lavayssière, M., Breton, C., Bernard, O., Briandet, R., and Lopes, F. (2021). Shear stress affects the architecture and cohesion of *Chlorella vulgaris* biofilms. *Sci Rep* 11, 4002. doi: 10.1038/s41598-021-83523-3.
- Fanesi, A., Martin, T., Breton, C., Bernard, O., Briandet, R., and Lopes, F. (2022). The architecture and metabolic traits of monospecific photosynthetic biofilms studied in a custom flow-through system. *Biotechnology and Bioengineering* 119, 2459–2470. doi: 10.1002/bit.28147.
- Felis, F., Strassl, F., Laurini, L., Dietrich, N., Billet, A.-M., Roig, V., et al. (2019). Using a bio-inspired copper complex to investigate reactive mass transfer around an oxygen bubble rising freely in a thin-gap cell. *Chemical Engineering Science* 207, 1256–1269. doi: 10.1016/j.ces.2019.07.045.
- Filella, A., Ern, P., and Roig, V. (2015). Oscillatory motion and wake of a bubble rising in a thin-gap cell. *Journal of Fluid Mechanics* 778, 60–88. doi: 10.1017/jfm.2015.355.
- Flemming, H.-C., and Wingender, J. (2010). The biofilm matrix. *Nature Reviews Microbiology* 8, 623–633. doi: 10.1038/nrmicro2415.
- Fransolet, E., Crine, M., Marchot, P., and Töye, D. (2005). Analysis of gas holdup in bubble columns with non-Newtonian fluid using electrical resistance tomography and dynamic gas disengagement technique. *Chemical Engineering Science* 60, 6118–6123. doi: 10.1016/j.ces.2005.03.046.
- GODBOLE, S. P., HONATH, M. F., and SHAH, Y. T. (1982). Holdup Structure in Highly Viscous Newtonian and Non-Newtonian Liquids in Bubble Columns. *Chemical Engineering Communications* 16, 119–134. doi: 10.1080/00986448208911090.
- Gourich, B., Vial, C., Essadki, A. H., Allam, F., Belhaj Soulami, M., and Ziyad, M. (2006). Identification of flow regimes and transition points in a bubble column through analysis of differential pressure signal—Influence of the coalescence behavior of the liquid phase. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 45, 214–223. doi: 10.1016/j.cep.2005.09.002.
- Gourich, B., Vial, Ch., El Azher, N., Belhaj Soulami, M., and Ziyad, M. (2008). Influence of hydrodynamics and probe response on oxygen mass transfer measurements in a high aspect ratio bubble column reactor: Effect of the coalescence behaviour of the liquid phase. *Biochemical Engineering Journal* 39, 1–14. doi: 10.1016/j.bej.2007.08.011.

- Greif, R., and Paterson, J. A. (1973). Mass transfer to a rotating disk in a non-Newtonian fluid. *The Physics of Fluids* 16, 1816–1817. doi: 10.1063/1.1694218.
- Gross, M., and Wen, Z. (2014). Yearlong evaluation of performance and durability of a pilot-scale Revolving Algal Biofilm (RAB) cultivation system. *Bioresour. Technol.* 171, 50–58. doi: 10.1016/j.biortech.2014.08.052.
- Haase, A. S., Wood, J. A., Sprakel, L. M. J., and Lammertink, R. G. H. (2017). Inelastic non-Newtonian flow over heterogeneously slippery surfaces. *Phys. Rev. E* 95, 023105. doi: 10.1103/PhysRevE.95.023105.
- Han, L., and Al-Dahhan, M. H. (2007). Gas–liquid mass transfer in a high pressure bubble column reactor with different sparger designs. *Chemical Engineering Science* 62, 131–139. doi: 10.1016/j.ces.2006.08.010.
- Han, M., González, G., Vauhkonen, M., Laari, A., and Koironen, T. (2017). Local gas distribution and mass transfer characteristics in an annulus-rising airlift reactor with non-Newtonian fluid. *Chemical Engineering Journal C*, 929–939. doi: 10.1016/j.cej.2016.09.102.
- Heath, M. R., Richardson, K., and Kirrboe, T. (1990). Optical assessment of phytoplankton nutrient depletion. *Journal of Plankton Research* 12, 381–396. doi: 10.1093/plankt/12.2.381.
- Higbie, R. (1935). *The Rate of Absorption of a Pure Gas Into Still Liquid During Short Periods of Exposure*.
- Hoefnagel, M. H. N., Atkin, O. K., and Wiskich, J. T. (1998). Interdependence between chloroplasts and mitochondria in the light and the dark. *Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Bioenergetics* 1366, 235–255. doi: 10.1016/S0005-2728(98)00126-1.
- Huang, Q., Jiang, F., Wang, L., and Yang, C. (2017). Design of Photobioreactors for Mass Cultivation of Photosynthetic Organisms. *Engineering* 3, 318–329. doi: 10.1016/J.ENG.2017.03.020.
- Hwang, S.-J., and Cheng, Y.-L. (1997). Gas holdup and liquid velocity in three-phase internal-loop airlift reactors. *Chemical Engineering Science* 52, 3949–3960. doi: 10.1016/S0009-2509(97)88931-2.
- Hyndman, C. L., Larachi, F., and Guy, C. (1997). Understanding gas-phase hydrodynamics in bubble columns: a convective model based on kinetic theory. *Chemical Engineering Science* 52, 63–77. doi: 10.1016/S0009-2509(96)00387-9.
- Jamshidi, N., and Mostoufi, N. (2018). Investigating bubble dynamics in a bubble column containing shear thinning liquid using a dual-tip probe. *Experimental Thermal and Fluid Science* 94, 34–48. doi: 10.1016/j.expthermflusci.2018.01.034.
- Jang, H., Rusconi, R., and Stocker, R. (2017). Biofilm disruption by an air bubble reveals heterogeneous age-dependent detachment patterns dictated by initial extracellular matrix distribution. *NPJ Biofilms Microbiomes* 3, 6. doi: 10.1038/s41522-017-0014-5.

