

*Les Cahiers de Rhéologie*



Volume XII, Numéro 1

Novembre 1993

Edités par :

Le Groupe Français de Rhéologie

# *Les Cahiers de Rhéologie*

**SOMMAIRE DU VOLUME XII, n° 1**

**NOVEMBRE 1993**

## **ARTICLES**

**- TECHNIQUES DE RHÉOMÉTRIE EN CISAILLEMENT SIMPLE DANS LE CAS DE DISPERSIONS ET SUSPENSIONS CONCENTRÉES .....p. 1**

**Philippe COUSSOT et Jean-Michel PIAU**  
Laboratoire de Rhéologie  
Domaine Universitaire, BP 53X  
38041 Grenoble Cedex, France

**- REFLEXIONS CONCERNANT LE DÉVELOPPEMENT DE LA BIORHÉOLOGIE .....p. 15**

**J-F. STOLTZ**, Président de la Société Française de Biorhéologie Fondamentale et Clinique  
Ancien Président de la Société Internationale de Biorhéologie  
Hémorhéologie - Hématologie - Faculté de Médecine  
BP 184 - Brabois - 54500 VANDOEUVRE

**- COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE DE SUSPENSIONS COLLOIDALES CONCENTRÉES MONODISPERSÉES ET BIDISPERSÉES .....p. 27**

**Etude expérimentale et modélisation**

**I. TALBI et D. QUEMADA**  
Laboratoire de Biorhéologie et d'Hydrodynamique Physico chimique  
CNRS URA 343 - Université Paris VII  
2 place Jussieu - 75005 PARIS

## TECHNIQUES DE RHEOMETRIE EN CISAILLEMENT SIMPLE DANS LE CAS DE DISPERSIONS ET SUSPENSIONS CONCENTREES

Philippe COUSSOT\* et Jean-Michel PIAU\*\*  
Laboratoire de Rhéologie,  
Domaine Universitaire, B.P. 53X  
38041 Grenoble Cedex, France

\* Adresse actuelle : CEMAGREF, Division Protection contre les Erosions, Domaine Universitaire, B.P.76,  
38402 Saint-Martin-d'Hères, France.

\*\* Personne à qui le courrier doit être envoyé.

**Résumé** : Les dispersions et suspensions concentrées sont des fluides aux caractéristiques complexes (seuil de contrainte, thixotropie, présence de particules grossières). Lorsqu'on se donne pour but de mesurer les paramètres de la loi de comportement de ces fluides supposés homogènes et continus, les expériences de rhéométrie s'avèrent en général délicates. Dans cet article on examine les avantages et inconvénients de différentes géométries de mesure pour étudier ce type de matériau : dimensions du rhéomètre tenant compte du fait que l'intervalle minimum entre les outils doit être grand devant la taille des particules, homogénéité du cisaillement, aptitude à tester des fluides contenant des particules grossières, possibilité de contrôler le champ des déformations par visualisation directe, etc... En parallèle on passe en revue les problèmes expérimentaux qui peuvent survenir au cours des expériences (glissement, fracturation, creusement, évaporation, ségrégation, sédimentation, centrifugation, éjection) et les précautions qui peuvent permettre de les éviter. On suggère ensuite des protocoles expérimentaux adaptés à la détermination des principales caractéristiques de ces fluides, c'est à dire le seuil de contrainte et les propriétés temporelles (thixotropie) de ces fluides.

**Abstract** : Concentrated dispersions and suspensions exhibit complex properties (yield stress, thixotropy, coarse particles in suspension). Experiments aiming at determining the constitutive equation parameters of these fluids (considered as homogeneous) appear to be difficult. In this paper we examine the advantages and disadvantages of different rheometer geometries for testing materials of this type : large dimensions of the rheometer compared to particle diameter, shear homogeneity, possibility to test fluids containing coarse particles, means of checking the deformation field by direct observation... In parallel we review the possible experimental problems (slip at the wall, fracture, evaporation, sieving, settling, centrifugation, ejection), and precautions to avoid them. We then propose specific experimental procedures to determine the main characteristics of these fluids, i.e. yield stress and time-dependent properties (thixotropy).

**Mots-clés** : Rhéométrie, dispersions, suspensions, forte concentration, techniques de mesure.

## INTRODUCTION.

Les dispersions et suspensions concentrées sont des systèmes complexes. Ces systèmes sont souvent thixotropes, très visqueux, possèdent un seuil de contrainte élevé, et/ou contiennent des particules grossières. Les expériences de rhéométrie avec de tels matériaux sont souvent délicates. On se propose ici de faire une revue des techniques et des précautions à mettre en oeuvre lors d'expériences de rhéométrie avec des dispersions et/ou suspensions concentrées, pour obtenir des mesures représentatives de leur comportement.

Selon Mewis & Spaul [1], une dispersion concentrée (resp. suspension concentrée) est le mélange d'un fluide et de particules colloïdales (resp. non colloïdales) en forte concentration. Les matériaux auxquels on s'intéresse ici sont plus généralement des mélanges d'un fluide et d'un grand nombre de particules dont la taille est "mésoscopique", c'est-à-dire intermédiaire entre les dimensions microscopiques des particules élémentaires du fluide initial, et les dimensions macroscopiques de l'écoulement. A titre d'exemple on peut citer les peintures, émulsions, graisses chargées, polymères chargés, boues de forages, boues naturelles fines ou grossières, encres.

Pour étudier ces matériaux complexes la première étape la plus naturelle semble être de chercher à caractériser leur comportement lorsqu'ils sont dans des conditions telles qu'ils peuvent être considérés à tout instant au cours de leurs mouvements comme des milieux homogènes. Cela signifie que les caractéristiques mesurées se référeront au comportement du mélange dans une gamme restreinte de mouvements et de viscosité. On s'intéresse alors au matériau en se plaçant dans le cadre de la mécanique des milieux continus. La tâche de l'expérimentateur sera de veiller à ce que l'ensemble des hypothèses émises soient effectivement vérifiées : continuité du champ des déformations dans le matériau, constance du matériau homogène équivalent, maîtrise des efforts ou des mouvements transmis au fluide aux interfaces. Il faudra notamment veiller à ce qu'aucun phénomène perturbateur ne vienne contredire ces hypothèses. A cette condition la relation effort-vitesse de déformation mesurée représentera la loi de comportement effective du matériau homogène dans la gamme d'écoulements testés.

Dans une première partie, on passera en revue les différentes géométries en examinant les avantages et inconvénients de chacune d'elles pour tester le type de matériau qui nous intéresse. Dans la seconde partie on donnera quelques idées de procédure à adopter pour accéder rapidement aux caractéristiques principales du comportement des suspensions et/ou dispersions concentrées.

### I Avantages et inconvénients des différentes géométries de mesure

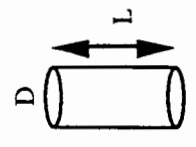
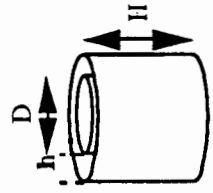
Pour la description détaillée des géométries classiques décrites ci-après et des calculs théoriques de rhéométrie correspondants on se référera par exemple à [2] ou [3]. La géométrie plan-cône troué qui n'est pas une géométrie de mesure classique est quant à elle présentée en annexe I. Dans le tableau I on propose un inventaire des avantages et inconvénients des principaux types de géométrie pour tester des dispersions ou des suspensions concentrées. Pour chaque géométrie on passe en revue différents types de problèmes qui sont présentés plus en détail ci-après.

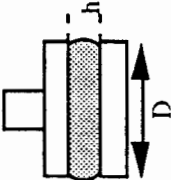
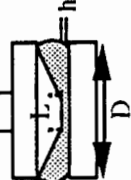
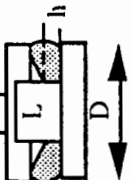
#### \* Les dimensions de l'outillage.

Il est nécessaire de respecter un rapport minimal entre le jeu minimum entre les outils et la taille des particules. En effet ceci a d'abord pour but de respecter l'hypothèse de milieu homogène subissant des déformations continues. Malheureusement il n'existe pas de critère universel permettant de respecter cette condition. En fait c'est empiriquement et a posteriori qu'on pourra vérifier la validité de cette hypothèse. Par ailleurs il faut aussi que le jeu minimum soit suffisamment grand pour que des particules solides ne forment pas une structure bloquée entre les outils. Finalement on a choisi dans le tableau I de calculer les dimensions minimales de l'outillage en s'imposant systématiquement un rapport entre le jeu et la taille des particules ( $\phi$ )

Tableau 1

Forme de mesure	Dimensions minimales et volume de fluide nécessaire	Mise en place - Nettoyage	Utilisation :	Champ des déformations	Possibilité d'étudier simplement la thixotropie	Visualisation du champ des déformations (pour un matériau non transparent)	Problèmes expérimentaux	Conséquences sur les mesures
Cylindres coaxiaux * Grand jeu	$h = 30 \phi$ $H = 10h = 300 \phi$ $D = 4h = 120 \phi$ $V = 4,2 \cdot 10^6 \phi^3$	Plus ou moins difficile suivant le type de fluide et la façon dont est conçu l'appareil	Plus ou moins difficile suivant le type de fluide et la façon dont est conçu l'appareil	inhomogène (varie du cylindre intérieur au cylindre extérieur)	non, pas de manière simple	Oui, à la surface libre supérieure	Glissement possible aux parois des cylindres  Sédimentation	Diminution de la viscosité apparente  Diminution de la viscosité apparente en général, mais possibilité d'augmentation de cette viscosité si le mélange formé au fond est très visqueux  Conséquences variées  Augmentation de la viscosité apparente en général
* Petit jeu	$D = 30h = 900 \phi$ $V = 2,6 \cdot 10^7 \phi^3$	idem, mais plus difficile en général	idem	homogène (varie peu)	oui	idem mais plus difficile	Ségrégation  Evaporation  Présence du fond fixe  Centrifugation,	idem  diminution de la viscosité apparente
Capillaire	$h = D = 30 \phi$ $L = 50h$ $V$ (dans le tube) $\approx 10^6 \phi^3$ $V_{total} \approx 10^7 \phi^3$	Facile	Assez facile	inhomogène (varie du centre vers l'extérieur)	non, a priori très difficile	non en général sauf à la paroi ou dans le cas d'un fluide transparent	Effet Weissenberg  Glissement  Fracturation  Ségrégation à l'entrée du tube  Migration perpendiculairement à l'axe du tube	idem  diminution de la viscosité apparente  idem  augmentation de la viscosité apparente  diminution de la viscosité apparente



Géométrie de mesure	Dimensions minimales et volume de fluide nécessaire	Utilisation : Mise en place - Nettoyage	Champ des déformations	Possibilité d'étudier simplement la thixotropie	Visualisation du champ des déformations (pour un matériau non transparent)	Problèmes expérimentaux	Conséquences sur les mesures
Plans parallèles 	$h = 30 \phi$ $D = 10h = 300 \phi$ $V = 2.10^6 \phi^3$	Facile en général, mais délicate lorsque la concentration en particules solides est importante : efforts normaux élevés (formation d'une structure rigide selon l'axe des plans)	inhomogène (varie du centre à l'extérieur)	oui, mais de manière approximative	oui, le long de la surface libre ou grâce à un marquage interne	Fracturation Glissement Creusement Sédimentation Evaporation	Diminution de la viscosité apparente idem idem idem Augmentation de la viscosité apparente en général, sauf si les effets de cisailé sont prédominants
Plan-cône tronqué 	$\alpha < 6^\circ$ ; $h = 30 \phi$ $L = \frac{2h}{\text{tg}\alpha} = 575 \phi$ $D = 5L = 2875 \phi$ $V = 6.10^8 \phi^3$	idem, mais un peu moins facile du fait du jeu réduit dans certaines zones	homogène	oui	idem	Ségrégation Centrifugation Ejection du matériau aux fortes vitesses idem	Conséquences variées idem Diminution de la viscosité apparente idem
Plan-cône tronqué 	$\alpha < 6^\circ$ ; $h = 30 \phi$ $L = \frac{2h}{\text{tg}\alpha} = 575 \phi$ $D = 1. + 20h = 1175 \phi$ $V = 4.10^7 \phi^3$	idem	idem	idem	idem	idem, mais effets plus importants car plus grande surface libre Ejection à des vitesses moins élevées	idem

au moins égal à 30. De cette façon on peut comparer les volumes de fluide nécessaires pour des tests et l'encombrement des différentes géométries.

\* Utilisation.

La facilité d'utilisation d'une géométrie peut être un critère de choix important surtout lorsque l'on considère que les expériences avec des suspensions concentrées sont délicates et nécessitent de répéter les tests de nombreuses fois. La difficulté de mise en place de l'échantillon et la difficulté de nettoyage de l'outillage après un test sont donc évaluées ici.

\* Homogénéité théorique du champ des déformations.

Il s'agit ici d'examiner le champ des déformations théorique imposé par l'outillage si aucun effet perturbateur n'intervient. L'homogénéité du champ des déformations conditionne la facilité d'interprétation des mesures en termes de loi de comportement, puisque ces mesures sont en général d'une part un effort total transmis aux interfaces entre le fluide et l'outillage et d'autre part une vitesse d'ensemble ou une vitesse de rotation. L'inhomogénéité du champ des déformations peut être à l'origine de difficultés pour interpréter correctement les propriétés temporelles observées ou bien à l'origine du développement d'effets perturbateurs.

\* Possibilité d'interpréter simplement la thixotropie.

Il sera d'autant plus facile d'interpréter simplement les propriétés temporelles du fluide que le champ des déformations sera homogène.

\* Visualisation du champ des déformations.

Pour détecter d'éventuels effets perturbateurs de l'écoulement il est intéressant de pouvoir observer simplement et directement le champ des déformations au sein du fluide. Il est souvent possible d'observer directement le champ des déformations le long des surfaces libres. Il n'est pas exclu que les déformations observées sur ces surfaces libres ne reflètent pas le champ des déformations à l'intérieur du volume fluide. Mais un effet perturbateur se produisant dans l'échantillon est en général détectable par ce type d'observation. Il est aussi possible d'observer les déformations internes par marquage d'une tranche de fluide puis ouverture (cf Annexe II), ou, lorsque le fluide est transparent, par des observations directes ou l'utilisation d'outillages transparents.

\* Problèmes expérimentaux, conséquences sur les mesures et précautions.

Les problèmes expérimentaux qui peuvent se produire avec ce type de matériaux sont nombreux. Ils peuvent être liés aux caractéristiques du matériau ou aux particularités de la géométrie utilisée. Ces problèmes (glissement, fracturation, creusement, évaporation, ségrégation, sédimentation, centrifugation, éjection) ainsi que les précautions à prendre pour les déceler ou les éviter, sont présentés en détail dans l'annexe II.

## II Procédures expérimentales.

On insistera ici seulement sur les protocoles expérimentaux particuliers aux dispersions et suspensions concentrées.

### II.1 Reproductibilité des mesures.

L'état des matériaux qui nous intéressent est susceptible d'évoluer dans le temps. Pour obtenir des résultats reproductibles il est nécessaire d'adopter toujours la même technique de préparation du mélange avant une quelconque expérience. On peut cependant avoir tendance à oublier que lors de la mise en place l'échantillon est déformé, son état est donc modifié mais reste inconnu après cette opération. Pour amener l'échantillon dans un état de référence identifié, une bonne méthode consiste alors à précisailier le matériau à un gradient de vitesse connu jusqu'à atteindre le régime permanent puis à laisser l'échantillon au repos pendant un temps connu.

Dans le cas des mélanges à forte concentration solide et à seuil qui nous intéressent, le matériau laissé à l'extérieur du jeu de mesure, du fait de la nature et de la forte viscosité apparente du mélange, peut tendre à maintenir fixe l'ensemble ou à accentuer les effets perturbateurs. Pour



éviter tout problème il est préférable de nettoyer toujours soigneusement l'excès de matériau à la périphérie du jeu de mesure. Il est en général possible (cf Annexe II) de précisaitter l'échantillon suffisamment longtemps pour qu'un éventuel creusement de la surface libre se stabilise. Il est essentiel de veiller au cours des expériences à bien distinguer l'établissement du régime permanent, qui correspond à l'établissement de la structure intrinsèque du matériau pendant l'écoulement, et l'établissement du creusement ou plus généralement des effets de bord, qui correspond simplement à l'établissement des conditions aux limites de l'écoulement.

