

Avis de Soutenance

Madame Ranim CHAKLEH

Chimie

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés
Procédés multiéchelles pour l'émulsification double: suivi et modélisation

Travaux dirigés par Madame Nida SHEIBAT-OTHMAN

Soutenance prévue le **mercredi 08 avril 2026** à 14h00

Lieu : Université Lyon 1, Bibliothèque universitaire - Salle des conférences au 20 Avenue Gaston Berger à Villeurbanne

Composition du jury proposé

| | | | |
|-------------------------|---|---------------------------------------|-----------------------|
| Mme Nida SHEIBAT-OTHMAN | Directrice de recherche | CNRS Lyon | Directrice de thèse |
| M. Noureddine LEBAZ | Maître de conférences | Université Lyon 1 | Co-directeur de thèse |
| Mme Claudia COGNE | Professeure des universités | Université Lyon 1 | Examinatrice |
| M. Christophe VIAL | Professeur des universités | Université Clermont-Auvergne | Examineur |
| M. Huai-Zhi LI | Professeur des universités | Université de Lorraine | Rapporteur |
| M. Antonio BUFFO | Professeur associé | Ecole polytechnique de Turin (Italie) | Rapporteur |
| M. Fouad AZIZI | Université Américaine de Beyrouth (Liban) | Invité | |

Mots-clés : émulsion double, émulsification, mélangeur statique, goutte unique, procédé semi-continu, bilan de population

Résumé :

Les émulsions doubles (DE), formées de deux compartiments d'encapsulation, sont des matériaux polyvalents utilisés dans diverses applications telles que l'agroalimentaire, la pharmacie, les cosmétiques et les industries biologiques. Elles sont généralement préparées en deux étapes, où la seconde étape peut être réalisée à l'aide de différents dispositifs. Leur qualité est déterminée par la distribution de la taille des gouttelettes (DSD) et l'efficacité d'encapsulation. Pendant la préparation, plusieurs phénomènes d'instabilité peuvent survenir, notamment la diffusion/convection de la phase interne vers la phase externe ou inversement, la coalescence aux niveaux des différentes interfaces liquide-liquide, le mûrissement d'Ostwald, ou la libération, ce qui peut fortement affecter la qualité du produit final. L'apparition de ces phénomènes dépend des conditions opératoires du procédé et de la formulation. Dans cette thèse de doctorat, nous avons étudié les mécanismes régissant la formation des émulsions doubles eau-dans-huile-dans-eau (W/O/W) à travers une approche expérimentale et de modélisation. Trois échelles ont été examinées : 1- formation et détachement

d'une goutte unique d'émulsion dans une chambre non confinée à l'extrémité d'un tube capillaire sous régime d'égouttage, 2- préparation des DE dans une cuve agitée sous des conditions de turbulence, et 3- préparation intensifiée continue des DE à l'aide de mélangeurs statiques sous des conditions de turbulence. La phase dispersée considérée est non-Newtonienne à caractère rhéofluidifiant dépendant sur la fraction de gouttes internes. L'étude de la formation des gouttes uniques d'émulsion à l'extrémité d'un tube capillaire micrométrique a permis de comprendre l'interaction entre les forces internes et externes régissant la formation et le détachement des gouttes selon les conditions opératoires. Cela nous a permis d'établir un modèle pour prédire l'évolution dynamique de la tension interfaciale. À l'échelle batch, l'étude de la préparation des DE dans une cuve agitée avait pour but d'examiner l'effet de la formulation et des conditions opératoire sur l'évolution de la DSD et l'efficacité d'encapsulation, et a mis en valeurs les différents mécanismes de libération rencontrés selon l'intensité d'agitation et la durée du procédé. La libération des gouttes internes a été constatée par fuite qui accompagne la rupture des gouttes extérieures, en plus de la convection des gouttes internes vers la surface des gouttes externes et leur coalescence avec la phase externe. Nous avons proposé un modèle numérique couplant une équation 1D de bilan de population qui prédit l'évolution dynamique des DSD avec un bilan de masse distribué sur les classes de gouttes externes, afin de prédire leur cinétique de libération. La transition vers un procédé continu intensifié est considérée dans la troisième partie. Nous avons étudié la préparation des DE à l'aide des mousses solides à cellules ouvertes et les avons comparées aux mélangeurs statiques SMX+. Il s'est avéré que les mousses à cellules ouvertes peuvent générer des émulsions doubles plus fines à un coût énergétique plus faible. Une analyse CFD a été réalisée et a montré qu'en plus de la turbulence, l'élongation induit la déformation et favorise la rupture dans les mousses à cellules ouvertes. L'évolution dynamique de la DSD a été prédite à travers un modèle de bilan de population unidimensionnel qui prend en compte à la fois l'effet de la turbulence et de la rupture induite par élongation.

Summary:

Double emulsions (DE), enclosing two encapsulation compartments, are versatile materials used in various applications such as food, pharmaceuticals, cosmetics, and biological industries. They are typically prepared in two-steps, where the second step can be achieved using different devices. Their quality is determined by the droplet size distribution (DSD) and the encapsulation efficiency. During preparation, several instability phenomena may arise, including diffusion/convection from the internal phase to the external phase or vice versa, coalescence at the different liquid-liquid interfaces, Ostwald ripening, or leakage, which can strongly affect the quality of the final product. The occurrence of these phenomena depends on the process operating conditions and the formulation. In this PhD thesis, we investigated the mechanisms governing water-in-oil-in-water (W/O/W) double emulsions formation through a combined experimental and modeling framework. Three scales were examined: 1- single emulsion drop formation and detachment in a non-confined chamber at the tip of a capillary tube under dripping regime, 2- DE preparation in a stirred tank under turbulent conditions, and 3- continuous intensified preparation of DE using static mixers under turbulent conditions. The considered dispersed phase was found to exhibit a shear-thinning character, depending on the fraction of inner drops. The examination of emulsion drop formation at the tip of a micrometric capillary tube offered an elucidation of the interplay between internal and external forces governing drop formation and detachment under different operating conditions. This allowed us to establish a model to predict the dynamic evolution of the interfacial tension. At the batch scale, the study of DE preparation in a stirred tank probed the effect of the formulation and operating conditions on the evolution of the DSD and the encapsulation efficiency, and highlighted the various release mechanisms encountered depending on the agitation intensity, and process duration. Inner drop release was found to occur by leakage that accompanies outer drops breakage, in addition to inner drops convection to the outer drop surface and their coalescence with the

external phase. We proposed a numerical model coupling a 1D population balance equation that predicts the dynamic evolution of the emulsions DSD with a distributed mass balance over the classes of outer drops, to predict their release kinetics. The transition to a continuous intensified process is considered in the third part. We investigated DEs preparation using open-cell solid foams and compared them to SMX+ static mixers. It turned out that open-cell foams can generate finer double emulsions at a lower energy cost. A CFD analysis was conducted and showed that, besides turbulence, elongation induces deformation and promotes breakage in open-cell foams. The dynamic evolution of the DSD was predicted through a 1D population balance model that accounts for the effect of both turbulence and elongation-induced breakage.