- Jimenez, M., Dietrich, N., Cockx, A., and Hébrard, and Gilles (2013). Experimental study of O<sub>2</sub> diffusion coefficient measurement at a planar gas–liquid interface by planar laser-induced fluorescence with inhibition. *AIChE Journal* 59, 325–333. doi: 10.1002/aic.13805.
- Jimenez, M., Dietrich, N., Grace, J. R., and Hébrard, G. (2014). Oxygen mass transfer and hydrodynamic behaviour in wastewater: determination of local impact of surfactants by visualization techniques. *Water Res.* 58, 111–121. doi: 10.1016/j.watres.2014.03.065.
- Kajero, O. T., Azzopardi, B. J., and Abdulkareem, L. (2012). Experimental investigation of the effect of liquid viscosity on slug flow in small diameter bubble column. *EPJ Web of Conferences* 25, 01037. doi: 10.1051/epjconf/20122501037.
- Kandilian, R., Pruvost, J., Artu, A., Lemasson, C., Legrand, J., and Pilon, L. (2016). Comparison of experimentally and theoretically determined radiation characteristics of photosynthetic microorganisms. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 175, 30–45. doi: 10.1016/j.jqsrt.2016.01.031.
- Kantarci, N., Borak, F., and Ulgen, K. O. (2005). Bubble column reactors. *Process Biochemistry* 40, 2263–2283. doi: 10.1016/j.procbio.2004.10.004.
- Karl, D. M. (2014). Microbially Mediated Transformations of Phosphorus in the Sea: New Views of an Old Cycle. *Annu. Rev. Mar. Sci.* 6, 279–337. doi: 10.1146/annurev-marine-010213-135046.
- Kazbar, A., Cogne, G., Urbain, B., Marec, H., Le-Gouic, B., Tallec, J., et al. (2019). Effect of dissolved oxygen concentration on microalgal culture in photobioreactors. *Algal Research* 39, 101432. doi: 10.1016/j.algal.2019.101432.
- Kazemzadeh, Y., Sourani, S., Reyhani, M., Shabani, A., and Maghami, E. (2014). Evaluation of Interfacial Tension by Image Processing of the Shape Drops. *OALib* 01, 1–7. doi: 10.4236/oalib.1100626.
- Kherbeche, A., Milnes, J., Jimenez, M., Dietrich, N., Hébrard, G., and Lekhlif, B. (2013). Multi-scale analysis of the influence of physicochemical parameters on the hydrodynamic and gas–liquid mass transfer in gas/liquid/solid reactors. *Chemical Engineering Science* 100, 515–528. doi: 10.1016/j.ces.2013.06.025.
- Kim, J. Y., Kim, B., Nho, N.-S., Go, K.-S., Kim, W., Bae, J. W., et al. (2017). Gas holdup and hydrodynamic flow regime transition in bubble columns. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 56, 450–462. doi: 10.1016/j.jiec.2017.07.043.
- Koide, K., Sato, H., and Iwamoto, S. (1983). Gas holdup and volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in bubble column with draught tube and with gas dispersion into annulus. *J. Chem. Eng. Japan / JCEJ* 16, 407–413. doi: 10.1252/jcej.16.407.
- Kojic, P., Sijacki, I., Lukic, N., Jovicevic, D., Popovic, S., and Petrovic, D. (2016). Volumetric gas-liquid mass transfer coefficient in an external-loop airlift reactor with inserted membrane. *CI&CEQ* 22, 275–284. doi: 10.2298/CICEQ150622041K.
- Kolmogorov, A. (1941). The Local Structure of Turbulence in Incompressible Viscous Fluid for Very Large Reynolds' Numbers. *Akademiia Nauk SSSR Doklady* 30, 301–305.

- Kreutzer, M. T., Kapteijn, F., and Moulijn, J. A. (2006). Shouldn't catalysts shape up? *Catalysis Today* 111, 111–118. doi: 10.1016/j.cattod.2005.10.014.
- Krishna, R., Dreher, A. J., and Urseanu, M. I. (2000). Influence of alcohol addition on gas hold-up in bubble columns: Development of a scale up model. *International Communications in Heat and Mass Transfer* 27, 465–472. doi: 10.1016/S0735-1933(00)00129-9.
- Krishna, R., and Ellenberger, J. (1996). Gas holdup in bubble column reactors operating in the churn-turbulent flow regime. *AIChE Journal* 42, 2627–2634. doi: 10.1002/aic.690420923.
- Krishna, R., Wilkinson, P. M., and Van Dierendonck, L. L. (1991). A model for gas holdup in bubble columns incorporating the influence of gas density on flow regime transitions. *Chemical Engineering Science* 46, 2491–2496. doi: 10.1016/0009-2509(91)80042-W.
- Krohn-Molt, I., Wemheuer, B., Alawi, M., Poehlein, A., Güllert, S., Schmeisser, C., et al. (2013). Metagenome survey of a multispecies and alga-associated biofilm revealed key elements of bacterial-algal interactions in photobioreactors. *Appl Environ Microbiol* 79, 6196–6206. doi: 10.1128/AEM.01641-13.
- Kumar, K., Mishra, S. K., Shrivastav, A., Park, M. S., and Yang, J.-W. (2015). Recent trends in the mass cultivation of algae in raceway ponds. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 51, 875–885. doi: 10.1016/j.rser.2015.06.033.
- Kumar, N., Bansal, A., and Gupta, R. (2018). Shear rate and mass transfer coefficient in internal loop airlift reactors involving non-Newtonian fluids. *Chemical Engineering Research and Design* 136, 315–323. doi: 10.1016/j.cherd.2018.05.042.
- Le Borgne, F. (2011). Développement d'un photobioréacteur solaire intensifié en vue de la production à grande échelle de biomasse microalgale. Available at: <https://www.theses.fr/2011NANT2025> [Accessed April 28, 2023].
- Le Gouic, B. (2013). Analyse et optimisation de l'apport de carbone en photobioréacteur. Available at: <https://www.theses.fr/2013ECDN0020> [Accessed August 25, 2023].
- Lee, E., Pruvost, J., He, X., Munipalli, R., and Pilon, L. (2014). Design tool and guidelines for outdoor photobioreactors. *Chemical Engineering Science* 106, 18–29. doi: 10.1016/j.ces.2013.11.014.
- Lelièvre, C., Legentilhomme, P., Gaucher, C., Legrand, J., Faille, C., and Bénézech, T. (2002). Cleaning in place: effect of local wall shear stress variation on bacterial removal from stainless steel equipment. *Chemical Engineering Science* 57, 1287–1297. doi: 10.1016/S0009-2509(02)00019-2.
- Letzel, H. M., Schouten, J. C., Krishna, R., and van den Bleek, C. M. (1997). Characterization of regimes and regime transitions in bubble columns by chaos analysis of pressure signals. *Chemical Engineering Science* 52, 4447–4459. doi: 10.1016/S0009-2509(97)00290-X.
- Lévêque, A. (1928). *Les Lois de la transmission de chaleur par convection*, par André Lévêque. Dunod.