## II.2 Détermination du seuil de contrainte.

Ces fluides possèdent en général un seuil de contrainte. En effet les particules en forte concentration s'agrègent par des interactions plus ou moins fortes, formant ainsi un réseau continu plus ou moins rigide et qui s'étend à travers tout l'échantillon. Pour briser ce réseau et provoquer ainsi l'écoulement il est nécessaire d'imposer un certain niveau de contrainte minimum. Ce seuil de contrainte est une caractéristique essentielle du fluide. Une revue détaillée de l'ensemble des techniques de mesure du seuil de contrainte des fluides à seuil est proposée dans [4]. En ce qui nous concerne on rappelle ici les trois méthodes essentielles les plus pertinentes pour la détermination du seuil de contrainte.

La première méthode, étudiée en détail par exemple dans [5], consiste à mesurer la contrainte résiduelle lors de la relaxation de l'échantillon après un cisaillement quelconque. Cependant, avec des matériaux boueux [6], il n'apparaît pas toujours possible d'obtenir des résultats reproductibles concernant ces contraintes résiduelles. Les outils initialement en mouvement ne s'arrêtent pas de manière parfaite et les déformations résiduelles de l'échantillon qui en résultent, même si elles sont infinitésimales, induisent ainsi (grâce au seuil élevé) des contraintes résiduelles non négligeables.

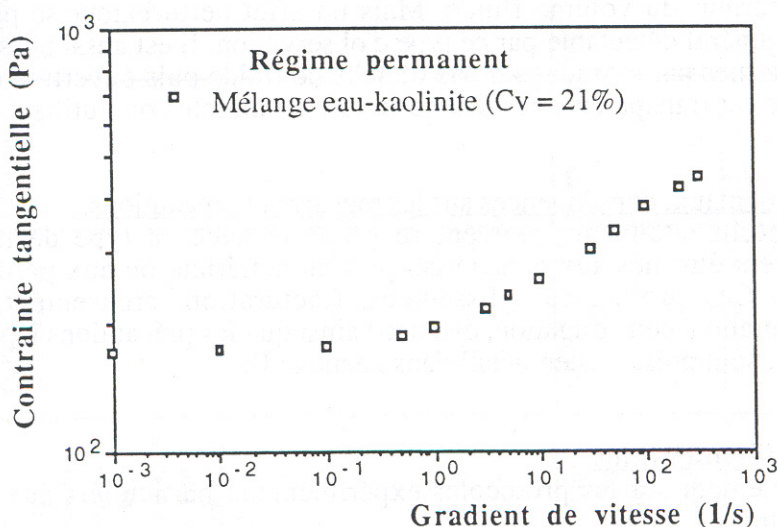


Figure 1 : Courbe des régimes permanents d'un mélange eau-kaolinite ( $C_v = 21 \%$ ,  $pH = 5,4$ ).

La méthode la plus classique de détermination du seuil consiste à extrapoler la courbe des régimes permanents, obtenue à vitesse imposée par exemple, vers les faibles gradients de vitesse. Dans ces conditions la qualité de la mesure dépend évidemment des niveaux de gradients de vitesse les plus faibles pour lesquels des mesures ont pu être obtenues. Dans le cas d'un mélange eau-kaolinite ( $C_v = 21 \%$ ) par exemple on obtient une courbe (cf Figure 1) dont la pente tend vers zéro vers les très faibles gradients de vitesse. Si on extrapole cette courbe on obtient une estimation du seuil avec une erreur vraisemblablement très faible. Dans le cas général il est peu probable que la contrainte tangentielle dans ce type de courbe connaisse encore des variations non négligeables vers des gradients de vitesse encore plus faibles. Cependant,



avec beaucoup d'autres suspensions et dispersions concentrées, certains phénomènes perturbateurs cités précédemment (glissement, fracturation, évaporation) apparaissent de manière plus importante aux faibles gradients de vitesse et il est plus difficile d'obtenir une courbe aussi nette. D'ailleurs pour ces mêmes raisons, si par exemple la courbe des régimes permanents possède un minimum [6], les enregistrements à vitesse imposée ne permettent pas toujours de déceler son existence.

Une dernière méthode, qui permet d'éviter les problèmes précédents, consiste à appliquer des contraintes successives de plus en plus élevées. Après chaque niveau de contrainte on doit faire le nécessaire (précisaillement, repos,...) pour que l'échantillon reprenne son état initial. Tant que la contrainte appliquée n'a pas dépassé le seuil de contrainte du matériau, la réponse est celle d'un solide. La déformation enregistrée est voisine d'une déformation élastique ou viscoélastique. La courbe de déformation enregistrée a une pente extrêmement faible et très peu variable avec le niveau de contrainte imposée. En revanche, lorsque la contrainte appliquée a dépassé un niveau limite (seuil de contrainte) la pente de la courbe de la déformation en fonction du temps se stabilise rapidement à une valeur finie. Le matériau s'écoule alors de manière continue, sa réponse est celle d'un fluide. Cette dernière méthode a l'avantage de permettre de déceler à coup sûr la présence d'un éventuel minimum dans la courbe des régimes permanents [6]. En effet, dans ce cas, juste après avoir dépassé le niveau du seuil, la vitesse de rotation atteint directement un niveau élevé, démontrant ainsi l'instabilité du fluide.

### II.3 Thixotropie.

Le réseau d'interactions au sein du fluide peut évoluer au cours du temps parce que les amas de particules se brisent ou se reforment. Pendant un écoulement donné la viscosité apparente du fluide évolue donc. Si le matériau ne s'altère pas il doit recouvrer toujours le même état de référence après un temps de repos suffisamment long. Le matériau possède alors des propriétés temporelles que l'on regroupera sous le terme générique de thixotropie.

Les précautions et les méthodes d'étude par la rhéométrie des matériaux thixotropes ont été passées en revue dans [7]. Notre but ici est de rappeler quelques points essentiels et d'ajouter quelques remarques à propos des procédures expérimentales. Différentes méthodes sont utilisées pour caractériser les propriétés temporelles des matériaux, notamment :

- la boucle d'hystérésis obtenue lors d'une montée progressive puis d'une diminution de la vitesse (ou de la contrainte) imposée ;
- la décroissance du niveau de contrainte (resp. de vitesse) au cours du temps à vitesse fixe (resp. contrainte fixe).

Ces méthodes ne permettent cependant pas de comparer facilement les matériaux entre eux ou de quantifier les propriétés temporelles des matériaux.

Une bonne méthode de quantification de ces propriétés nous semble en revanche être la suivante : partant de l'échantillon au repos dans l'état initial, on applique de manière brusque un gradient de vitesse fixe pendant un temps suffisant pour que le matériau atteigne le régime permanent ; puis on stoppe le mouvement et on laisse au repos cet échantillon pendant un temps donné ; on recommence l'opération plusieurs fois, avec des temps d'attente différents entre chaque cisaillement ; si au début de chaque mouvement on enregistre un excès de contrainte puis une lente descente vers le régime permanent, on peut tracer la courbe d'évolution du niveau de l'excès de contrainte en fonction du temps d'attente préalable ; si au début de chaque mouvement on enregistre une montée en contrainte progressive vers le régime permanent, on peut tracer la courbe d'évolution du niveau atteint à un temps fixe après le début du mouvement en fonction du temps d'attente préalable. Ces courbes fournissent une quantification intéressante de l'évolution de l'état du matériau pendant le repos (on trouvera des exemples dans [6] et [8]). Si le matériau ne s'est pas altéré, il se restructure au maximum après un temps de repos suffisamment long, et les courbes précédemment décrites tendent toutes vers une limite fixe relative à cet état de repos maximum.

### Remarques :

\* On notera d'abord que l'on ne peut pas être tout à fait certain que l'échantillon est dans des conditions identiques pour se restructurer pendant les temps de repos entre chaque cisaillement. En effet, si l'appareil utilisé n'impose pas un arrêt suffisamment précis à l'outillage à l'instant fixé par l'expérimentateur, on peut observer avec ce type de fluides des contraintes résiduelles importantes au sein de l'échantillon qui ne correspondent pas à la réponse du fluide pendant une relaxation. Malgré tout, par exemple dans le cas d'un mélange eau-kaolinite ou d'une graisse chargée [9], des résultats cohérents concernant les mesures lors d'expériences de démarrages successifs ont été obtenus en ce sens que l'évolution du niveau de l'excès de contrainte est régulière et croissante. Les conditions d'arrêt ou de maintien au repos peuvent donc avoir une influence négligeable sur les mesures lors des redémarrages.

\* Par ailleurs le niveau de l'excès de contrainte enregistré au-dessus du régime permanent n'est pas forcément le niveau réel au sein de l'échantillon, parce que l'appareil n'a pas la capacité d'enregistrer suffisamment rapidement les variations de la contrainte. Cependant si les niveaux d'excès de contrainte mesurés sont enregistrés approximativement toujours au même temps après le début du cisaillement, ils sont représentatifs de l'évolution de la structure interne du matériau.

### II.4 Oscillations d'amplitude finie.

Lors de ce type d'écoulement le gradient de vitesse prend alternativement des valeurs faibles et élevées. Il est donc plus difficile d'éviter les effets perturbateurs qui se produisent notamment aux faibles gradients de vitesse (glissement, fracturation).

### II.5 Mesures des contraintes normales.

Les mesures de contraintes normales peuvent être perturbées par la présence de la surface libre. Notamment dans le cas de mélanges eau-argiles-grains, aucun résultat reproductible ou cohérent n'a pu être obtenu [9].

## **CONCLUSION.**

Parce qu'elles peuvent contenir des particules grossières, posséder un seuil ou des propriétés temporelles, les difficultés expérimentales rencontrées avec les suspensions et/ou dispersions concentrées lors d'expériences de rhéométrie sont nombreuses. Avec ce type de matériaux, on ne peut pas se contenter de relever quelques mesures de couple et de vitesse pour en déduire les propriétés du matériau. Si on procède ainsi on ne remarquera pas par exemple l'existence d'un seuil de contrainte ou de propriétés temporelles, ou bien on interprétera de manière erronée des résultats expérimentaux.

Les problèmes les plus importants survenant lors d'expériences de rhéométrie avec des suspensions et/ou dispersions concentrées peuvent être évités. Mais il faut être conscient que certains des effets relevés ici se produisent de manière partielle et de façon assez peu apparente au premier abord quelles que soient les précautions prises pour les éviter. Ainsi le creusement se modifie légèrement lors des variations de vitesse, ou bien une fracturation apparaît près du bord aux faibles vitesses et disparaît à des vitesses élevées. Une certaine habitude de ces expériences est nécessaire pour être capable d'estimer si l'un de ces phénomènes prend trop d'importance au cours d'une expérience.

Il n'est pas du tout envisageable avec ce type de matériau de se livrer à des expériences de rhéométrie sans surveiller la surface libre de l'échantillon, se demander pourquoi des chutes de niveau de contrainte se produisent, etc..., et finalement mettre en oeuvre les protocoles adéquats. En fin de compte toutes ces précautions sont fondamentales. Elles permettent d'une part de ne pas attribuer à des caractéristiques spéciales du matériau (instabilité ou thixotropie) les difficultés à obtenir des résultats cohérents. D'autre part elles permettent de faire des calculs corrects à partir des mesures réalisées, pour obtenir une caractérisation quantitative réelle du matériau (seuil, thixotropie, minimum dans la courbe des régimes permanents,...).

## **Bibliographie**

- [1] MEWIS, J., and SPAULL, A.J.B., (1976), "Rheology of concentrated dispersions", *Advances in Colloid and Interface Science*, 6, pp.173-200.
- [2] COLEMAN, B.D., MARKOWITZ, H., and NOLL, W., (1966), *Viscometric Flows of Non-Newtonian Fluids*, Springer Tracts in Natural Philosophy, Volume 5, Springer Verlag Berlin-Heidelberg-New-York, 130p.
- [3] PIAU, J.M., (1979), "Fluides non-newtoniens", *Techniques de l'Ingénieur*, A 710-711.
- [4] NGUYEN, Q.D., and BOGER, D.V., (1992), "Measuring the flow properties of yield stress fluids", *Annual Review of Fluid Mechanics*, 24, pp.47-88.
- [5] MAGNIN, A., and PIAU, J.M., (1990) "Cone-and-plate rheometry of yield stress fluids. Study of an aqueous gel" *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 36, pp 85-108.
- [6] COUSSOT, P., LEONOV, A.I., and PIAU, J.-M., (1992), "Rheology of concentrated dispersed systems in a low molecular weight matrix", *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 46, pp.179-217.
- [7] MEWIS, J., (1979), "Thixotropy - A general review", *Journal of Non-newtonian Fluid Mechanics*, 6, pp.1-20.
- [8] MAS, R., and MAGNIN, A., (1992), "Rheology of colloidal suspensions : lubricating greases", submitted to *Journal of Rheology*.
- [9] COUSSOT, P., (1992), "Rhéologie des laves torrentielles - Etude de dispersions et suspensions concentrées", Thèse de Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, 412p.
- [10] VINOGRADOV, G.V., FROISHTETER, G.B., and TRILISKY, K.K., (1978), "The generalized theory of flow of plastic disperse systems with account of wall effect", *Rheologica Acta*, 17, pp.156-165.
- [11] MAGNIN, A., and PIAU, J.M., (1987) "Shear rheometry of fluids with a yield stress", *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 23, pp 91-106.
- [12] EL KISSI, N., and PIAU, J.M., (1990), "The different capillary flow regimes of entangled Polydimethylsiloxane polymers : Macroscopic slip at the wall, hysteresis and cork flow", *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 37, pp.55-94.
- [13] HUTTON, J.F., (1975), "On using the Weissenberg Rheogoniometer to measure normal stresses in lubricating greases as examples of materials which have a yield stress", *Rheologica Acta*, 14, N°11, pp.979-992.

## Annexe I : Géométrie cône plan troué.

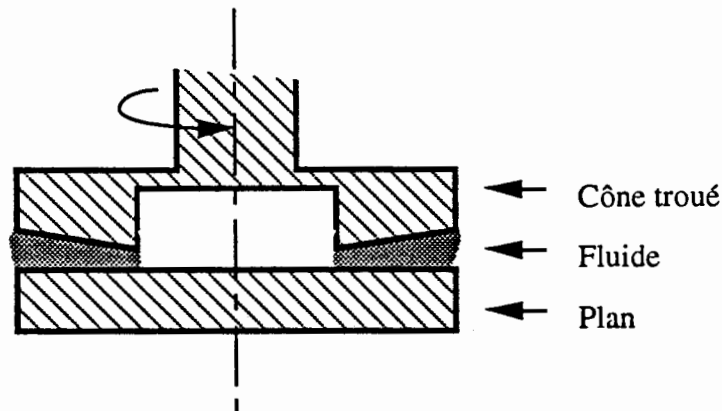


Figure A.1 : Schéma de principe de la géométrie plan-cône troué. Vue en coupe par un plan contenant l'axe de révolution.

Le principe de cette géométrie proposée par [9] est très proche de celui de la géométrie cône-plan à ceci près que pour éviter le coincement des particules solides en suspension dans le fluide la partie centrale du cône (qui d'habitude contient une partie tronquée plus ou moins large) (cf Figure A.1) est évidée le long d'une surface cylindrique de rayon  $R_1$  alors que le rayon du cône est  $R_2$ . La formule à utiliser dans le cas de la géométrie plan-cône troué pour les calculs de rhéométrie découle directement de celle se rapportant au cas de la géométrie cône-plan (cf par exemple [3]). On fait les mêmes hypothèses : inertie négligeable, angle du cône petit. Alors le gradient de vitesse est homogène dans l'intervalle entre les outils et par conséquent la contrainte appliquée au fluide l'est aussi. On obtient :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\alpha} \quad ; \quad C = \int_{R_1}^{R_2} 2\pi\tau x^2 dx$$

où  $\alpha$  est l'angle du cône,  $\dot{\gamma}$  le gradient de vitesse,  $\tau$  la contrainte appliquée au fluide,  $C$  le couple total appliqué,  $\Omega$  la vitesse de rotation,  $R_1$  et  $R_2$  les rayons intérieurs et extérieurs du cône troué; donc :

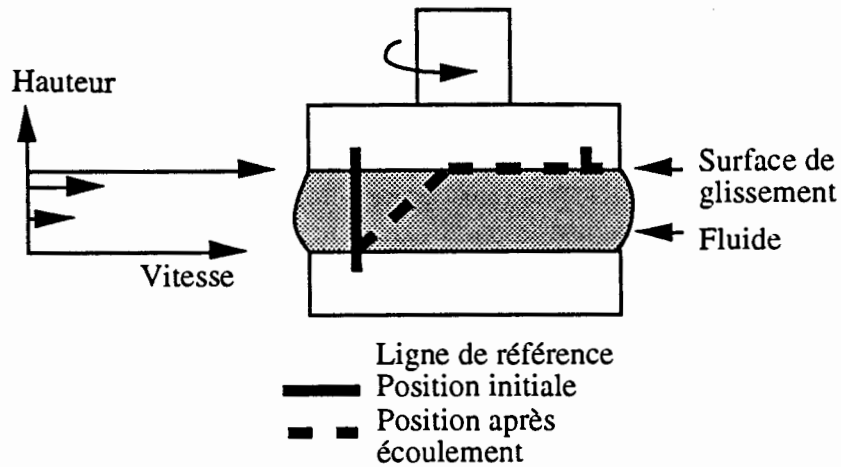
$$\tau(\gamma) = \frac{3C}{2\pi(R_2^3 - R_1^3)}$$

## Annexe II : Phénomènes perturbateurs des écoulements.

### A.II.1 Glissement aux parois.

Lorsqu'on utilise des outils dont les surfaces en contact avec le matériau sont trop lisses, un glissement aux parois (cf Figure A.2) (discontinuité de la vitesse au niveau de la paroi) peut se produire, avec une importance variable selon le mélange testé et la vitesse de rotation de l'outil [9-12]. Le glissement à la paroi des suspensions ou dispersions concentrées est sans aucun doute favorisé par une chute de densité du mélange à l'approche de la paroi. Ce dernier phénomène peut provenir de la nécessaire diminution du diamètre moyen des particules à l'approche de la paroi solide imperméable. Le cisaillement de l'ensemble de l'échantillon va alors se localiser dans cette zone moins dense et donc moins visqueuse. Pour éviter le

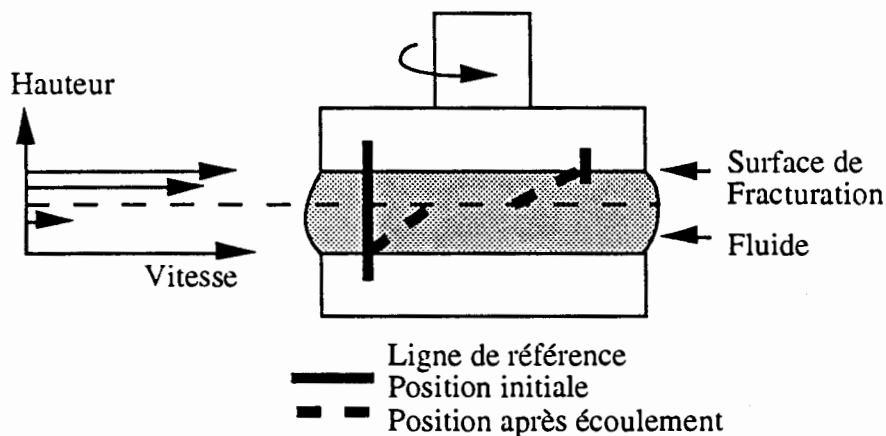
glissement il suffit en général de placer un revêtement suffisamment rugueux sur les surfaces des outils en contact avec les matériaux. Ainsi la chute de densité près de la paroi est évitée. Pour éviter tout problème on choisira une rugosité supérieure au diamètre maximum des particules.



*Figure A.2* : Aspect du profil des vitesses à la surface latérale extérieure de l'échantillon lorsqu'un glissement se produit en cisaillement simple avec les géométries plans parallèles, cône-plan, ou plan-cône troué : Déformation d'une ligne de référence (initialement verticale sur la surface libre externe de l'échantillon).

#### A.II.2 Fracturation.

On appelle ainsi le phénomène lors duquel une surface de discontinuité de la vitesse existe au sein du matériau (cf Figure A.3). Bien sûr, pour être appelée ainsi, cette discontinuité doit être du même ordre de grandeur que la vitesse maximale du matériau dans un plan vertical passant par la surface de fracturation. L'origine de ce phénomène, observé avec divers fluides ([5], [9] et [13]), est probablement l'existence d'une inhomogénéité de l'état du matériau au sein de l'échantillon. Cette inhomogénéité est une surface de moindre densité et donc de moindre résistance ce qui permet au cisaillement de se localiser le long de cette surface. La fracturation se produit préférentiellement aux faibles gradients de vitesse.



*Figure A.3* : Profil des vitesses sur la surface latérale extérieure de l'échantillon lorsqu'une fracturation se produit en cisaillement simple avec les géométries plans parallèles, cône-plan, ou plan-cône troué. Déformation d'une ligne de référence (initialement verticale sur la surface libre externe de l'échantillon).



### A.II.3 Contrôle du glissement ou de la fracturation.

On peut d'abord détecter ces phénomènes perturbateurs par une étude attentive des mesures enregistrées. Lorsqu'on impose brutalement certains niveaux de vitesses (resp. contraintes), des chutes (resp. montées) assez brutales des niveaux de contrainte (resp. vitesses) mesurées, dissociables des effets de propriétés temporelles, peuvent être constatées [6] [8]. Elles sont en général le signe de l'existence de glissements ou de fracturations. On peut aussi dans certains cas observer directement ces phénomènes à la surface libre de l'échantillon [5] et [9] (cf Figures A.2 et 3). On verra alors éventuellement une ligne de discontinuité très près de la paroi (glissement) ou au sein du matériau (fracturation).

Pour compléter cette enquête il peut être intéressant d'étudier aussi l'homogénéité du cisaillement au sein de l'échantillon. Pour cela, dans le cas d'un fluide transparent on pourra observer directement les mouvements de particules marquées, éventuellement à travers des outils transparents. Dans le cas d'un fluide non transparent une méthode peu précise et d'exploitation difficile mais qui permet cependant de conforter certaines opinions consiste à colorer une tranche diamétrale de l'échantillon différemment du reste. Par exemple dans le cas d'une expérience avec des plans parallèles ceci doit se faire avant d'écraser l'échantillon entre les deux plans (cf [9]). On pourra alors examiner les déformations du matériau coloré (éventuellement après séchage) peu de temps après le démarrage (rotation inférieure à un demi tour) pour déceler une fracturation interne. On peut aussi vérifier, après plusieurs révolutions, que le mélange final a une nouvelle couleur homogène. Si une fracturation s'est produite, le mélange peut être séparé horizontalement en deux zones, l'une de couleur homogène et l'autre de couleur inhomogène.

Pour s'assurer qu'aucun problème ne survient lors d'expériences avec une géométrie particulière on pourra aussi, si cela est possible, réaliser des expériences sur le même matériau avec différentes géométries. Pour chaque géométrie le rapport entre la surface cisailée et le volume testé est différent. Les effets perturbateurs tels que le glissement et la fracturation qui s'appliquent le long de surfaces n'ont pas a priori la même influence sur les contraintes calculées en supposant le volume d'échantillon entièrement cisailé pour chaque géométrie. Si un effet perturbateur non négligeable se produit, les lois de comportement obtenues à partir des mesures par les calculs théoriques usuels seront très différents d'une géométrie à l'autre.

### A.II.4 Creusement.

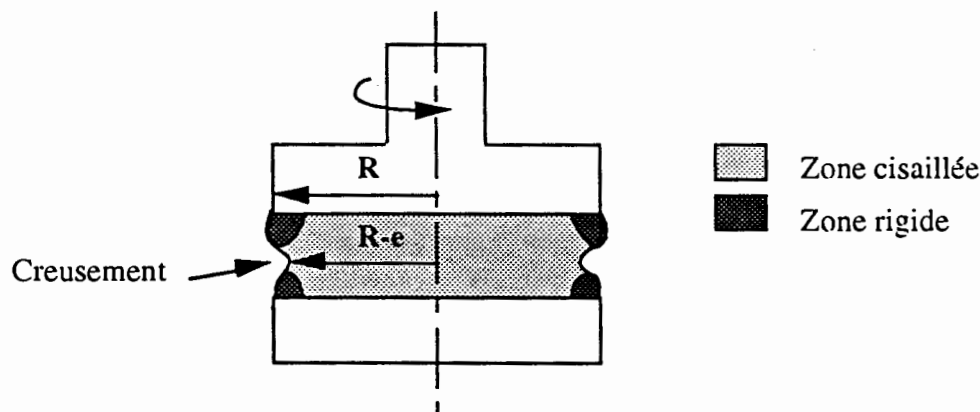


Figure A.4 : Vue en coupe (par un plan contenant l'axe de symétrie des outils) des différentes zones dans le fluide lorsqu'un creusement se produit. Estimation du volume effectivement cisailé : cylindre de rayon  $R-e$ .

Pour des raisons diverses la surface libre périphérique de l'échantillon, originellement plane et verticale, peut dans certains cas, se creuser (cf Figure A.4). Les parties situées autour du creusement ne sont plus cisailées et ont tendance à devenir rigides. Le matériau situé dans la partie centrale du creux est quant à lui toujours cisailé. L'allure du champ des déformations

d'une fracturation et d'un creusement à la périphérie peuvent apparaître très ressemblants. Le creusement se distingue par le fait que les zones rigides de part et d'autre de la zone cisailée ont tendance à ne plus être en contact.

D'après des observations de l'échantillon après cisaillement, on a pu constater [9] que la largeur de ces zones rigides est du même ordre que leur épaisseur. Celles-ci s'étendent donc très peu à l'intérieur de l'échantillon. Par conséquent on pourra supposer en première approximation que tout se passe comme si le cisaillement se produisait entre deux outils de diamètre plus petit que le diamètre réel (cf Figure A.4). Pour les calculs de contrainte et gradient de vitesse en fonction du couple et de la vitesse de rotation, on devra alors considérer non pas le diamètre de l'outillage mais le volume de matériau réellement cisailé.

Dans la plupart des cas ce creusement se produit de manière rapide au démarrage puis évolue lentement au cours de l'expérience. Il est nécessaire alors d'attendre qu'il se stabilise à peu près et de ne pas confondre ce phénomène avec des effets des propriétés temporelles du matériau. Dans certains cas ce creusement dégénère au point de s'étendre dans tout l'échantillon. Il y a alors séparation totale du matériau en deux volumes rigides. Souvent les derniers contacts avant séparation complète dessinent des disques concentriques observables après écartement des outils à la surface de chacun des deux volumes restants. Il faudra aussi veiller à ce que l'épaisseur de fluide cisailé au niveau du creusement reste suffisamment grande devant la taille des particules. Dans le cas contraire celles-ci risqueraient de se coincer et de rendre le mouvement instable.

#### A.II.5 Evaporation.

L'évaporation est un problème d'autant plus crucial que le volume du fluide susceptible de s'évaporer offert à l'air libre a une grande surface et une faible épaisseur. Cela implique que ce phénomène est d'autant plus important que la concentration solide et les surfaces libres sont grandes. Dans des temps d'expériences trop longs on pourra alors observer un épaississement du matériau. Si ce problème devient majeur il peut être intéressant de réaliser un appareillage spécial [5] destiné à empêcher cette évaporation, ou de répandre un film protecteur d'huile silicone sur la surface libre de l'échantillon.

#### A.II.6 Sédimentation et centrifugation.

Si la densité des particules ajoutées est différente de celle du fluide initial, ces particules peuvent, sous l'effet de la pesanteur, tomber progressivement vers le bas. Ce phénomène peut être décelé avant le début des expériences. Notamment, il faudra vérifier qu'une sédimentation non négligeable ne se produit pas dans l'échantillon laissé au repos pendant un temps de l'ordre de la durée des expériences ultérieures. Cependant, même si ceci a été vérifié il est possible que des particules grossières de densité supérieure à celle du fluide soient maintenues dans leur position pendant le repos grâce au seuil de contrainte de la suspension, et chutent pourtant vers le bas pendant l'écoulement. En effet alors qu'au repos la rigidité d'un fluide à seuil peut lui permettre de supporter une particule d'une densité supérieure, dès que le mouvement est initié les contraintes exercées par le fluide sur la particules sont déterminées par le cisaillement du fluide et ne permette pas forcément de compenser la force due à la gravité appliquée au fluide. La centrifugation est un phénomène tout à fait analogue à la sédimentation puisque c'est alors la force centrifuge qui joue le rôle de la gravité et qui tend à chasser vers l'extérieur les particules de plus forte densité. Ces problèmes peuvent être combattus en organisant une recirculation de faible intensité et secondaire du matériau.

#### A.II.7 Ségrégation.

Indépendamment d'une éventuelle différence de densité entre les particules et le fluide initial, lorsque le cisaillement est non homogène, les particules grossières risquent a priori de migrer vers des zones particulières : par exemple vers le cylindre intérieur ou extérieur dans le cas d'un rhéomètre à cylindres coaxiaux, ou vers la périphérie dans le cas d'un rhéomètre à plans parallèles). Ou bien un tri granulométrique peut se produire si la granulométrie des particules de la suspension est étendue.



Ainsi, par exemple, en hémorhéologie la nature particulière du fluide, les singularités de son écoulement, les propriétés des vaisseaux et surtout les phénomènes complexes de la microcirculation nécessitent la prise en compte dans la recherche de modèles de la diversité des formes, des propriétés non isotopes des différents composants, des conditions aux limites particulières et des évolutions physicochimiques qui apparaissent au cours de l'écoulement.

Par ailleurs, nous avons souligné ci-dessus l'importance de la prise en compte des échelles d'hétérogénéité pour l'hémorhéologie, il s'agit en fait d'un problème général de la biorhéologie. Ainsi, un organe est macroscopique par rapport aux cellules qui le constituent, mais les cellules sont de dimensions très différentes par rapport à celles des protéines ou des lipides les constituants. C'est pourquoi grâce au développement rapide des applications des méthodes physiques, l'analyse des processus rhéologiques à l'échelle moléculaire devrait permettre de mieux comprendre les relations entre structures et comportements globaux.

Toutes ces recherches auront le mérite de faire passer la biorhéologie du stade de la représentation à celui beaucoup plus fructueux de l'explication.

## II. RELATION STRUCTURE - PROPRIETES RHEOLOGIQUES - L'INGENIERIE TISSULAIRE

Le terme d'ingénierie tissulaire, apparu depuis peu, peut être défini de la façon suivante : c'est l'application des principes et méthodes de l'ingénierie et des sciences de la vie pour la compréhension sur un plan fondamental des relations structure-fonction dans les tissus normaux ou pathologiques des mammifères et le développement de substituts biologiques pour restaurer, préserver ou accroître les fonctions tissulaires.

D'un point de vue rhéologique l'équation constitutive d'un tissu biologique (comme d'un corps en général) devrait pouvoir être théoriquement déduite de sa structure. L'idée de relier les propriétés macroscopiques d'un tissu à sa composition ou à sa structure n'est pas nouvelle. Ainsi, dès 1959, Burton montrait par des expériences réalisées, après digestion enzymatique de vaisseaux, les relations qui existaient entre les propriétés rhéologiques globales de ceux-ci et les propriétés de l'élastine et du collagène. A partir de ces résultats, des recherches théoriques menées par l'école japonaise (Oka, Azuma, Hazegawa) permirent une modélisation des propriétés rhéologiques de la paroi artérielle.