- Lewis, W. K., and Whitman, W. G. (1924). Principles of Gas Absorption. *Ind. Eng. Chem.* 16, 1215–1220. doi: 10.1021/ie50180a002.
- Li, S., Zhu, C., Fu, T., and Ma, Y. (2012). Study on the mass transfer of bubble swarms in three different rheological fluids. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 55, 6010–6016. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.06.011.
- Li, X., Wang, W., Zhang, P., Li, J., and Chen, G. (2019). Interactions between gas–liquid mass transfer and bubble behaviours. *Royal Society Open Science* 6, 190136. doi: 10.1098/rsos.190136.
- Lin, T.-J., Tsuchiya, K., and Fan, L.-S. (1998). Bubble flow characteristics in bubble columns at elevated pressure and temperature. *AIChE Journal* 44, 545–560. doi: 10.1002/aic.690440306.
- Liu, L., Pohnert, G., and Wei, D. (2016). Extracellular Metabolites from Industrial Microalgae and Their Biotechnological Potential. *Marine Drugs* 14, 191. doi: 10.3390/md14100191.
- Liu, L., Yan, H., and Zhao, G. (2015). Experimental studies on the shape and motion of air bubbles in viscous liquids. *Experimental Thermal and Fluid Science* 62, 109–121. doi: 10.1016/j.expthermflusci.2014.11.018.
- Loubière, K., and Hébrard, G. (2004). Influence of liquid surface tension (surfactants) on bubble formation at rigid and flexible orifices. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 43, 1361–1369. doi: 10.1016/j.cep.2004.03.009.
- Luo, L., Liu, F., Xu, Y., and Yuan, J. (2011). Hydrodynamics and mass transfer characteristics in an internal loop airlift reactor with different spargers. *Chemical Engineering Journal* 175, 494–504. doi: 10.1016/j.cej.2011.09.078.
- Lupi, F. M., Fernandes, H. M. L., Tomé, M. M., Sá-Correia, I., and Novais, J. M. (1994). Influence of nitrogen source and photoperiod on exopolysaccharide synthesis by the microalga *Botryococcus braunii* UC 58. *Enzyme and Microbial Technology* 16, 546–550. doi: 10.1016/0141-0229(94)90116-3.
- Maalej, S., Benadda, B., and Otterbein, M. (2003). Interfacial area and volumetric mass transfer coefficient in a bubble reactor at elevated pressures. *Chemical Engineering Science* 58, 2365–2376. doi: 10.1016/S0009-2509(03)00085-X.
- Magnaudet, J., and Eames, I. (2000). The Motion of High-Reynolds-Number Bubbles in Inhomogeneous Flows. *Annual Review of Fluid Mechanics* 32, 659–708. doi: 10.1146/annurev.fluid.32.1.659.
- Manjrekar, O. N., Sun, Y., He, L., Tang, Y. J., and Dudukovic, M. P. (2017). Hydrodynamics and mass transfer coefficients in a bubble column photo-bioreactor. *Chemical Engineering Science* 168, 55–66. doi: 10.1016/j.ces.2017.04.016.
- Margaritis, A., te Bokkel, D. W., and Karamanev, D. G. (1999). Bubble rise velocities and drag coefficients in non-Newtonian polysaccharide solutions. *Biotechnol Bioeng* 64, 257–266. doi: 10.1002/(sici)1097-0290(19990805)64:3<257::aid-bit1>3.0.co;2-f.

- Martínez Mercado, J., Chehata Gómez, D., Van Gils, D., Sun, C., and Lohse, D. (2010). On bubble clustering and energy spectra in pseudo-turbulence. *J. Fluid Mech.* 650, 287–306. doi: 10.1017/S0022112009993570.
- Maximiano Raimundo, P., Cloupet, A., Cartellier, A., Beneventi, D., and Augier, F. (2019). Hydrodynamics and scale-up of bubble columns in the heterogeneous regime: Comparison of bubble size, gas holdup and liquid velocity measured in 4 bubble columns from 0.15 m to 3 m in diameter. *Chemical Engineering Science* 198, 52–61. doi: 10.1016/j.ces.2018.12.043.
- Maxworthy, T. (1987). The nonlinear growth of a gravitationally unstable interface in a Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech.* 177, 207–232. doi: 10.1017/S0022112087000922.
- Maxworthy, T. (1991). Bubble rise under an inclined plate. *J. Fluid Mech.* 229, 659. doi: 10.1017/S002211209100321X.
- McClure, D. D., Aboudha, N., Kavanagh, J. M., Fletcher, D. F., and Barton, G. W. (2015). Mixing in bubble column reactors: Experimental study and CFD modeling. *Chemical Engineering Journal* 264, 291–301. doi: 10.1016/j.cej.2014.11.090.
- Medeiros, A. C. de A. P. (2016). Etude expérimentale de la formation des biofilms sous conditions hydrodynamiques contrôlées. Available at: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01482919> [Accessed September 16, 2020].
- Mendez-Díaz, S., Serrano-García, J. C., Zenit, R., and Hernández-Cordero, J. A. (2013). Power spectral distributions of pseudo-turbulent bubbly flows. *Physics of Fluids* 25, 043303. doi: 10.1063/1.4800782.
- Miura, H., Katoh, T., and Kawase, Y. (2012). Gas–liquid mass transfer in co-current three-phase fluidized beds with non-Newtonian fluids: Theoretical models based on the energy dissipation rate. *Chemical Engineering Journal* 185–186, 337–346. doi: 10.1016/j.cej.2012.01.065.
- Mouza, A. A., Dalakoglou, G. K., and Paras, S. V. (2005). Effect of liquid properties on the performance of bubble column reactors with fine pore spargers. *Chemical Engineering Science* 60, 1465–1475. doi: 10.1016/j.ces.2004.10.013.
- Muller-Feuga, A., Le Guédes, R., and Pruvost, J. (2003). Benefits and limitations of modeling for optimization of Porphyridium cruentum cultures in an annular photobioreactor. *Journal of Biotechnology* 103, 153–163. doi: 10.1016/S0168-1656(03)00100-7.
- Oder, M., Fink, R., Bohinc, K., and Torkar, K. G. (2017). The influence of shear stress on the adhesion capacity of Legionella pneumophila. *Archives of Industrial Hygiene and Toxicology* 68, 109–115. doi: 10.1515/aiht-2017-68-2904.
- Ohki, Y., and Inoue, H. (1970). Longitudinal mixing of the liquid phase in bubble columns. *Chemical Engineering Science* 25, 1–16. doi: 10.1016/0009-2509(70)85016-3.
- Olivieri, G., Elena Russo, M., Simeone, M., Marzocchella, A., and Salatino, P. (2011). Effects of viscosity and relaxation time on the hydrodynamics of gas–liquid systems. *Chemical Engineering Science* 66, 3392–3399. doi: 10.1016/j.ces.2011.01.027.