Actuellement, assez peu de travaux ont été réalisés dans cette voie. En effet, comme le souligne Fung, ceux-ci nécessitent la confrontation de données très diverses :

- structure détaillée du tissu et définition de modèles mathématiques
- données morphométriques des éléments constitutifs du tissu
- connaissances rhéologiques des composants élémentaires
- structure des composants à contrainte nulle

C'est dans cet esprit que Fung a développé en 1987 un modèle du parenchyme pulmonaire.

La plupart des tissus biologiques tels que le cœur, les vaisseaux, la peau, les cartilages, ont des comportements rhéologiques complexes. Dans la majorité des cas, les résultats des expériences de caractérisation du comportement rhéologique instationnaire de ces tissus ont conduit à une interprétation par la théorie de la viscoélasticité grâce à des modèles structurels monophasiques prenant en compte la nature des éléments constitutifs et les frottements internes. Une telle caractérisation uniquement phénoménologique ne permet pas de lier les grandeurs mécaniques aux grandeurs géométriques et physiques du milieu (porosité, perméabilité,...). Or, une variation de porosité ou de perméabilité d'un tissu biologique entraîne des modifications de ses propriétés rhéologiques. C'est pourquoi, des travaux plus récents ont mis l'accent sur les propriétés de filtration de ce type de tissus et sur leur nature diphasique liée à la présence d'un squelette poreux et d'un fluide interstitiel. Cette réflexion a conduit à des descriptions de comportements rhéologiques basées sur les théories de la poroélasticité qui nécessitent l'étude des processus de transfert des contraintes entre phase solide et phase liquide.

Cette approche des propriétés rhéologiques globales de tissus biologiques posent évidemment de nombreux problèmes de part la complexité des systèmes d'équation à résoudre et à ce jour, seules quelques géométries simples ont été étudiées. Cependant, cette approche est beaucoup plus satisfaisante du point de vue de la physique car, de même que pour la viscoélasticité, on introduit la notion de temps caractéristique, celui-ci est à la fois fonction des grandeurs mécaniques et géométriques. Afin de développer ces aspects, il serait souhaitable que des travaux pluridisciplinaires soient entrepris dans cette direction pour approcher les propriétés rhéologiques de tissus biologiques complexes.

## III. CHAOS DETERMINISTE ET BIORHEOLOGIE

La mise en évidence de comportements erratiques dans des systèmes qui ne sont soumis à aucune force irrégulière ou aléatoire, mais qui sont a priori régis par des lois déterministes, a marqué l'émergence



## REFLEXIONS CONCERNANT LE DEVELOPPEMENT DE LA BIORHEOLOGIE

**J.F. STOLTZ**

Président de la Société Française de Biorhéologie Fondamentale et Clinique  
Ancien Président de la Société Internationale de Biorhéologie

*Hémorhéologie - Hématologie - Faculté de Médecine  
BP 184 - Brabois - 54500 VANDOEUVRE*

**Résumé** : La plupart des processus biologiques sont contrôlés (ou en liaison) avec les propriétés rhéologiques de leur environnement. C'est ainsi qu'au cours des 20 dernières années de nombreux travaux ont été publiés particulièrement dans le domaine de l'hémorhéologie. De nouveaux axes de recherches doivent être envisagés ou approfondis : relations rhéologie-structure, ingénierie tissulaire, rhéologie et fonctions cellulaires, fluidité cellulaire, développement d'applications cliniques en liaison avec les mécanismes physiopathogéniques.

**Summary** : A large number of biological processes are controlled (or connected) with the rheological properties of the body organs, fluids or cells concerned. Thus during the past two decades many authors have emphasized the part played by rheological factors in biology particularly in hemorheology. New subjects are to be developed : relation rheology-structure, tissue engineering, cell rheology and cell activity, fluidity, clinical applications in relation with the physiopathogenic mechanisms.

La biorhéologie, lien entre la physique et les sciences du vivant, est une science jeune qui a tout juste 40 ans. Comme toutes les disciplines interfaces, son développement est lié aux progrès de ses composantes. Or, la physique, science prédictive par essence, tout au moins jusqu'à ces dernières années, est d'application difficile pour la compréhension et la description des phénomènes complexes de la biologie et de la médecine où les lois élémentaires ne semblent pas toujours respectées et où les données expérimentales disponibles sont parfois sujettes à discussion.

En fait, les orientations futures de la biorhéologie sont en germe dans sa jeune histoire, en particulier dans la nécessité, plus que dans toute autre science, de recherches interdisciplinaires.

Dans ce travail, il est envisagé, sans l'ambition d'être exhaustif, les grandes orientations prévisibles de la recherche en biorhéologie dont le développement semble essentiel à la compréhension de la mécanique des systèmes vivants.

### I. DE LA NECESSITE DES MODELES

La complexité des systèmes biologiques et de leurs structures mettent en jeu de nombreux types d'hétérogénéités qui nécessitent le développement d'une rhéologie d'un type différent de celui de la rhéologie classique. Ainsi, la diversité de forme, de dimension et de structure des éléments constitutifs, ainsi que leur variabilité dans le temps et dans l'espace, nous obligent à remettre en question la validité des modèles usuels ou tout au moins à les généraliser. On peut ainsi espérer, par un choix judicieux des paramètres caractéristiques des systèmes étudiés, trouver des voies d'approche nouvelles et comprendre les phénomènes observés et ainsi perfectionner les modèles de la rhéologie fondamentale. Comme pour la physique, deux grands types de modèles peuvent être développés :

- les modèles de connaissance qui prennent en compte pour leur élaboration les lois physiques auxquelles le système obéit,
- les modèles de simulation qui ignorent généralement les mécanismes élémentaires et proposent a priori des équations qu'il faut ajuster aux données de l'expérience.

Il est évident que le premier groupe de modèles est le plus satisfaisant pour l'esprit. En fait, dans les biosystèmes où la complexité est grande, la réalité est moins tranchée et l'on devra envisager le développement de modèles intermédiaires.

Ainsi, par exemple, en hémorhéologie la nature particulière du fluide, les singularités de son écoulement, les propriétés des vaisseaux et surtout les phénomènes complexes de la microcirculation nécessitent la prise en compte dans la recherche de modèles de la diversité des formes, des propriétés non isotopes des différents composants, des conditions aux limites particulières et des évolutions physicochimiques qui apparaissent au cours de l'écoulement.

Par ailleurs, nous avons souligné ci-dessus l'importance de la prise en compte des échelles d'hétérogénéité pour l'hémorhéologie, il s'agit en fait d'un problème général de la biorhéologie. Ainsi, un organe est macroscopique par rapport aux cellules qui le constituent, mais les cellules sont de dimensions très différentes par rapport à celles des protéines ou des lipides les constituants. C'est pourquoi grâce au développement rapide des applications des méthodes physiques, l'analyse des processus rhéologiques à l'échelle moléculaire devrait permettre de mieux comprendre les relations entre structures et comportements globaux.

Toutes ces recherches auront le mérite de faire passer la biorhéologie du stade de la représentation à celui beaucoup plus fructueux de l'explication.

## **II. RELATION STRUCTURE - PROPRIETES RHEOLOGIQUES - L'INGENIERIE TISSULAIRE**

Le terme d'ingénierie tissulaire, apparu depuis peu, peut être défini de la façon suivante : c'est l'application des principes et méthodes de l'ingénierie et des sciences de la vie pour la compréhension sur un plan fondamental des relations structure-fonction dans les tissus normaux ou pathologiques des mammifères et le développement de substituts biologiques pour restaurer, préserver ou accroître les fonctions tissulaires.

D'un point de vue rhéologique l'équation constitutive d'un tissu biologique (comme d'un corps en général) devrait pouvoir être théoriquement déduite de sa structure. L'idée de relier les propriétés macroscopiques d'un tissu à sa composition ou à sa structure n'est pas nouvelle. Ainsi, dès 1959, Burton montrait par des expériences réalisées, après digestion enzymatique de vaisseaux, les relations qui existaient entre les propriétés rhéologiques globales de ceux-ci et les propriétés de l'élastine et du collagène. A partir de ces résultats, des recherches théoriques menées par l'école japonaise (Oka, Azuma, Hazegawa) permirent une modélisation des propriétés rhéologiques de la paroi artérielle.

Actuellement, assez peu de travaux ont été réalisés dans cette voie. En effet, comme le souligne Fung, ceux-ci nécessitent la confrontation de données très diverses :

- structure détaillée du tissu et définition de modèles mathématiques
- données morphométriques des éléments constitutifs du tissu
- connaissances rhéologiques des composants élémentaires
- structure des composants à contrainte nulle

C'est dans cet esprit que Fung a développé en 1987 un modèle du parenchyme pulmonaire.

La plupart des tissus biologiques tels que le coeur, les vaisseaux, la peau, les cartilages, ont des comportements rhéologiques complexes. Dans la majorité des cas, les résultats des expériences de caractérisation du comportement rhéologique instationnaire de ces tissus ont conduit à une interprétation par la théorie de la viscoélasticité grâce à des modèles structurels monophasiques prenant en compte la nature des éléments constitutifs et les frottements internes. Une telle caractérisation uniquement phénoménologique ne permet pas de lier les grandeurs mécaniques aux grandeurs géométriques et physiques du milieu (porosité, perméabilité,...). Or, une variation de porosité ou de perméabilité d'un tissu biologique entraîne des modifications de ses propriétés rhéologiques. C'est pourquoi, des travaux plus récents ont mis l'accent sur les propriétés de filtration de ce type de tissus et sur leur nature diphasique liée à la présence d'un squelette poreux et d'un fluide interstitiel. Cette réflexion a conduit à des descriptions de comportements rhéologiques basées sur les théories de la poroélasticité qui nécessitent l'étude des processus de transfert des contraintes entre phase solide et phase liquide.

Cette approche des propriétés rhéologiques globales de tissus biologiques posent évidemment de nombreux problèmes de part la complexité des systèmes d'équation à résoudre et à ce jour, seules quelques géométries simples ont été étudiées. Cependant, cette approche est beaucoup plus satisfaisante du point de vue de la physique car, de même que pour la viscoélasticité, on introduit la notion de temps caractéristique, celui-ci est à la fois fonction des grandeurs mécaniques et géométriques. Afin de développer ces aspects, il serait souhaitable que des travaux pluridisciplinaires soient entrepris dans cette direction pour approcher les propriétés rhéologiques de tissus biologiques complexes.

## **III. CHAOS DETERMINISTE ET BIORHEOLOGIE**

La mise en évidence de comportements erratiques dans des systèmes qui ne sont soumis à aucune force irrégulière ou aléatoire, mais qui sont a priori régis par des lois déterministes, a marqué l'émergence



récente d'une nouvelle branche de la physique appelée "chaos déterministe". Le chaos déterministe dont l'existence avait été pressentie dès la fin du 19<sup>e</sup> siècle par l'école française (Poincaré et Hadamard), est à l'origine, depuis les années 1970, de nombreuses théories et interprétations de phénomènes qui défiaient jusqu'à ce jour toute prédiction.

Par ailleurs, l'introduction récente par Mandelbrot de la notion mathématique de dimension non entière a permis des approches nouvelles de comportements naturels. Actuellement cependant, outre son caractère descriptif, la "notion de Fractal" n'a pas encore trouvé d'applications directes en biologie et en médecine. Néanmoins, des approches rhéologiques globales de systèmes physiologiques pourraient constituer des voies de recherche prometteuses pour des approches fractales et les applications des théories du chaos. On pourrait ainsi rechercher les relations fonction-structure fractale et le rôle du comportement chaotique dans le fonctionnement physiorhéologique d'organe. En effet, la médecine conventionnelle qui postule que la régularité est un "signe de bonne santé", n'est pas une règle absolue, comme le montre des études récentes sur les variations du rythme cardiaque.

D'autres recherches peuvent être également envisagées comme la structure fractale des systèmes biologiques macroscopiques en liaison avec leur architecture, leur fonctionnalité et leurs propriétés rhéologiques. Ainsi, par exemple, la formation aléatoire de jonctions entre les cellules des capillaires pulmonaires crée un ensemble de passage de tailles hétérogènes, comparable à un objet fractal. Ce modèle de "géométrie désordonnée" permet une description du contrôle des échanges de macromolécules entre le sang et les tissus. Dans ce contexte, quel intérêt présenterait la connaissance de la structure fractale de l'arbre circulatoire des poumons ? Quel est le rôle des propriétés rhéologiques du sang et des tissus environnants dans une telle approche ? On ne peut certes pas répondre aujourd'hui mais on peut penser que les applications de la géométrie fractale à la biorhéologie pourraient être une voie d'approche intéressante pour une compréhension dynamique globale des systèmes vivants.

Une autre voie prospective d'application en biorhéologie de l'analyse fractale pourrait être envisagée dans l'étude de structures complexes. Ainsi par exemple, n'est-il pas possible de caractériser les structures tridimensionnelles formées par les globules rouges au cours de leur agrégation ? Ne peut-on pas étudier la dynamique de formation et la structure d'agrégats des hématies au cours de différents états pathologiques à partir de modèles simples, comme cela a déjà été réalisé pour des agrégats de particules sphériques contrôlés par la diffusion.

En résumé, les applications de la géométrie fractale en biorhéologie pourraient intervenir dans des domaines très différents. Le premier concernerait l'approche de phénomènes aléatoires. Il s'agirait plutôt d'études probabilistes. Le second groupe d'applications serait l'étude dynamique de systèmes (comme les agrégats d'hématies). Enfin, la troisième catégorie de travaux où interviendraient des fractales pouvant être des phénomènes physiorhéologiques d'interfaces comme les échanges gazeux dans les alvéoles pulmonaires.

#### **IV. RHEOLOGIE ET INTERACTION CELLULAIRE**

De nombreux phénomènes cellulaires sont en relation ou contrôlés par les propriétés rhéologiques des cellules ou de leur environnement. Parmi les domaines où la biorhéologie pourrait se développer, citons en particulier :

- l'adhésion et l'agrégation cellulaire
- la polarisation cellulaire
- la division et le cycle cellulaire.

Nous tenterons, à travers quelques exemples, de souligner des phénomènes où la rhéologie pourrait apporter une vision nouvelle ou complémentaire aux connaissances actuelles.

##### ***IV.1. L'adhésion et l'agrégation cellulaire***

De nombreuses fonctions sont modulées par des interactions entre cellules et la prolifération de nombreux types cellulaires nécessite l'adhésion à un substrat adéquat. Ainsi, outre les conditions rhéologiques locales favorisant ou s'opposant au phénomène, l'adhésion ou l'agrégation cellulaire met en jeu et modifie les propriétés rhéologiques des cellules. Les modifications se traduisent en particulier par des changements morphologiques ou structuraux, des phénomènes de polarisation, de modification de charges électriques ou de potentiel transmembranaire,...

Ces phénomènes mettent en jeu des paramètres liés aux mécanismes conduisant au contact et à la cohésion du système cellulaire formé, tels que répulsion électrostatique entre charges, interaction entre récepteurs membranaires et protéines, attraction de van der Waals, déplacement de molécules sur et dans la membrane... Pour tous ces paramètres, la prise en compte des propriétés rhéologiques de la cellule et de ses composants est fondamentale pour la compréhension globale du phénomène.