- Olivieri, G., Salatino, P., and Marzocchella, A. (2014). Advances in photobioreactors for intensive microalgal production: configurations, operating strategies and applications: Advances in photobioreactors for intensive microalgal production. *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 89, 178–195. doi: 10.1002/jctb.4218.
- Olivo, E. (2007). Conception et étude d'un photobioréacteur pour la production en continu de microalgues en écloséries aquacoles. Available at: <https://archimer.ifremer.fr/doc/00000/3847/> [Accessed March 17, 2019].
- Olmos, E. (2002). Étude expérimentale et numérique des écoulements gaz-liquide en colonne à bulles. Available at: <https://www.theses.fr/2002INPL045N> [Accessed April 25, 2023].
- Olmos, E., Gentric, C., and Midoux, N. (2003a). Numerical description of flow regime transitions in bubble column reactors by a multiple gas phase model. *Chemical Engineering Science* 58, 2113–2121. doi: 10.1016/S0009-2509(03)00013-7.
- Olmos, E., Gentric, C., Poncin, S., and Midoux, N. (2003b). Description of flow regime transitions in bubble columns via laser Doppler anemometry signals processing. *Chemical Engineering Science* 58, 1731–1742.
- Olmos, E., Gentric, C., Vial, C., Wild, G., and Midoux, N. (2001). Numerical simulation of multiphase flow in bubble column reactors. Influence of bubble coalescence and break-up. *Chemical Engineering Science* 56, 6359–6365. doi: 10.1016/S0009-2509(01)00204-4.
- Pandit, A. B., and Joshi, J. B. (1983). Mixing in mechanically agitated gas-liquid contactors, bubble columns and modified bubble columns. *Chemical Engineering Science* 38, 1189–1215. doi: 10.1016/0009-2509(83)80040-2.
- Parini, M. R., and Pitt, W. G. (2006). Dynamic removal of oral biofilms by bubbles. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* 52, 39–46. doi: 10.1016/j.colsurfb.2006.06.005.
- Pawar, S. B. (2016). Process Engineering Aspects of Vertical Column Photobioreactors for Mass Production of Microalgae. *ChemBioEng Reviews* 3, 101–115. doi: 10.1002/cben.201600003.
- Pechaud, Y., Marcato-Romain, C. E., Girbal-Neuhauser, E., Queinnec, I., Bessiere, Y., and Paul, E. (2012). Combining hydrodynamic and enzymatic treatments to improve multi-species thick biofilm removal. *Chemical Engineering Science* 80, 109–118. doi: 10.1016/j.ces.2012.06.014.
- Peng, L., Lan, C. Q., and Zhang, Z. (2013). Evolution, detrimental effects, and removal of oxygen in microalga cultures: A review. *Environmental Progress & Sustainable Energy* 32, 982–988. doi: 10.1002/ep.11841.
- Plais, C., and Augier, F. (2016). Effect of liquid viscosity on mixing times in bubble columns. *Theor Found Chem Eng* 50, 969–974. doi: 10.1134/S0040579516060142.
- Pragya, N., Pandey, K. K., and Sahoo, P. K. (2013). A review on harvesting, oil extraction and biofuels production technologies from microalgae. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 24, 159–171. doi: 10.1016/j.rser.2013.03.034.

- Prakash, R., Kumar Majumder, S., and Singh, A. (2018). Gas holdup and frictional pressure drop contributions in microstructured two- and three-phase bubbling bed with Newtonian and non-Newtonian liquids: Effect of coarse and fine particles with surface active agent. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification* 133, 40–57. doi: 10.1016/j.cep.2018.09.020.
- Prokop, A., Bajpai, R. K., and Zappi, M. E. (2015). *Algal Biorefineries: Volume 2: Products and Refinery Design*. Springer.
- Pruvost, J. (2011). “Cultivation of Algae in Photobioreactors for Biodiesel Production,” in *Biofuels* (Elsevier), 439–464. doi: 10.1016/B978-0-12-385099-7.00020-6.
- Pruvost, J., and Cornet, J.-F. (2012). “Knowledge models for the engineering and optimization of photobioreactors,” in *Microalgal Biotechnology: Potential and Production*, eds. C. Posten and C. Walter (De Gruyter), 181–224. Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-02539915> [Accessed August 21, 2020].
- Pruvost, J., Cornet, J.-F., and Legrand, J. (2008). Hydrodynamics influence on light conversion in photobioreactors: An energetically consistent analysis. *Chemical Engineering Science* 63, 3679–3694. doi: 10.1016/j.ces.2008.04.026.
- Pruvost, J., Cornet, J.-F., and Pilon, L. (2016). “Large-Scale Production of Algal Biomass: Photobioreactors,” in *Algae Biotechnology: Products and Processes Green Energy and Technology.*, eds. F. Bux and Y. Chisti (Cham: Springer International Publishing), 41–66. doi: 10.1007/978-3-319-12334-9\_3.
- Pruvost, J., Le Borgne, F., Artu, A., and Legrand, J. (2017). Development of a thin-film solar photobioreactor with high biomass volumetric productivity (AlgoFilm©) based on process intensification principles. *Algal Research* 21, 120–137. doi: 10.1016/j.algal.2016.10.012.
- Quinquis, A., Radoi, E., Ioana, C., and Mansour, A. (2007). *Le traitement du signal sous Matlab : pratique et applications*. Hermes Science Publications Available at: <https://hal.univ-brest.fr/hal-00485698> [Accessed April 22, 2020].
- Rafai, S., Jibuti, L., and Peyla, P. (2010). Effective Viscosity of Microswimmer Suspensions. *Physical Review Letters* 104, 098102. doi: 10.1103/PhysRevLett.104.098102.
- Raso, S., Van Genugten, B., Vermuë, M., and Wijffels, R. H. (2012). Effect of oxygen concentration on the growth of *Nannochloropsis* sp. at low light intensity. *J Appl Phycol* 24, 863–871. doi: 10.1007/s10811-011-9706-z.
- Rasoul-Amini, S., Montazeri-Najafabady, N., Shaker, S., Safari, A., Kazemi, A., Mousavi, P., et al. (2014). Removal of nitrogen and phosphorus from wastewater using microalgae free cells in bath culture system. *Biocatalysis and Agricultural Biotechnology* 3, 126–131. doi: 10.1016/j.bcab.2013.09.003.
- Ravinath, M., Kasat, G. R., and Pandit, A. B. (2008). Mixing Time in a Short Bubble Column. *Can. J. Chem. Eng.* 81, 185–195. doi: 10.1002/cjce.5450810203.

- Rehimi, F., Aloui, F., Ben Nasrallah, S., Doublicz, L., and Legrand, J. (2006). Inverse method for electrodiffusional diagnostics of flows. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49, 1242–1254. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.10.008.
- Reilly, I. G., Scott, D. S., Debruijn, T. J. W., and Macintyre, D. (1994). The role of gas phase momentum in determining gas holdup and hydrodynamic flow regimes in bubble column operations. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 72, 3–12. doi: 10.1002/cjce.5450720102.
- Reiss, L. P., and Hanratty, T. J. (1963). An experimental study of the unsteady nature of the viscous sublayer. *AIChE Journal* 9, 154–160. doi: 10.1002/aic.690090204.
- Riboux, G., Risso, F., and Legendre, D. (2010). Experimental characterization of the agitation generated by bubbles rising at high Reynolds number. *Journal of Fluid Mechanics* 643, 509–539. doi: 10.1017/S0022112009992084.
- Richmond, A. ed. (2003). *Handbook of Microalgal Culture*. Oxford, UK: Blackwell Publishing Ltd doi: 10.1002/9780470995280.
- Richmond, A. ed. (2004). *Handbook of microalgal culture: biotechnology and applied phycology*. Oxford, OX, UK ; Ames, Iowa, USA: Blackwell Science.
- Richmond, A., and Hu, Q. eds. (2013). *Handbook of microalgal culture: applied phycology and biotechnology*. 2. ed. Chichester: Wiley-Blackwell.
- Risso, F. (2011). Theoretical model for  $k-3$  spectra in dispersed multiphase flows. *Physics of Fluids* 23, 011701. doi: 10.1063/1.3530438.
- Roig, V., Roudet, M., Risso, F., and Billet, A.-M. (2012). Dynamics of a high-Reynolds-number bubble rising within a thin gap. *Journal of Fluid Mechanics* 707, 444–466. doi: 10.1017/jfm.2012.289.
- Roudet, M. (2008). Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confinée entre deux plaques. Available at: <http://ethesis.inp-toulouse.fr/archive/00000806/> [Accessed April 29, 2020].
- Roudet, M., Billet, A.-M., Cazin, S., Risso, F., and Roig, V. (2017). Experimental investigation of interfacial mass transfer mechanisms for a confined high-reynolds-number bubble rising in a thin gap. *AIChE Journal* 63, 2394–2408. doi: 10.1002/aic.15562.
- Roudet, M., Billet, A.-M., Risso, F., and Roig, V. (2011a). PIV with volume lighting in a narrow cell: An efficient method to measure large velocity fields of rapidly varying flows. *Experimental Thermal and Fluid Science* 35, 1030–1037. doi: 10.1016/j.expthermflusci.2011.02.004.
- Roudet, M., Loubiere, K., Gourdon, C., and Cabassud, M. (2011b). Hydrodynamic and mass transfer in inertial gas–liquid flow regimes through straight and meandering millimetric square channels. *Chemical Engineering Science* 66, 2974–2990. doi: 10.1016/j.ces.2011.03.045.
- Roustan, M. (2003). *Transferts gaz-liquide dans les procédés de traitement des eaux et des effluents gazeux*. Tec & Doc Lavoisier.