Ainsi, par exemple, l'adhésion leucocytaire à l'endothélium au cours de l'inflammation met-elle en jeu aussi bien les conditions locales de l'écoulement, les interactions avec les hématies et les récepteurs membranaires. Dans des conditions physiologiques normales, les leucocytes "s'écoulent" dans la microcirculation sans adhérer. Par contre, le phénomène dit de "rolling leucocytaire" décrit au cours d'états pathologiques et l'adhésion qui s'ensuit est en partie initiée par les hématies et leur agrégation qui provoquent la margination des leucocytes. Au cours de cette phase, l'aspect rhéologique global est dominant alors que l'explication de la vitesse relativement faible des leucocytes au contact de l'endothélium ne peut s'expliquer que par l'apparition d'interactions transitoires entre la cellule et l'endothélium. On comprend tout l'intérêt de préciser ces phénomènes car le "rolling leucocytaire" multiplie par un facteur de 10 à 100 le temps de transit de ces cellules dans la microcirculation au cours de l'inflammation, favorisant l'activation des neutrophiles par des agents endogènes ou exogènes tels que l'interleukine-8, le facteur 5a du complément ou les leucotriènes B4. Cet exemple montre les interrelations entre le rôle des facteurs rhéologiques qui provoquent la margination et les mécanismes moléculaires qui provoquent le "rolling leucocytaire" qui est indispensable à l'adhésion de cette cellule en présence d'une contrainte de cisaillement (Ley).

Un autre exemple concerne également l'hémorhéologie. Si les interactions plaquettes-vaisseaux sont actuellement bien précisées, la compréhension des modifications d'adhésion d'hématies pathologiques (hématies de diabétiques ou hématies de patients ayant une anémie falciforme par exemple), est moins documentée (Wautier). Si l'influence du fibrinogène, de la fibronectine et du facteur von Willebrand a été suggérée, la nature des liaisons, le rôle des protéines glyquées, les modifications membranaires (fluidité, ultrastructure) tant de l'hématie que de la cellule endothéliale ont été encore peu étudiées.

La compréhension de ces phénomènes d'interaction cellulaire est fondamentale pour le développement d'une biorhéologie clinique qui se voudrait plus explicative que descriptive.

#### ***IV.2. Rhéologie et division cellulaire***

Le rôle des facteurs rhéologiques et les modifications des propriétés mécaniques des cellules au cours de leur division n'ont été que très peu étudiés à ce jour. Or, selon les travaux de Hiramoto, des modifications des propriétés rhéologiques cellulaires importantes ont été trouvées au cours de la division d'oeufs d'échinoderme et d'ovocytes. Pour notre part, nous avons montré (Maugras) que la fluidité membranaire des cellules d'hybridomes variait au cours du cycle cellulaire, la nature et la signification de ces modifications étant actuellement mal précisées.

Par ailleurs, outre les modifications des propriétés rhéologiques de la cellule au cours d'un cycle, l'application d'une contrainte est susceptible de modifier la cinétique des mitoses. Ainsi, Ando et coll. ont montré avec des cellules endothéliales en culture que de faibles cisaillements pouvaient augmenter la prolifération alors que Nerem et coll. trouvaient une diminution de la prolifération aux fortes contraintes de cisaillement. Ces résultats, s'ils étaient confirmés *in vivo*, seraient particulièrement importants dans la compréhension de l'athérogénèse.

#### ***IV.3. Rhéologie et physiologie cellulaire***

L'influence de contraintes mécaniques sur le métabolisme et le comportement des cellules est particulièrement importante tant pour la progression de nos connaissances en biologie cellulaire qu'en pathologie ou qu'en biotechnologie. Ainsi, pour le développement de bioréacteurs destinés à la production de protéines par des organismes recombinants, la connaissance du comportement et de la physiologie, sous contrainte, des cellules de mammifères (étant donné leur fragilité) est fondamentale pour l'optimisation des bioréacteurs.

Afin d'illustrer l'inter-relation contrainte-fonction, nous pouvons prendre comme exemple la cellule endothéliale. Des cellules endothéliales en culture, sans écoulement, ont une forme polygonale sans orientation préférentielle. Par contre, si nous appliquons à ces cellules une contrainte de cisaillement, on constate une orientation de celles-ci dans le sens de l'écoulement avec une réorganisation du cytosquelette. Cette réorganisation se traduit par une augmentation de la "rigidité" cellulaire et du potentiel intracellulaire en relation avec l'importance de la contrainte imposée et de la durée de l'exposition (Nerem), associée à une endocytose du LDL-cholestérol et une augmentation de la synthèse des prostacyclines (Stathopoulos).

Ces résultats mettent en évidence l'importance des paramètres rhéologiques de l'environnement sur la physiologie cellulaire. Il s'agit sans aucun doute d'un thème d'avenir car pratiquement tous les systèmes biologiques sont soumis à des contraintes liées à l'environnement.

## V. DE LA RHEOLOGIE MEMBRANAIRE AU CONCEPT DE FLUIDITE ET DE RHEOLOGIE MOLECULAIRE

Les études de la rhéologie membranaire ont connu un essor important au cours des 15 dernières années. Cependant, la plupart de ces recherches ont été réalisées sur des cellules faciles à isoler telles que les cellules du sang (hématies ou leucocytes). Une analyse critique des résultats souligne cependant la grande variabilité des paramètres rhéologiques mesurés.

Par ailleurs, le développement des applications biologiques de méthodes spectroscopiques relativement simples d'emploi (telles que polarisation de fluorescence et marquage de spin) et la notion de "fluidité" (ou de microviscosité membranaire) se sont considérablement développées et permettent d'intégrer ces paramètres moléculaires dans la compréhension des ensembles cellulaires. Il est alors apparu que la dynamique membranaire et les mouvements des différents constituants (lipides et protéines) conditionnaient de nombreuses propriétés biologiques ainsi que les propriétés mécaniques des cellules.

Les propriétés de fluidité sont liées à la composition des bicouches phospholipidiques. Le cholestérol par exemple joue un rôle de plastifiant en maintenant un ordre élevé dans la région voisine de son squelette, c'est à dire le long des dix premiers carbones des chaînes grasses. Des modifications peuvent être également observées au cours de l'activation cellulaire. Ainsi, les plaquettes sanguines qui sont rigides au repos deviennent beaucoup moins ordonnées dès qu'elles sont activées. Selon Rendu, ces variations rhéologiques à l'échelle moléculaire sont liées à la chaîne métabolique de transformation des phosphatidylinositides, à la libération du calcium membranaire et à l'activation des phospholipases.

Les variations des paramètres caractérisant la fluidité en fonction du type membranaire et des paramètres physiologiques de l'environnement sont particulièrement importantes et constituent la manifestation d'une véritable adaptation pour laquelle des études rhéologiques, physicochimiques et biochimiques sont à entreprendre. A titre d'exemple, signalons les variations du taux des acides gras membranaires de bactéries en culture en fonction de la température ou de la fluidité membranaire d'hybridomes au cours du cycle cellulaire. Un autre exemple concerne les modifications de spectres RPE d'hématies marquées par un acide gras nitroxydé en écoulement (Bitbol) qui permettent de déterminer le taux d'orientation des cellules en relation avec leur déformabilité.

Les relations entre fluidité et propriétés rhéologiques des membranes sont encore mal connues car les mesures réalisées au niveau macroscopique sont souvent trop globales et sont le plus souvent concernées par plusieurs paramètres moléculaires. Y-a-t-il continuité entre les phénomènes d'ordre moléculaire et les propriétés rhéologiques des membranes ?

Le globule rouge a fait l'objet de quelques travaux. Il a été ainsi démontré que les modifications de composition lipidique (rapport cholestérol/phospholipides) et de fluidité membranaire (mesurée par polarisation de fluorescence) ne semblent pas influencer de façon notable les propriétés viscoélastiques globales de la membrane. Il faut cependant remarquer que ces études, généralement réalisées jusqu'à ce jour avec des sondes peu spécifiques, restent encore trop globales. A l'inverse cependant, les perturbations des protéines (anomalies héréditaires ou modifications chimiques de la bande 4.1 ou de la spectrine par exemple) s'accompagnent d'une élévation des modules d'élasticité et de viscosité de la membrane (Chabanel).

Un travail considérable est à entreprendre pour identifier l'origine moléculaire (protéines ou lipides) des paramètres caractérisant les propriétés rhéologiques des membranes. Outre l'intérêt théorique évident de ces recherches, celles-ci pourraient avoir des applications nombreuses en biorhéologie clinique.

Enfin, une dernière direction de recherche concerne la connaissance sur l'hétérogénéité des propriétés rhéologiques et la fluidité des bicouches des membranes, thèmes encore assez peu étudiés. Signalons cependant les travaux de Schachter et coll. qui mesurent la dépolarisation de fluorescence de chromophores fixés sur des oses, qui ne peuvent donc pas traverser la bicouche, procédant ainsi à un marquage sélectif. Dans le cas du globule rouge, ces auteurs trouvent une fluidité plus élevée pour la demi couche externe. Cependant, en mesurant la diffusion latérale Morrot et coll. trouvent un coefficient de diffusion latéral plus grand dans la demi couche externe. Cette contradiction qui n'est sans doute qu'apparente met en évidence la complexité méthodologique et théorique de ces approches. Elle peut également traduire le fait que la fluidité et le paramètre d'ordre local sont différents de la diffusivité des molécules.

## VI. QUELQUES SUGGESTIONS D'ETUDES RHEOLOGIQUES

Le développement de la biorhéologie, comme toutes les autres sciences du vivant, dépend de l'accumulation de données qui parfois, au départ, peuvent apparaître d'intérêt limité. De plus, il est souvent difficile de dégager les relations existant entre des phénomènes apparemment non liés. Il est donc important cependant que des travaux rhéologiques soient réalisés par des scientifiques d'horizons

différents afin de développer les connaissances tant dans les domaines théoriques ou appliqués, incluant la clinique et la thérapeutique. Dans ce qui suit, je voudrais suggérer quelques domaines pour lesquels les implications actuelles de la rhéologie restent trop parcellaires.

### **VI.1. Phénomène électrique et biorhéologie**

Le terme "d'electro rheology" a été proposé par Scott-Blair en 1974 dans son livre "Introduction to Biorheology". Dans une conférence plénière, en introduction au IV<sup>e</sup> congrès de Biorhéologie en 1981 à Tokyo, E. Fukada a montré que les phénomènes de polarisation électrique avaient un rôle important dans de nombreux domaines de la biorhéologie. Parmi les domaines d'études relativement documentés ou plus hypothétiques, on peut citer :

- interaction et agrégation cellulaire
- perméabilité ionique
- propriétés rhéologiques des membranes
- déformation et charge électrique
- Piezoélectricité
- potentiel d'écoulement (vaisseaux, os,...)
- croissance cellulaire

### **VI.2. Coagulation de systèmes biologiques**

De nombreux fluides biologiques sont susceptibles, par des réactions chimiques (provoquées par voie exogène ou par activation endogène) de subir une transformation liquide - gel (coagulation du sang et du lait par exemple). Relativement peu de travaux ont été menés dans ces domaines où, à côté des mesures rhéologiques macroscopiques, des études de structure à l'échelle moléculaire permettraient sans doute d'accéder à des données de base sur la dynamique de ces phénomènes.

A l'échelle macroscopique, il faut cependant souligner les travaux pionniers de Dintenfass (1962) et de l'école japonaise (Fukada et Kaibara) qui ont montré le rôle des contraintes de cisaillement sur la structure microscopique et la consistance du caillot. Ainsi, et comme cela est observé par l'analyse de thrombus in vivo, le caillot formé à faible vitesse de cisaillement a des propriétés de gel, et est très visqueux avec des propriétés thixotropes prononcées ; alors que le caillot formé à plus grande vitesse de cisaillement est moins visqueux. Il est certain que les paramètres rhéologiques locaux interfèrent sur les mécanismes physicochimiques de la coagulation par :

- une augmentation des coefficients de diffusion des facteurs ou co-facteurs de la coagulation avec augmentation de la fréquence de collisions,
- une activation rhéologique des cellules (plaquettes, leucocytes ou hématies) qui pourraient alors "libérer" des facteurs intracellulaires dans le plasma,
- une activation directe des facteurs de coagulation (changement conformationnel ?...),
- une orientation des cellules et des molécules dans l'écoulement qui peut par ailleurs affecter la polymérisation de la fibrine.

Il ne faut pas oublier que pour les contraintes de cisaillement élevées, il y a désagrégation des hématies et aussi "activation rhéologique" des plaquettes sans agents extérieurs (Klose et coll., 1972). Tous ces acquis sur le comportement rhéologique du sang au cours de sa coagulation pourraient être complétés par des études avec les techniques spectroscopiques par exemple, par des recherches au niveau du changement conformationnel des protéines ou par des études rhéologiques de la polymérisation de la fibrine comme cela a été évoqué par Dintenfass.

Un autre exemple de "coagulation" de systèmes biologiques est donné par le lait (Scott-Blair). Si quelques travaux rhéologiques ont été réalisés sur le système lait-chymosine, des recherches complémentaires sont nécessaires pour appréhender ce phénomène et l'incidence des facteurs rhéologiques. L'application des théories classiques de la gélation de polymères en solution semble peu satisfaisante pour expliquer le comportement d'un système aussi complexe. Un renouveau pourrait apparaître pour des travaux en liaison avec l'industrie alimentaire et la conception industrielle des produits dérivés du lait.

### **VI.3. Rhéologie des mucus - prospectives**

Au cours des dix dernières années, les connaissances acquises dans le domaine de la rhéologie des mucus se sont considérablement développées, aussi bien au niveau du mécanisme de leur exostose, que des facteurs régulant leur composition biochimique et leurs propriétés rhéologiques dans des conditions physiologiques ou pathologiques.



Le rôle primordial joué par les mucus (présents au niveau du tractus respiratoire, digestif, ORL, cervical...) dans la protection de la muqueuse et leurs diverses fonctions : hydratation de la muqueuse, barrière de filtration et de diffusion, sont maintenant identifiés. Récemment, à travers des études réalisées in vitro sur des cellules en culture, l'implication du mucus dans la maturation, la différenciation et dans les mécanismes de réparation cellulaire a pu être mise en évidence. L'étude des mécanismes de migration des cellules épithéliales au sein de la matrice sécrétée par ces mêmes cellules et par les cellules mésenchymateuses, devrait représenter, grâce au développement de techniques de "time-lapse" vidéomicroscopie, un axe de recherche important pour les années à venir.

Dans le domaine des mécanismes d'hydratation du mucus, les études de microanalyse X réalisées sur des cellules de mucus cryofixées et cryosubstituées et incluses à froid permettent d'aborder l'analyse des variations de la composition élémentaire du mucus au cours des phénomènes d'ocytose, dans des conditions préservant parfaitement l'intégrité structurale du mucus.

L'implication des mouvements d'ions et notamment la sécrétion de chlore et d'eau par les cellules épithéliales respiratoires fait l'objet actuellement d'un très grand nombre de recherches, notamment dans une maladie génétique grave, la mucoviscidose. Par ailleurs, la récente mise en évidence de fractions phospholipidiques sécrétées par les cellules sécrétoires, aussi bien de la muqueuse gastrique que respiratoire, a souligné le rôle important joué par les propriétés interfaciales du mucus, notamment dans les phénomènes de lubrification à la surface des muqueuses.

Ces notions nouvelles ont orienté l'étude rhéologique du mucus, jusqu'à présent limitée à l'étude des propriétés de viscoélasticité et de thixotropie, vers l'étude de nouveaux paramètres, notamment les propriétés d'adhésion du mucus (mesure du travail d'adhésion). Il apparaît donc évident que, grâce aux techniques de culture de cellules sécrétoires de mucus, les mécanismes régulant la sécrétion des mucus et permettant d'aborder par approches pharmacologiques la régulation de leurs anomalies dans des maladies acquises (bronchite chronique, asthme, etc,...) ou génétiques, comme la mucoviscidose, pourront être mieux analysés.

#### **VI.4. Mouvement, contraction, transport intracellulaire**

Nous avons vu que l'agrégation ou l'adhésion cellulaire faisait apparaître des phénomènes de polarisation tels que l'apparition de gradient ionique dans la cellule. En fait, très peu de données existent sur la connaissance des mouvements intracellulaires et leurs contrôles rhéologiques. Quelle est en particulier l'importance des propriétés des systèmes microtubulaires cellulaires dans les déformations que subit le cytoplasme ? D'une façon plus générale, quel est le rôle des protéines contractiles et microtubulaires dans les cellules musculaires et dans les membranes ?