- Ruiz-Rus, J., Ern, P., Roig, V., and Martínez-Bazán, C. (2022). Coalescence of bubbles in a high Reynolds number confined swarm. *J. Fluid Mech.* 944, A13. doi: 10.1017/jfm.2022.492.
- Ruzicka, M. C., Drahoš, J., Fialová, M., and Thomas, N. H. (2001). Effect of bubble column dimensions on flow regime transition. *Chemical Engineering Science* 56, 6117–6124. doi: 10.1016/S0009-2509(01)00215-9.
- Ruzicka, M. C., Drahoš, J., Mena, P. C., and Teixeira, J. A. (2003). Effect of viscosity on homogeneous–heterogeneous flow regime transition in bubble columns. *Chemical Engineering Journal* 96, 15–22. doi: 10.1016/j.cej.2003.08.009.
- Sabiri, N.-E., Chhabra, R. P., Comiti, J., and Montillet, A. (2012). Measurement of shear rate on the surface of a cylinder submerged in laminar flow of power-law fluids. *Experimental Thermal and Fluid Science* 39, 167–175. doi: 10.1016/j.expthermflusci.2012.01.021.
- Şal, S., Gül, Ö. F., and Özdemir, M. (2013). The effect of sparger geometry on gas holdup and regime transition points in a bubble column equipped with perforated plate spargers. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 70, 259–266. doi: 10.1016/j.cep.2013.03.012.
- Sánchez Mirón, A., García Camacho, F., Contreras Gómez, A., Grima, E. M., and Chisti, Y. (2000). Bubble-column and airlift photobioreactors for algal culture. *AIChE Journal* 46, 1872–1887. doi: 10.1002/aic.690460915.
- Sarrafi, A., Müller-Steinhagen, H., Smith, J. M., and Jamialahmadi, M. (1999). Gas holdup in homogeneous and heterogeneous gas–liquid bubble column reactors. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 77, 11–21. doi: 10.1002/cjce.5450770104.
- Sathe, M., Joshi, J., and Evans, G. (2013). Characterization of turbulence in rectangular bubble column. *Chemical Engineering Science* 100, 52–68. doi: 10.1016/j.ces.2013.01.004.
- Sayed, O., and Elshahed, A. (2000). Growth, photosynthesis and circadian patterns in (Chlorophyta) in response to growth temperature. *Cryptogamie Algologie* 21, 283–290. doi: 10.1016/S0181-1568(00)00115-X.
- Schnurr, P. J., and Allen, D. G. (2015). Factors affecting algae biofilm growth and lipid production: A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 52, 418–429. doi: 10.1016/j.rser.2015.07.090.
- Schumpe, A., and Grund, G. (1986). The gas disengagement technique for studying gas holdup structure in bubble columns. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 64, 891–896. doi: 10.1002/cjce.5450640602.
- Shah, Y. T., Kelkar, B. G., Godbole, S. P., and Deckwer, W.-D. (1982). Design parameters estimations for bubble column reactors. *AIChE Journal* 28, 353–379. doi: 10.1002/aic.690280302.
- Shaikh, A., and Al-Dahhan, M. H. (2007). A Review on Flow Regime Transition in Bubble Columns. *International Journal of Chemical Reactor Engineering* 5. doi: 10.2202/1542-6580.1368.

- Sharma, P. K., Gibcus, M. J., van der Mei, H. C., and Busscher, H. J. (2005). Influence of Fluid Shear and Microbubbles on Bacterial Detachment from a Surface. *Appl Environ Microbiol* 71, 3668–3673. doi: 10.1128/AEM.71.7.3668-3673.2005.
- Shilapuram, V., and Sai, P. S. T. (2012). Axial Solids Holdup Distribution in a Liquid–Solid Circulating Fluidized Bed: Effect of the Liquid Distributor, Method of Operation, and Viscosity of the Fluidizing Media. *Ind. Eng. Chem. Res.* 51, 16242–16250. doi: 10.1021/ie2030085.
- Shuba, E. S., and Kifle, D. (2018). Microalgae to biofuels: ‘Promising’ alternative and renewable energy, review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 81, 743–755. doi: 10.1016/j.rser.2017.08.042.
- Simonnet, M. (2005). Etude expérimentale du mouvement de bulles en essaim : application à la simulation numérique de colonnes à bulles.
- Simonnet, M., Gentric, C., Olmos, E., and Midoux, N. (2008). CFD simulation of the flow field in a bubble column reactor: Importance of the drag force formulation to describe regime transitions. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 47, 1726–1737. doi: 10.1016/j.cep.2007.08.015.
- Sobolik, V., Tihon, J., Wein, O., and Wichterle, K. (1998). Calibration of electrodiffusion friction probes using a voltage-step transient. *Journal of Applied Electrochemistry* 28, 329–335. doi: 10.1023/A:1003224018571.
- Sobolík, V., Wein, O., and Čermák, J. (1987). Simultaneous measurement of film thickness and wall shear stress in wavy flow of non-Newtonian liquids. *Collect. Czech. Chem. Commun.* 52, 913–928. doi: 10.1135/cccc19870913.
- Souliès, A. (2014). Contribution à l’étude hydrodynamique et à la modélisation des photobioréacteurs à haute productivité volumique. Available at: <http://www.theses.fr/2014NANT2006> [Accessed February 13, 2020].
- Souliès, A., Legrand, J., Marec, H., Pruvost, J., Castelain, C., Burghelea, T., et al. (2016). Investigation and modeling of the effects of light spectrum and incident angle on the growth of *Chlorella vulgaris* in photobioreactors. *Biotechnology Progress* 32, 247–261. doi: 10.1002/btpr.2244.
- Souliès, A., Pruvost, J., Legrand, J., Castelain, C., and Burghelea, T. I. (2013). Rheological properties of suspensions of the green microalga *Chlorella vulgaris* at various volume fractions. *Rheol Acta* 52, 589–605. doi: 10.1007/s00397-013-0700-z.
- Takache, H. (2010). Caractérisation, modélisation de la croissance photosynthétique de *Chlamydomonas reinhardtii* en photobioréacteur et mise en évidence du couplage à l’hydrodynamique. Available at: <http://www.theses.fr/2010NANT2072> [Accessed May 26, 2019].
- Takache, H., Christophe, G., Cornet, J.-F., and Pruvost, J. (2009). Experimental and theoretical assessment of maximum productivities for the microalgae *Chlamydomonas reinhardtii* in two different geometries of photobioreactors. *Biotechnol Progress*, NA-NA. doi: 10.1002/btpr.356.