Les phénomènes de transport mériteraient également d'être étudiés (transports d'ions à travers une membrane, polarisation cellulaire, transport dans les cellules nerveuses,...).

### **VII. METROLOGIE EN BIORHEOLOGIE EXPERIMENTALE**

Aucun progrès bio-clinique ne peut être envisagé sans techniques d'investigation fiables des paramètres biologiques. Malheureusement en biorhéologie dans le passé des travaux réalisés avec des techniques peu fiables ont conduit à l'élaboration de théories hasardeuses. On peut prendre pour exemple les modifications microrhéologiques érythrocytaires décrites à l'aide de méthodes de filtration dites sur sang total et qui ne permettaient pas d'accéder aux propriétés réelles de déformation de la cellule. Un des problèmes majeurs en biorhéologie sera de détecter, parmi les multiples variables, les paramètres indépendants les plus représentatifs du phénomène clinique. Par ailleurs, il sera nécessaire que soient développées ou adaptées des techniques spécifiques liées à la complexité des phénomènes étudiés.

C'est ainsi que, au cours des années 80, de nombreuses méthodes dédiées aux explorations en biorhéologie ont été développées. A titre d'exemple, on peut citer les viscosimètres pour mesure de la viscosité et la viscoélasticité du sang ou des mucus, les techniques d'approches de l'agrégation des hématies, les appareils automatiques de mesures de la filance des mucus,... D'autre part, le développement d'approches théoriques nouvelles sur le comportement rhéologique des tissus nécessitera pour leur vérification l'utilisation de méthodes physiques actuellement peu utilisées en biorhéologie telles que RMN, ultrasons, fluorescence,....

### **VIII. BIORHEOLOGIE CLINIQUE**

Les mesures en biorhéologie associées à d'autres investigations biologiques ont montré leur intérêt dans la compréhension, le diagnostic et éventuellement le traitement de différentes maladies.



Il est cependant difficile, actuellement, d'apprécier les différents champs d'applications de la biorhéologie clinique dans le futur.

Un domaine a particulièrement bénéficié d'un développement rapide est celui de l'hémorhéologie clinique. Une revue, *Clinical Hemorheology*, lui est d'ailleurs consacrée. Il ne s'agit pas là du développement d'une nouvelle discipline mais des applications de la biorhéologie au système cardiovasculaire.

Il est alors satisfaisant de constater qu'en dépit des difficultés d'interprétation où seuls les travaux pluridisciplinaires permettront de progresser, les informations obtenues permettent d'aider les cliniciens dans les discussions thérapeutiques (hémodilution normovolémiques dans certaines pathologies vasculaires par exemple).

D'autre part la nature et le rôle des syndromes dit "d'hyperviscosité", leur importance dans les phénomènes de thrombose et d'ischémie tissulaire, sont maintenant bien précisés en relation avec les paramètres microrhéologiques.

De nombreux travaux dans les domaines cliniques sont cependant encore nécessaires afin de faire passer la biorhéologie clinique du stade un peu trop descriptif actuel au stade plus interprétatif de phénomènes physiopathologiques.

Une autre voie d'applications prometteuses des connaissances en biorhéologie concerne l'étude et la caractérisation de biomatériaux implantables. Peu de travaux ont été réalisés jusqu'à ce jour qui pourtant est essentiel dans les nombreux domaines de la chirurgie (orthopédie, traumatologie, maxillo-faciale, neurochirurgie, cardio-vasculaire,...). Signalons dans ce domaine les possibilités offertes par la biotélémétrie pour mesurer en continu des contraintes in vivo comme cela a été réalisé récemment pour les prothèses de la hanche en vue de suivre et de comprendre la consolidation osseuse.

Bien d'autres recherches peuvent être envisagées en parallèle avec les travaux plus classiques sur la biocompatibilité. Ainsi, par exemple, quel est le rôle des propriétés mécaniques des stents coronaires utilisés comme endoprothèses vasculaires ? Actuellement les différents auteurs ne proposent que des hypothèses plus ou moins spéculatives. En fait, outre les propriétés mécaniques de ces prothèses, quels sont leurs rôles sur l'écoulement du sang et les interactions sang-vaisseaux ? On peut suggérer qu'ils préviennent l'embolisation distale de gros débris par effet sur la paroi, qu'ils agissent comme barrière à la migration ou l'adhésion cellulaire ou comme tamis macroscopique qui pousserait progressivement par effet mécanique la plaque de la néointima à l'intérieur de l'adventice.

## IX. CONCLUSIONS : "It does not happen as expected"

Les réflexions ci-dessus sont loin d'être exhaustives quant aux développements futurs de la biorhéologie. Comme tout essai de prévisions, beaucoup s'avèreront sans doute inexacts. Il est certain cependant que le développement de travaux dans ces différents domaines de la biorhéologie est essentiel pour la compréhension des comportements des milieux vivants.

De plus, comme dans tous les domaines des sciences et techniques médicales, il est indispensable que des études cliniques et thérapeutiques soient conduites afin de valider les concepts développés.

Enfin, il faut souligner que l'originalité des problèmes posés par la rhéologie des systèmes vivants peut être un stimulant pour le développement de la rhéologie fondamentale. Mais ce n'est que dans le développement de recherches interdisciplinaires harmonieuses allant de la physique et la mécanique à la clinique et la pharmacologie que la biorhéologie aura le droit de citer dans les sciences de la vie.

Mots clés : Biorhéologie - Ingénierie tissulaire - Agrégation cellulaire - déformation - fluidité - clinique.

## REFERENCES

- ANDO, J., NOMURA, H., KAMIYA, A. The effect of fluid shear stress on the migration and proliferation of cultured endothelial cells. *Microvasc. Res.* 33, 62-70, 1987.
- ARAISSO, T., KOYAMA, T. A new analysis method for the membrane viscosity from steady-state fluorescence depolarization. *Biorheology* 25, 253-259, 1988.
- ATHERTON, A., BORN, G.V.R. Relationship between the velocity of rolling granulocytes and that of the blood flow in venules. *J. Physiol. (London)* 233, 157-165, 1973.
- BELL, G.I. Models for the specific adhesion of cells to cells. *Science* 200, 618-627, 1978.
- BITBOL, M., LETERRIER, F. Measurement of the erythrocyte orientation in a flow by spin labeling. *Biorheology* 19, 669-680, 1982.

- BONGRAND, P. Cell-cell adhesion : parameters and possible mechanisms. In: *Cell surface dynamics - concept and models*. A.S. Perelson, C. Delisi, F.W. Wiegel. (Eds.). New York: Marcel Dekker inc. Publ., 1984, pp. 459-493.
- BONGRAND, P., CAPO, C., DEPIEDS, R. Physics of cell adhesion. *Prog. Surface Sci.* 12, 217-235, 1982.
- BUDIANSKY, B., KIMMEL, E. Elastic moduli of lungs. *J. Appl. Mechanics* 54, 351-358, 1987.
- CAMPEN, D.H. Van, HUYGHE, J.M., ARTS, T., OOMENS, C.W. A quasi-linear viscoelastic two-phase finite element model of the beating left ventricle. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita press, 1989, pp. 141-151.
- CHIEN, S. Hemorheology in disease : pathophysiological significance and therapeutic implications. *Clinical Hemorheology* 1, 419-442, 1981.
- CHIEN, S., DORMANDY, J., ERNST, E., MATRAI, A. *Clinical hemorheology*. Dordrecht: Martinus Nijhoff Publishers, 1987, 387 pp.
- CHIEN, S., USAMI, S., DELLENBACK, R.J., GREGERSEN, M.I., NANNINGA, L.B., GUEST, M.M. Blood viscosity : influence of erythrocyte aggregation. *Sciences* 157, 829-831, 1967.
- CHO, Y.I., KENSEY, K.R. Effects of the non-Newtonian viscosity of bloods on flows in a diseased arterial vessel. Part 1 : steady flows. *Biorheology* 28, 241-262, 1991.
- COPLEY, A.L. *Hemorheology*. New York: Pergamon Press, 1968, 849 pp.
- COPLEY, A.L., SEAMAN, G.V.F. The meaning of the terms rheology, biorheology and hemorheology. *Clinical Hemorheology* 1, 117-119, 1981.
- COPLEY, A.L. The futur of the science of biorheology. *Biorheology* 19, 47-69, 1982.
- COPLEY, A.L. Biorheology, western medicine and acupuncture. In: *Acupuncture and electro Therapeutics; Res. Int. J.* 10, 279-296, 1985.
- COPLEY, A.L. The history of clinical hemorheology. *Clinical Hemorheology* 5, 765-811, 1985.
- COPLEY, A.L. Perihemorheology : the bridge between the vessel-blood organ and the organs it penetrates. *Biorheology* 26, 377-389, 1989.
- COPLEY, A.L. Robin Fahraeus - The scientist and the person. The Robin Fahraeus memorial lecture. *Biorheology* 26, 423-461, 1989.
- COPLEY, A.L., SEAMAN, G.V.F. *Surface phenomena in hemorheology. Their theoretical experimental and clinical aspects*. Ann. N.Y. Acad. Sci., 1983, 416 pp.
- DEWEY, C.F., BUSSOLARI, S.R., GIMBRONE, M.A., DAVIES, P.F. The dynamic response of vascular endothelial cells to fluid shear stress. *ASME J. Biochem. Engr.* 103, 177-185, 1981.
- DEWEY, C.F. The effects of fluid flow on living vascular cells. *ASME J. Biochem. Engr.* 106, 31-35, 1984.
- DINTENFASS L. *Blood viscosity, hyperviscosity and hyperviscosaemia*. Landcaster-Boston: M.T.P. Press, 1985, 482 pp.
- DONNER, M., SIADAT, M., STOLTZ, J.F. Erythrocyte aggregation : approach by light scattering determination. *Biorheology* 25, 367-375, 1988.
- DROCHON, A., BARTHES-BIESEL, D., LACOMBE, C., LELIEVRE, J.C. Determination of the red blood cell apparent membrane elastic modulus from viscometric measurements. *J. Biomec. Eng.* 112, 241-249, 1990.
- ESKIN, S.F., IVES, C.L., McINTIRE, L.V., NAVARRO, L.T. Response of cultured endothelial cells to steady flow. *Microvasc. Res.* 28, 87-94, 1984.
- FAHRAEUS, R., LINDQVIST, T. The viscosity of the blood in narrow capillary tubes. *Am. J. Physiol.* 96, 562-569, 1931.
- FIEBIG, E., LEY, K., ARFORS, K.E. Rapid leukocyte accumulation by "spontaneous" rolling and adhesion in the exteriorized rabbit mesentery. *Int. J. Microcir. : Clin. Exp.* 10, 127-144, 1991.
- FIRRELL, J.C., LIPOWSKY, H.H. Leukocyte margination and deformation in mesenteric venules of rat. *Am. J. Physiol.* 256, H1667-H1674, 1989.
- FUKADA, E. Electrical phenomena in biorheology. *Biorheology* 19, 15-27, 1982.
- FUKADA, E. Piezoelectric properties of biological macromolecules. *Ad. in Biophys.* 6, 121-155, 1974.
- FUNG, Y.C. Biorheology in the analysis of the lung. *Biorheology* 19, 79-94, 1982.
- FUNG, Y.C. Microrheology and constitutive equation of soft tissue. *Biorheology* 25, 261-270, 1988.
- FUNG, Y.C., SOBIN, S.S. The connection of micro and macromechanics : weaving collagen and elastin fibers into pulmonary alveoli. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 162-170.
- GIORGIO, T.D., HELLUMS, J.D. A cone and plate viscometer for the continuous measurement of blood platelet activation. *Biorheology* 25, 605-624, 1988.
- GIROD, S., ZAHM, J.M., PLOTKOWSKI, C., BECK, G., PUCHELLE, E. Role of the physicochemical properties mucus in the protection of the respiratory epithelium. *Europ. Respir. J.* 5, 477-487, 1992.
- GIROLAMI, A., CELLA, G. Effect of low-dose subcutaneous heparin on whole blood viscosity. *The Lancet II*, 909-912, 1976.

- HARRIS, A. Behavior of cultured cells on substrata of variable adhesiveness. *Ex. Cell. Res.* 77, 285-297, 1973.
- HEINEKEN, F.G., SKALAK, R. Tissue engineering : a brief review. *J. Biomec. Eng.* 113, 111, 1991.
- HEMLINGER, G., GEIGER, R.V., SCHRECK, S., NEREM, R.M. Effect of pulsatile flow on cultured vascular endothelial morphology. *J. Biomec. Eng.* 113, 123-131, 1991.
- HIRAMOTO, Y. Mechanics of dividing cells. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 3-12.
- HOCHMUTH, R.M. Cell Biomechanics : a brief overview. *J. Biomec. Eng.* 112, 233-234, 1990.
- JAN, K.M. Electrochemical basis of heparin-induced red blood cell aggregation. In: *Advances in chemistry Series, Bioelectrochemistry : Ions, Surfaces, Membranes*. M. Blank (Ed.). 1980, N°188, pp. 143-149.
- JANSEN, J., BROOKS, D.E. Les protéines plasmatiques s'adsorbent-elles sur les érythrocytes ? In: *Hémorhéologie et agrégation érythrocytaire*. Vol. 2. J.F. Stoltz (Ed.). 1988, pp. 10-48.
- JENSEN, O.E. Chaotic oscillations in a sample collapsible - tube model. *J. Biomec. Eng.* 114, 55-59, 1992.
- KANG, Z., CHEN, J., LEI, M. Some challenging problems of cardiac valve flow dynamics. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 23-33.
- KAWAMOTO, Y., KAIBARA, M. Viscoelasticity of fibrinogen solution and of blood during coagulation studied by a new damped oscillation rheometer. *Biorheology* 25, 289-296, 1988.
- KIESEWETTER, H., DAUER, U., TEITEL, P., SCHMID-SCHONBEIN, H., TRAPP, R. The single erythrocyte rigidity meter (SER) as a reference for RBC deformability. *Biorheology* 19, 737-753, 1982.
- KING, M., MACKLEM, P.T. Rheological properties of microlitres quantities of normal mucus. *J. Appl. Physiol.* 42, 797-802, 1987.
- KRUEGER, J.W., YOUNG, D.F., CHOLVIN, R. An in vitro study of flow response by cells. *J. Biomechanics* 4, 31-36, 1971.
- LANIR, Y., SALANT, E.L., FOUX, A. Physico-chemical and microstructural changes in collagen fiber bundles following stretch in vitro. *Biorheology* 25, 591-603, 1988.
- LARCAN, A., STOLTZ, J.F. *Microcirculation et hémorhéologie*. Paris: Masson Ed., 1970 (1ère édition), 273 pp.
- LEVESQUE, M.J., NEREM, R.M. The elongation and orientation of cultured endothelial cells in response to shear stress. *ASME J. Biochem. Engr.* 107, 341-347, 1985.
- LEY, K., CERRITO, M., ARFORS, K.E. Sulfated polysaccharides inhibit leukocyte rolling in rabbit mesentery venules. *Am. J. Physiol.* 260, H1667-H1673, 1991.
- LEY, K. Leukocyte adhesion. Molecular basis and physiological consequences. *Clinical Hemorheology* 12, 93-108, 1992.
- LOWE, G.D.O., BARBENEL, J.C., FORBES, C.D. *Clinical aspects of blood viscosity and cell deformability*. Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag, 1981, 262 pp.
- LOWE, G.D.O. *Clinical Blood rheology*. Boca Raton (Florida): C.R.C. Press Inc., 1988, Vol. 1, 228 pp et 1988, Vol. 2, 245 pp.
- MASUDA, H., KIKUCHI, Y., NEMOTO, Y., BUKHARI, A., TOGAWA, T., KAMIYA, A. Ultrastructural changes in the endothelial surface of the carotid artery induced by wall shear stress load. *Biorheology* 19, 197-208, 1982.
- MOW, C. Van, PROCTOR, C.S., SCHMIDT, M.B., KELLY, M.A. Tensile and compressive properties of normal meniscus. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 107-109.
- NEREM, R.M., LEVESQUE, M.J. The influence of hydrodynamic forces on cultured vascular endothelial cells. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 193-201.
- O'BRIEN, J.R., SALMON, G.P. Shear stress activation of platelet glycoprotein IIb/IIIa. *Clinical Hemorheology* 9, 331-337, 1989.
- OKA, S., AZUMA, T. Physical theory of tension in thick walled blood vessels in equilibrium. *Biorheology* 7, 109-115, 1970.
- OKA, S. *Cardiovascular hemorheology*. Cambridge-Londres: Cambridge University Press, 1981, 208 pp.
- ONISHI, H., TATSUMI, M. Biomechanical analysis of our cementless total Hip Prosthesis by means of pseudo-three-dimensional model. Formation of a two dimensional finite element method for a tubular bone. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 413-422.
- PUCHELLE, E., ZAHM, J.M., DUVIVIER, C. Spinnability of bronchial mucus. Relationship with viscoelasticity and mucus transport properties. *Biorheology* 20, 239-249, 1983.
- SAKATA, N., TAKEBAYASHI, S. Localization of atherosclerotic lesions in the curving sites of human internal carotid arteries. *Biorheology* 25, 567-578, 1988.

- SATO, M., LEVESQUE, M.J., NEREM, R.M. Micropipette aspiration of cultured bovine aortic endothelial cells exposed to shear stress. *Arteriosclerosis* 7, 276-286, 1987.
- SCOTT BLAIR, G.W. *An introduction to Biorheology*. New York-Amsterdam: Elsevier, 1974, 199 pp.
- SCOTT BLAIR, G.W. The history of rheology. *Biorheology* 19, 231-235, 1982.
- SCHMID-SCHONBEIN, H., GALLASCH, G., VOLGER, E., KLOSE, H.J. Microrheology and protein chemistry of pathological red cell aggregation (blood sludge) studied in vitro. *Biorheology* 10, 213-227, 1973.
- SCHMID-SCHONBEIN, H., RIEGER, H., FISCHER, T. Blood fluidity as a consequence of red cell fluidity : flow properties of blood and flow behavior of blood in vascular diseases. *Angiology* 31, 301-319, 1980.
- SCHMID-SCHONBEIN, G.W., USAMI, S., SKALAK, R., CHIEN, S. The interaction of leukocytes and erythrocytes in capillary and postcapillary vessels. *Microvasc. Res.* 19, 45-70, 1980.
- SHIGA, T., SUDA, T., MAEDA, N. Spin label studies on the human erythrocyte membrane. Two sites and two phases for fatty acids spin labels. *Biochim. Biophys. Acta* 466, 231-244, 1977.
- SHIGA, T., MAEDA, N., SUDA, T., KON, K., SEKIYA, M., OKA, S. Rheological and kinetic dysfunctions of the cholesterol-loaded, human erythrocytes. *Biorheology* 16, 363-369, 1979.
- SHIGA, T., MAEDA, N. Influence of membrane fluidity on erythrocyte functions. *Biorheology* 17, 485-499, 1980.
- SHOHET, S.B., GREENQUIST, A.C. Possible roles for membrane protein phosphorylation in the control of erythrocyte shape. *Blood cells* 3, 115-133, 1977.
- SILBERBERG, A. Perspective in Biorheology. Festschrift for A.L. Copley. *Biorheology* 18, 305-727, 1981.
- SILBERBERG, A. The mechanics and thermodynamics of separation flow through porous, molecularly disperse, solid media (Poiseuille Lecture - Tokyo, 1981). *Biorheology* 19, 111-127, 1982.
- SILBERBERG, A. Structure of the interendothelial cell cleft. *Biorheology* 25, 303-318, 1988.
- SILBERBERG, A. Mucus glycoprotein, its biophysical and gel forming properties. In: *Mucus and related topics*. E. Chantler, N.A. Ratcliffe (Eds.). Company of Biologists Publ., 1989, pp. 43-63
- SKALAK, R., IMPELLUSO, T., SCHMALZER, E.A., CHIEN, S. Theoretical modeling of filtration of blood cell suspensions. *Biorheology* 20, 41-56, 1983.
- SKALAK, R., CHIEN, S. Theoretical models of rouleau formation and disaggregation. *Ann. N.Y. Acad. Sci.* 416, 138-148, 1983.
- SKALAK, R. What is red cell deformability ? In: *Symposium on recent developments in microcirculation research*. E. Davis, G.A. Marcel (Eds.). Amsterdam-Oxford: Excerpta Medica, 1981, pp. 31-43.
- SKALAK, R., FOX, C.F. *Tissue engineering*. New-York: Alan R. Liss Inc., 1988.
- SNABRE, P., BITBOL, M., MILLS, P. Cell disaggregation behavior in shear flow. *Biophys. J.* 51, 795-807, 1987.
- STATHOPOULOS, N.A., HELLUMS, D. Shear stress effects on human embryonic kidney cells in vitro. *Biotechnology and Bioeng.* 27, 1021-1026, 1985.
- STOLTZ, J.F. Ionized or ionizable groups of blood cells. In: *The rheology of blood, blood vessels and associated tissues*. D.R. Gross, N.H.C. Hwang (Eds.). Sijthoff- Noordhoff (Rockville): Nato Advanced Study Institutes., 1981, Serie E, Vol 41, pp. 184-213.
- STOLTZ, J.F. Main determinants of red blood cell deformability. Clinical and pharmacological applications. *Clinical Hemorheology* 2, 163-173, 1982.
- STOLTZ, J.F. Blood rheology : etiology of hyperviscosity syndromes. *Inter. Angio.* 3, 13-23, 1984.
- STOLTZ, J.F. Hemorheology : Pathophysiological significance (state of the art lecture). *Acta Medica Portuguesa* 6, 4-13, 1985.
- STOLTZ, J.F. *Hémorhéologie et agrégation érythrocytaire*. Paris: E. M. Int. 1986, Vol. 1, 176 pp.
- STOLTZ, J.F. The importance of rheological theory in clinical hemorheology (Fahraeus Award Lecture). *Clinical Hemorheology* 8, 293-303, 1988.
- STOLTZ, J.F. *Hemodilution in acute disorders*. Paris: Arnette, 1988, 86 pp.
- STOLTZ, J.F. *Hémorhéologie et agrégation érythrocytaire. Applications cliniques*. Paris: E. M. Int., 1989, Vol. 2, 211 pp.
- STOLTZ, J.F., DONNER, M. Relations between molecular rheology and red blood cell : methods and clinical approaches (Plenary lecture). *Clinical Hemorheology* 5, 813-848, 1985.
- STOLTZ, J.F., DONNER, M., PUCHELLE, E. *Techniques en biorhéologie*. Paris: Editions INSERM, 1986, Vol. 143, 371 pp.
- STOLTZ, J.F., DONNER, M., COPLEY, A.L. *Hémorhéologie et agrégation érythrocytaire. Théorie et applications cliniques*. Paris: E. M. Int., 1991, Vol. 3, 307 pp.
- STOLTZ, J.F., GUERLET, B., LUCIUS, M. Modèles rhéologiques du globule rouge humain. Etude critique. *Cahier du Groupe Français de Rhéologie* 3, 205-217, 1977.
- STOLTZ, J.F., LUCIUS, M. Viscoelasticity and thixotropy of human blood. *Biorheology* 18, 453-473, 1981.

- STUART, J., STONE, P.C.W., FREYBURGER, G., BOISSEAU, M.R., ALTMAN, D.G. Instrument precision and biological variability determine the number of patients for rheological studies. *Clinical Hemorheology* 9, 181-197, 1989.
- SOURANDER, P. Neurobiorheology. A new branch of Biorheology. Historical background and current ideas (Plenary lecture). *Biorheology* 28, 491-525, 1991.
- SUTERA, S.P., NOWAK, M.D., JOIST, J.H., ZEFFREN, D.J., BAUMAN, J.E. A programmable computer-controlled cone-plate viscometer for the application of pulsatile shear stress to platelet suspensions. *Biorheology* 25, 449-459, 1988.
- TATEISHI, T., USHIDA, T., HOUMA, K., SHIRASAKI, Y., HYODO, K. Study on compressive behavior and water distribution of collagenous tissues by NMR-CT. In: *Progress and new directions of biomechanics*. Y.C. Fung, K. Hayashi, Y. Seguchi (Eds.). Tokyo: Mita Press, 1989, pp. 83-93.
- USAMI, S., CHIEN, S. Optical reflectometry of red cell aggregation under shear flow. *Bibl. Anat.* 11, 91-97, 1973.
- USUI, N., YONEDA, M. Ultrastructural basis of the tension increase in sea-urchin eggs prior to cytokinesis. *Develop. Growth and Differ.* 24, 453-465, 1982.
- VERDUGO, P., AITKE, M., LANGLEY, L., VILLALON, M.J. Molecular mechanisms of product storage and release in mucin secretion. II. The role of extracellular Ca<sup>++</sup>. *Biorheology* 24, 625-633, 1987.
- VIIDIK, A., DANIELSEN, C.C., OXLUND, H. On fundamental and phenomenological models, structure and mechanical properties of collagen, elastin and glycosaminoglycan complexes. *Biorheology* 19, 437-451, 1982.
- WAUTIER, J.L., PATON, R.C., WAUTIER, M.P., PINTIGNY, D., ABADIE, E., PASSA, P., CAEN, J.P. Increased adhesion of erythrocytes to endothelial cells in diabetes mellitus and its relations to vascular complications. *N. Engl. J. Med.* 305, 237-242, 1981.
- WAUTIER, J.L., PINTIGNY, D., WAUTIER, M.P., PATON, R.C., GALACTEROS, F., COURILLON-MALLET, F., PASSA, A., CAEN, J.P. Fibrinogen a modulator or erythrocyte adhesion to vascular endothelium. *J. Lab. Clin. Med.* 101, 911-920, 1983.
- WAUTIER, J.L., PINTIGNY, D., MACLOUF, J., WAUTIER, M.P., CORVAZIA, A., CAEN, J.P. Release of prostacyclin after erythrocyte adhesion to cultured vascular endothelium. *J. Lab. Clin. Med.* 107, 210-215, 1986.
- WAUTIER, J.L., SETIADI, H., VILETTE, D., WEILL, D., WAUTIER, M.P. Leukocyte adhesion to endothelial cells. *Biorheology* 32, 199-205, 1990.
- WAUTIER, J.L. Blood cell-vessel wall interactions. *Clinical Hemorheology* 12, 55-58, 1992.
- WHITMORE, R.L. *Rheology of the circulation*. Oxford-New York: Pergamon Press, 1968, 190 pp.
- WOO, S.L.Y. Mechanical properties of tendons and ligaments (Part 1). *Biorheology* 19, 385-396, 1982.
- WRIGHT, T.C., UKENA, T.E., CAMPBELL, R., KARNOVSKY, M.J. Rate of aggregation, loss of anchorage dependance and tumorigenicity of cultures cells. *Proc. Natl. Acad. Sci. (USA)* 74, 258-262, 1977.
- ZAHM, J.M., PUCHELLE, E., DUVIVIER, C., DIDELON, J. Spinnability of respiratory mucus. Validation of a new apparatus : the filancemeter. *Bull. Eur. Physiopathol. Respir.* 22, 609-61, 1986.
- ZAYAS, J.G., MAN, G.C.W., KING, M. Tracheal mucus rheology in patients undergoing diagnostic bronchoscopy. *Am. Rev. Respir. Dis.* 141, 1107-1113, 1990.



**COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE DE SUSPENSIONS  
COLLOIDALES CONCENTREES  
MONODISPERSEES ET BIDISPERSEES.  
B. Etude expérimentale et modélisation**

TALBI I., et QUEMADA D.

Laboratoire de Biorhéologie et d'Hydrodynamique Physico chimique  
CNRS URA 343 - Université Paris VII  
2 place Jussieu - 75005 PARIS

**RESUME**

Dans un précédent article<sup>1</sup> nous avons décrit les systèmes étudiés ainsi que la méthode proposée pour modéliser la viscosité des suspensions colloïdales concentrées monodispersées et bidispersées. Cette deuxième publication sera consacrée à l'application, aux latex purs, de la modélisation proposée ce qui permettra de les caractériser par des relations linéaires  $\delta^{-2}$  [avec  $\delta \sim (a_{\text{eff}} - a)$ , la différence entre le rayon effectif (de sphère dure) et le rayon réel] et, à partir de ces caractérisations, de modéliser la viscosité des mélanges bidispersés.

**ABSTRACT**

In a recent paper<sup>1</sup> a model for the viscosity of monodispersed and bidispersed concentrated colloidal suspensions was proposed and applied to rheological measurements on latex suspensions, the characteristics of which were described. This second paper concerns, at first, the characterization of each component (monodispersed latex) by linear relations  $\delta^{-2}$  [with  $\delta \sim (a_{\text{eff}} - a)$ , difference between the effectif radius (Hard Sphere radius) and the actual one], and secondly the modelisation of the viscosity of bidispersed systems by using the proposed model.

**INTRODUCTION**

Les systèmes sur lesquels nous avons réalisé cette étude rhéologique ont subi un processus de lavage lent mais efficace, celui ci permettant une meilleure caractérisation physico chimique de ces systèmes. Les mesures des caractéristiques rhéologiques de ces

suspensions, en fonction de la force ionique, seront discutées ici, et nous présenterons une interprétation des résultats, basée sur une modélisation de type sphères dures<sup>1,2</sup>, de rayon effectif (> rayon réel de la particule) lié à une longueur effective de Debye  $\lambda_{Deff}$  qui prend en compte les effets de concentration<sup>3</sup>.

### ***I. ETUDE EXPERIMENTALE, effet de la force ionique***

L'étude expérimentale des latex purs et de leurs mélanges bidispersés a été effectuée à l'aide de deux rhéomètres : le Contraves LS40 dans le cas des faibles viscosités, et le Carri-Med CS100 pour les moyennes et fortes viscosités. Les mesures de viscosité ont été faites suivant un cycle "montée - descente" correspondant au protocole suivant :

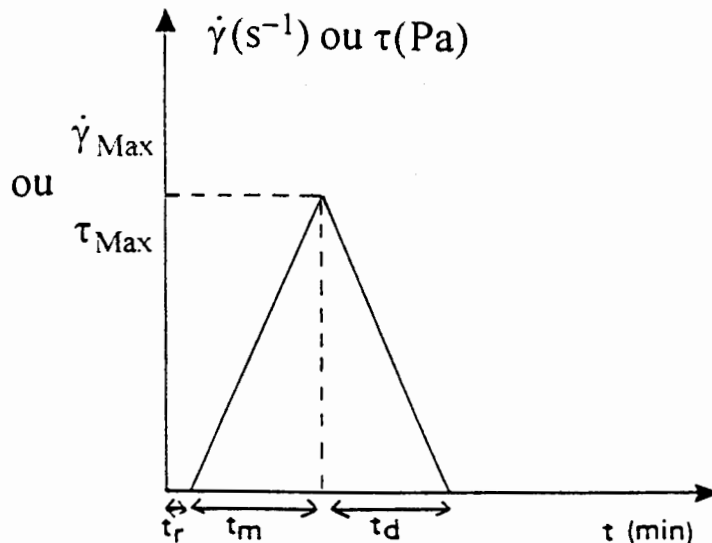


Fig. 1 : protocole de mesures.

Ce protocole précise les valeurs à donner aux paramètres  $\tau_{max}$  (ou  $\dot{\gamma}_{max}$ ),  $t_r$ ,  $t_m$  et  $t_d$ . Le choix de  $\tau_{max}$  est fixé par l'intérêt d'explorer le plus grand intervalle de vitesses de cisaillement. Les différents temps du protocole sont :  $t_r = 2mn$ ,  $t_m = 10mn$  et  $t_d = 10mn$ . Ce choix a été fait après avoir recherché les conditions de stabilité des latex purs et pris en compte l'effet du séchage.