- Talvy, S., Cockx, A., and Liné, A. (2007). Modeling hydrodynamics of gas–liquid airlift reactor. *AIChE J.* 53, 335–353. doi: 10.1002/aic.11078.
- Terasaka, K., Nitta, J., Fukuda, H., Iwahashi, M., Goshima, T., and Fujioka, S. (2013). Oxygen transfer into xanthan solutions in partitioned bubble columns. *CHEM. ENGG. (JAPAN)* 46, 33–39. doi: 10.1252/jcej.12we164.
- Thobie, C. (2018). Caractérisation de l'hydrodynamique et des transferts gaz-liquide dans un photobioréacteur intensifié : étude de l'effet du bullage sur le développement de biofilm micro-algal. Available at: <http://www.theses.fr/2018NANT4012> [Accessed April 30, 2019].
- Thobie, C., Blel, W., Dupré, C., Marec, H., Pruvost, J., and Gentric, C. (2022a). Different types of bubbly flows in a confined channel with the aim of limiting microalgae biofilm development – Part II: Study of the development and removal of microalgae biofilm. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification* 175, 108899. doi: 10.1016/j.cep.2022.108899.
- Thobie, C., Blel, W., Hauser, J.-L., Pruvost, J., and Gentric, C. (2022b). Different types of bubbly flows in a confined channel with the aim of limiting microalgae biofilm development - Part I: Hydrodynamic study. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification* 173, 108844. doi: 10.1016/j.cep.2022.108844.
- Thobie, C., Gadoin, E., Blel, W., Pruvost, J., and Gentric, C. (2017). Global characterization of hydrodynamics and gas-liquid mass transfer in a thin-gap bubble column intended for microalgae cultivation. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 122, 76–89. doi: 10.1016/j.cep.2017.10.009.
- Thomen, P., Robert, J., Monmeyran, A., Bitbol, A.-F., Douarche, C., and Henry, N. (2017). Bacterial biofilm under flow: First a physical struggle to stay, then a matter of breathing. *PLOS ONE* 12, e0175197. doi: 10.1371/journal.pone.0175197.
- Tisné, P. (2003). Étude par la méthode polarographique des contraintes pariétales exercées par une mousse en écoulement. Available at: <http://www.theses.fr/2003NANT2034> [Accessed June 11, 2020].
- Todisco, É. (2019). Microalgae Growth Optimization in Biofaçade Photobioreactors. Available at: <http://www.theses.fr/2019NANT4040> [Accessed August 21, 2020].
- Triveni, B., Vishwanadham, B., Madhavi, T., and Venkateshwar, S. (2010). Mixing studies of non-Newtonian fluids in an anchor agitated vessel. *Chemical Engineering Research and Design* 88, 809–818. doi: 10.1016/j.cherd.2009.11.020.
- Ugwu, C. U., Aoyagi, H., and Uchiyama, H. (2008). Photobioreactors for mass cultivation of algae. *Bioresource Technology* 99, 4021–4028. doi: 10.1016/j.biortech.2007.01.046.
- Urseau, M. I., Guit, R. P. M., Stankiewicz, A., van Kranenburg, G., and Lommen, J. H. G. M. (2003). Influence of operating pressure on the gas hold-up in bubble columns for high viscous media. *Chemical Engineering Science* 58, 697–704. doi: 10.1016/S0009-2509(02)00597-3.

- Vandu, C. O., and Krishna, R. (2004). Influence of scale on the volumetric mass transfer coefficients in bubble columns. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 43, 575–579. doi: 10.1016/S0255-2701(03)00015-1.
- Vélez-Cordero, J. R., and Zenit, R. (2011). Bubble cluster formation in shear-thinning inelastic bubbly columns. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 166, 32–41. doi: 10.1016/j.jnnfm.2010.10.003.
- Vial, C. (2000). Apport des méthodes de la mécanique des fluides à l'étude des contacteurs gaz/liquide : expérience et simulation numérique. Available at: <https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749947> [Accessed September 21, 2020].
- Vial, C., Camarasa, E., Poncin, S., Wild, G., Midoux, N., and Bouillard, J. (2000). Study of hydrodynamic behaviour in bubble columns and external loop airlift reactors through analysis of pressure fluctuations. *Chemical Engineering Science* 55, 2957–2973. doi: 10.1016/S0009-2509(99)00551-5.
- Vree, J. H. D., Bosma, R., Janssen, M., Barbosa, M. J., and Wijffels, R. H. (2015). Comparison of four outdoor pilot-scale photobioreactors. *Biotechnology for Biofuels* 8, 215. doi: 10.1186/s13068-015-0400-2.
- Vries, A. W. G. de (2001). Path and wake of a Rising Bubble. Available at: <https://research.utwente.nl/en/publications/path-and-wake-of-a-rising-bubble> [Accessed April 26, 2023].
- Wibisono, Y., Obied, K. E. E., Cornelissen, E. R., Kemperman, A. J. B., and Nijmeijer, K. (2015). Biofouling removal in spiral-wound nanofiltration elements using two-phase flow cleaning. *Journal of Membrane Science* 475, 131–146. doi: 10.1016/j.memsci.2014.10.016.
- Wileman, A., Ozkan, A., and Berberoglu, H. (2012). Rheological properties of algae slurries for minimizing harvesting energy requirements in biofuel production. *Bioresource Technology* 104, 432–439. doi: 10.1016/j.biortech.2011.11.027.
- Wilkinson, P. M., Haringa, H., and Van Dierendonck, L. L. (1994). Mass transfer and bubble size in a bubble column under pressure. *Chemical Engineering Science* 49, 1417–1427. doi: 10.1016/0009-2509(93)E0022-5.
- Wilkinson, P. M., Spek, A. P., and Dierendonck, L. L. van (1992). Design parameters estimation for scale-up of high-pressure bubble columns. *AIChE Journal* 38, 544–554. doi: 10.1002/aic.690380408.
- Wongwailikhit, K., Warunyuwong, P., Chawaloeshphonsiya, N., Dietrich, N., Hébrard, G., and Painmanakul, P. (2018). Gas Sparger Orifice Sizes and Solid Particle Characteristics in a Bubble Column - Relative Effect on Hydrodynamics and Mass Transfer. *Chem. Eng. Technol.* 41, 461–468. doi: 10.1002/ceat.201700293.
- Wu, Q., Wang, X., Wang, T., Han, M., Sha, Z., and Wang, J. (2013). Effect of liquid viscosity on hydrodynamics and bubble behaviour of an external-loop airlift reactor. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 91, 1957–1963. doi: 10.1002/cjce.21788.

- Wu, X., and Merchuk, J. C. (2001). A model integrating fluid dynamics in photosynthesis and photoinhibition processes. *Chemical Engineering Science* 56, 3527–3538. doi: 10.1016/S0009-2509(01)00048-3.
- Xing, C., Wang, T., and Wang, J. (2013). Experimental study and numerical simulation with a coupled CFD–PBM model of the effect of liquid viscosity in a bubble column. *Chemical Engineering Science* 95, 313–322. doi: 10.1016/j.ces.2013.03.022.
- Yang, G. Q., Du, B., and Fan, L. S. (2007). Bubble formation and dynamics in gas–liquid–solid fluidization—A review. *Chemical Engineering Science* 62, 2–27. doi: 10.1016/j.ces.2006.08.021.
- Yap, B. H. J., Martin, G. J. O., and Scales, P. J. (2016). Rheological manipulation of flocculated algal slurries to achieve high solids processing. *Algal Research* 14, 1–8. doi: 10.1016/j.algal.2015.12.007.
- Yoshida, F., and Akita, K. (1965). Performance of gas bubble columns: Volumetric liquid-phase mass transfer coefficient and gas holdup. *AIChE Journal* 11, 9–13. doi: 10.1002/aic.690110106.
- Zahradník, J., Fialová, M., Ružička, M., Drahoš, J., Kasánek, F., and Thomas, N. H. (1997). Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors. *Chemical Engineering Science* 52, 3811–3826. doi: 10.1016/S0009-2509(97)00226-1.
- Zakova Terezia, Jirout Tomas, Kratky Lukas, and Belohlav Vojtech (2019). Hydrodynamics as a Tool to Remove Biofilm in Tubular Photobioreactor. *Chemical Engineering Transactions* 76, 451–456. doi: 10.3303/CET1976076.
- Zaruba, A., Krepper, E., Prasser, H.-M., and Schleicher, E. (2005). Measurement of bubble velocity profiles and turbulent diffusion coefficients of the gaseous phase in rectangular bubble column using image processing. *Experimental Thermal and Fluid Science* 29, 851–860. doi: 10.1016/j.expthermflusci.2005.03.011.
- Zeriouh, O., Reinoso-Moreno, J. V., López-Rosales, L., Cerón-García, M. del C., Sánchez-Mirón, A., García-Camacho, F., et al. (2017). Biofouling in photobioreactors for marine microalgae. *Critical Reviews in Biotechnology* 37, 1006–1023. doi: 10.1080/07388551.2017.1299681.
- Zhang, X., Jiang, Z., Chen, L., Chou, A., Yan, H., Zuo, Y. Y., et al. (2013). Influence of cell properties on rheological characterization of microalgae suspensions. *Bioresour. Technol.* 139, 209–213. doi: 10.1016/j.biortech.2013.03.195.
- Zhang, Z., Zhang, H., Yuan, X., and Yu, K.-T. (2020). Effective UV-Induced Fluorescence Method for Investigating Interphase Mass Transfer of Single Bubble Rising in the Hele-Shaw Cell. *Ind. Eng. Chem. Res.* 59, 6729–6740. doi: 10.1021/acs.iecr.9b07106.



**Titre :** Photobioréacteur de type colonne à bulles confinée : hydrodynamique, transfert gaz-liquide, influence des bulles sur le cisaillement pariétal et performances de production

**Mots clés :** Colonne à bulles confinée, hydrodynamique, transfert de matière gaz-liquide, mélange, photobioréacteur, microalgue

**Résumé :** Les photobioréacteurs (PBRs) de type colonnes à bulles confinées, généralement de quelques millimètres d'entrefer, permettent théoriquement d'augmenter la productivité volumique en biomasse. Dans le cadre de cette thèse, une caractérisation approfondie de l'hydrodynamique globale et locale ainsi que du transfert de matière gaz-liquide a été réalisée dans une colonne à bulles confinée d'épaisseur 2 mm avec une viscosité élevée de la phase liquide et modifiant son comportement de Newtonien à non-Newtonien rhéofluidifiant. La concentration élevée de microalgue *Chlorella vulgaris* ( $\approx 42 \text{ g.L}^{-1}$ ) a été simulée en utilisant des solutions aqueuses de glycérol à 50% m/m et de gomme xanthane aux concentrations 0,5 et 1  $\text{g.L}^{-1}$ . L'objectif est de mieux comprendre l'influence du confinement,

de l'injection et des propriétés rhéologiques de la phase liquide sur les paramètres hydrodynamiques globaux clés, tels que le taux de vide, les régimes d'écoulement, le temps de mélange et le transfert gaz-liquide. Afin de compléter l'étude globale, une caractérisation de la phase gazeuse a été réalisée. L'hydrodynamique en proche paroi a été aussi caractérisée, afin d'identifier la contribution de la dynamique des bulles sur les contraintes de cisaillement à la paroi. Enfin, les connaissances acquises avec les essais de fluides modèles ont été mises à l'épreuve pour maximiser la productivité de la biomasse microalgale, en exploitant ce PBR intensifié en mode de culture continu avec *Chlorella vulgaris*.

**Title:** Thin-gap bubble column photobioreactor: hydrodynamics, gas-liquid mass transfer, bubble influence on wall shear stress and production performance

**Keywords:** Thin-gap bubble column, hydrodynamics, gas-liquid mass transfer, mixing, photobioreactor, microalgae

**Abstract:** Thin-gap bubble column photobioreactors (PBRs), typically with a few millimeters' gaps, theoretically offer the potential to increase volumetric biomass productivity. In the context of this thesis, a comprehensive characterization of both global and local hydrodynamics, as well as gas-liquid mass transfer, is conducted within a confined bubble column having a 2 mm thickness and at high viscosity of the liquid phase, changing from Newtonian to non-Newtonian shear-thinning behavior. The high concentration of microalgae *Chlorella vulgaris* ( $\approx 42 \text{ g.L}^{-1}$ ) is mimicked using aqueous solutions of 50 wt% glycerol and xanthan gum at 0.5 and 1  $\text{g.L}^{-1}$ . The objective is to better understand the influence of

confinement, injection, and rheological properties of the liquid phase on global hydrodynamic parameters, such as gas holdup, flow regimes, mixing time, and gas-liquid mass transfer. To complete the global study, a characterization of the gaseous phase is performed. The hydrodynamics near the walls are also characterized to identify the contribution of bubble dynamics to wall shear stress. Finally, the knowledge acquired from model fluids experiments is used in culture experiments to optimize the production of microalgal biomass. This was achieved by using this intensified PBR in a continuous culture mode with *Chlorella vulgaris*.