#### ***I.1. SUSPENSIONS MONODISPENSEES***

L'étude effectuée sur les suspensions monodispersées de Polystyrène et de Styrène Butadiène a porté sur les effets de la variation de la force ionique sur les propriétés rhéologiques de ces suspensions, dans le but éventuel de relier ces effets à des modifications de structure, elles mêmes associées aux forces d'interactions entre particules. Ces variations de force ionique ont été effectuées par ajout de chlorure de sodium (NaCl). Les échantillons ont été préparés à différentes concentrations en sel, ces concentrations étant calculées par rapport au volume du fluide suspendant,  $V_f = V_s(1-\phi)$ , où  $V_s$  est le volume de la suspension.

Notons que le latex obtenu après lavage a une force ionique  $I_0$  inconnue qui correspondrait, en équivalent NaCl, à une concentration  $C_0$ .

Les mesures de viscosité ont été effectuées sur des suspensions de Polystyrène et de Styrene Butadiène ayant une fraction volumique  $\phi \cong 0,292$  et un pH ajusté à 7. Ces mesures ont été réalisées pour le Polystyrène avec le Contraves LS40, et pour le Styrene Butadiène avec le Carri-Med CS100. Les rhéogrammes obtenus sont représentés sur la figure 2 et 3.

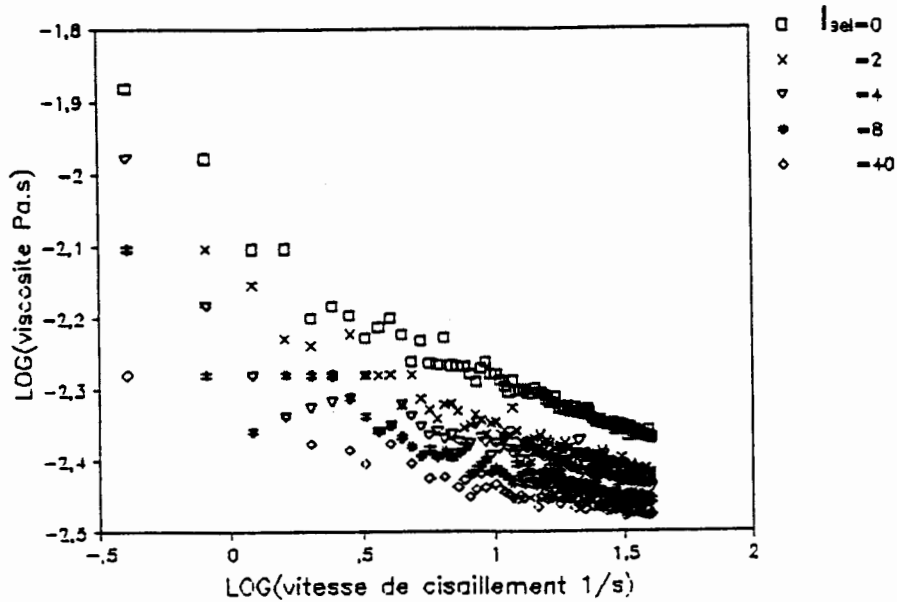


Fig.2 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour le latex Polystyrène.

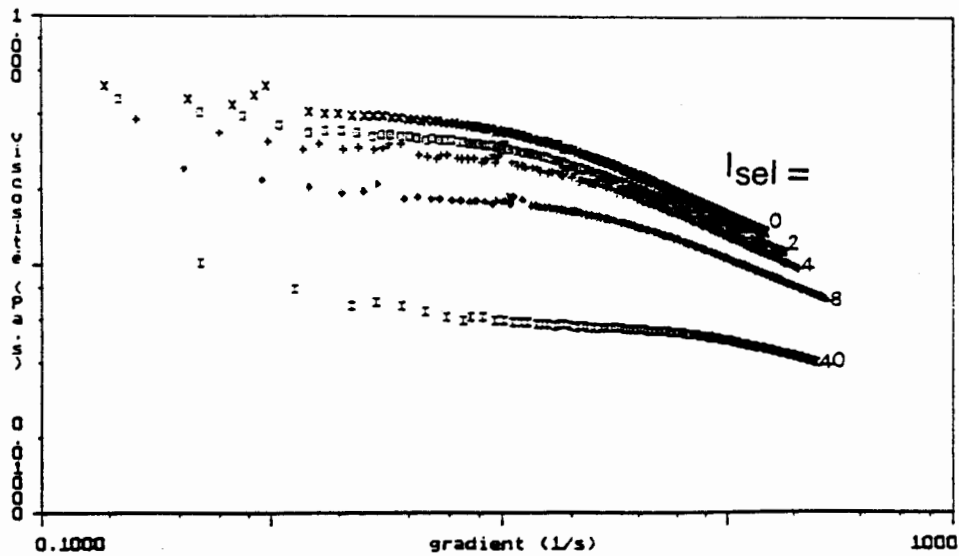


Fig.3 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour le latex Styrene Butadiène.

L'augmentation de la concentration de sel provoque la diminution de la longueur de Debye, d'où une diminution du rayon effectif des particules et par suite de la fraction volumique effective, ce qui se traduit finalement par une diminution de la viscosité de la suspension.

Les comportements du Polystyrène et du Styrene Butadiene correspondent à cette description.

### 1.2. SUSPENSIONS BIDISPENSEES

Pour étudier l'effet de la bidispersité sur le comportement rhéologique des suspensions de latex, nous avons préparé trois mélanges bidispersés à  $\phi_S / \phi = 0,25 ; 0,50$  et  $0,75$  (où  $\phi_S / \phi$  est la fraction en volume du Styrene Butadiene dans le mélange) pour chaque concentration de sel ( $I_{sel} = 0, 2, 4$  et  $8$  mM/l). La fraction volumique totale des mélanges étudiés est  $\phi \cong 0,292$  et leur  $pH \cong 7$ . L'étude de ces suspensions a été faite, selon leur viscosité, avec le Contraves LS40 ou le Carri-Med CS100. Les rhéogrammes  $\eta(\dot{\gamma})$  obtenus sont représentés sur les figures 4, 5, 6 et 7.

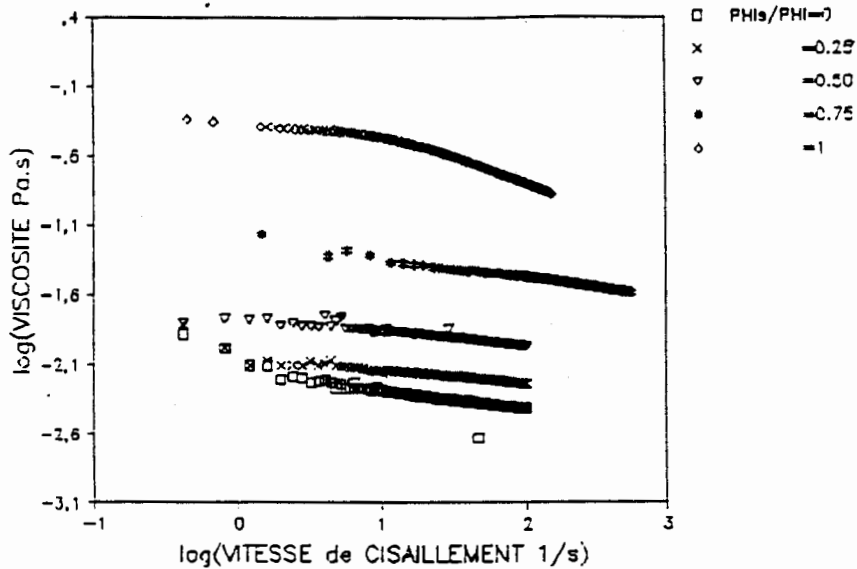


Fig.4 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les mélanges bidispersés à  $I_{sel}=0$ .

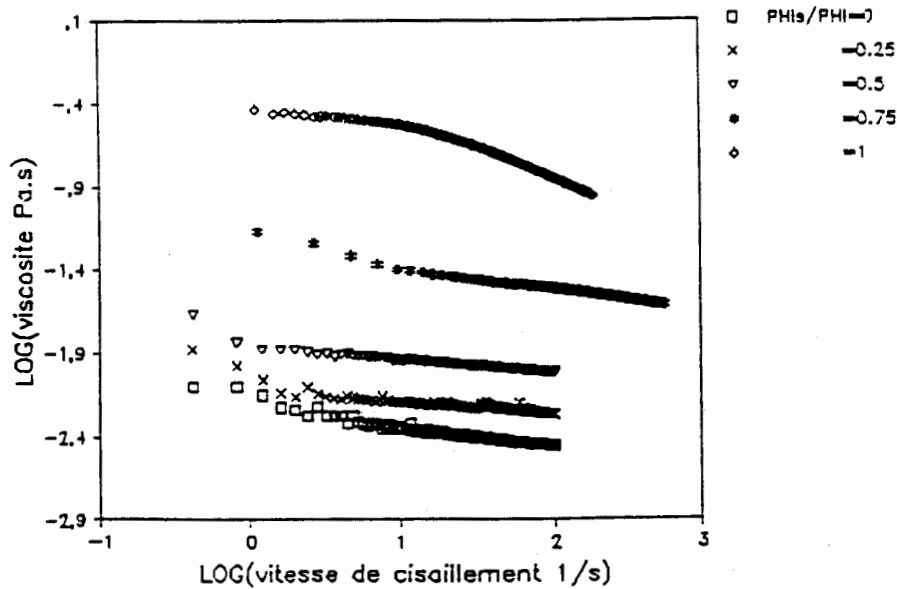


Fig.5 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les mélanges bidispersés à  $I_{sel}=2$  mM/l.

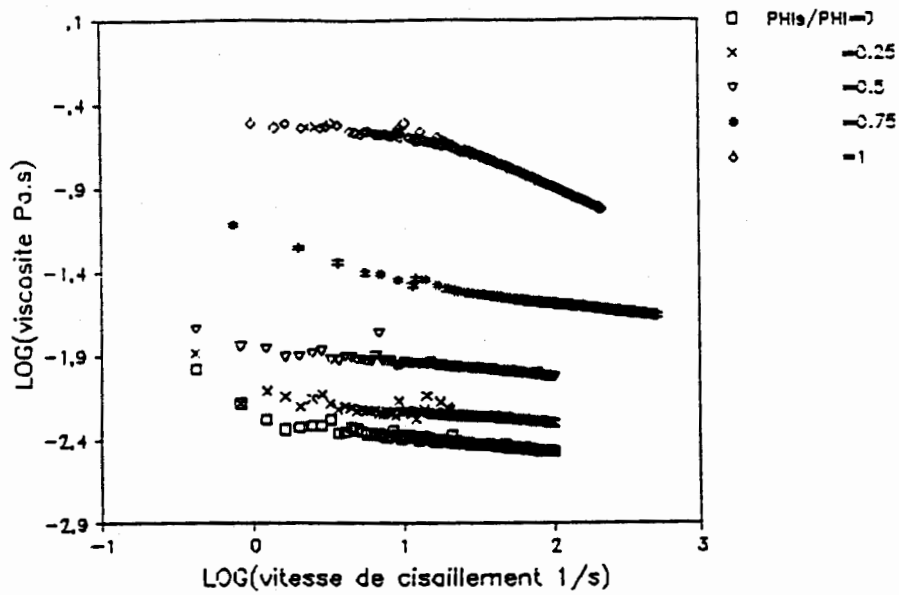


Fig.6 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les mélanges bidispersés à  $l_{set}=4\text{mM/l}$ .

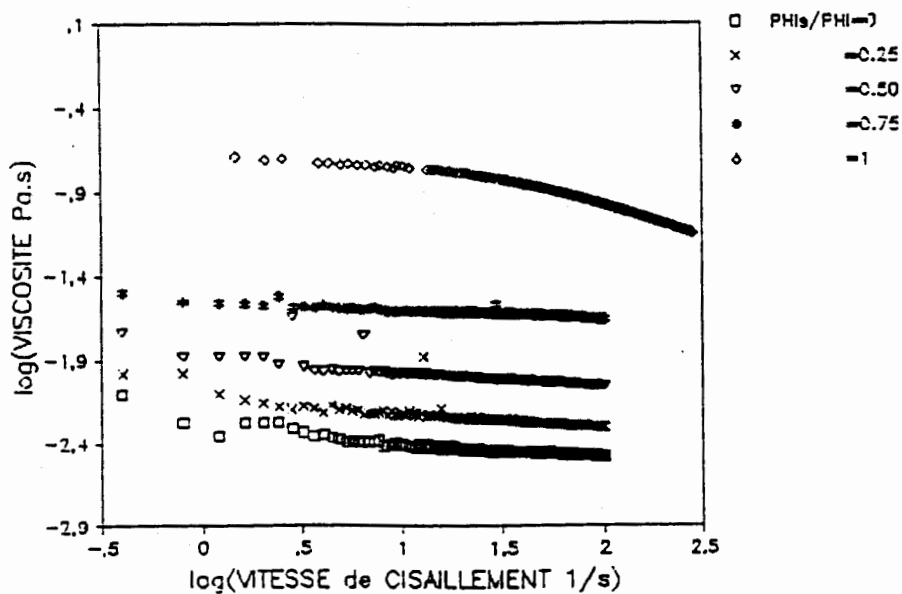


Fig.7 : viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les mélanges bidispersés à  $l_{set}=8\text{mM/l}$ .

## II. MODELISATION

Pour modéliser le comportement rhéologique des systèmes étudiés, nous avons utilisé le modèle structurel<sup>4,5</sup> caractérisé par quatre paramètres  $\eta_0$ ,  $\eta_\infty$ ,  $t_c$  et  $p$ , décrit par l'expression suivante :

$$\eta^{-1/2} = \eta_\infty^{-1/2} + \frac{\eta_0^{-1/2} - \eta_\infty^{-1/2}}{1 + (t_c \dot{\gamma})^p} \quad (1)$$

où  $\eta_0$  et  $\eta_\infty$  sont les plateaux newtoniens à  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$  et  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$ ,  $t_c$  est le temps caractéristique lié aux cinétiques structurales et  $p$  un paramètre semi empirique relié à la pente de la courbe de la viscosité. Pour des raisons de simplicité et dans la mesure où les ajustements sur les différents rhéogrammes nous ont permis d'obtenir des valeurs de  $p$  très voisines de 0,5, nous avons fixé  $p$  à cette valeur pour toute la modélisation : le nombre de paramètres inconnus est donc réduit à trois.

### II.1 AJUSTEMENT DU MODELE

L'ajustement du modèle structural sur les rhéogrammes  $\eta_r(\dot{\gamma})$  permet de déterminer les viscosités limites  $\eta_{r0}$  et  $\eta_{r\infty}$  (la viscosité du fluide suspendant étant celle de l'eau), ainsi que le temps caractéristique  $t_c$ . Lors de l'ajustement de rhéogrammes qui ne représentent qu'une partie de la courbe maîtresse (par exemple fig.2 et fig.3) nous aurons une imprécision plus ou moins grande sur la détermination de l'autre partie de la courbe (c'est à dire  $\eta_0$  pour la fig.2 et  $\eta_\infty$  pour la fig.3).

#### a) latex Polystyrène

dans ce cas nous constatons une faible variation de la viscosité  $\eta_{r\infty}$  (fig.8) en fonction de  $I_{sel}$ . On peut donc fixer  $\eta_{r\infty}(I_{sel})$  à sa valeur moyenne,  $\eta_\infty \cong 2,9\text{cP}$ , valeur qui implique  $a_{ciff} \cong a$ , donc :

$$\delta_{L\infty} \cong 0 \quad (2)$$

Le temps caractéristique  $t_c(I_{sel})$  représenté sur la figure 9 varie très peu autour d'une valeur moyenne  $\cong 9,5 \cdot 10^{-2}\text{s}$ , qui est de l'ordre du temps de diffusion brownienne ( $t_{Br} \cong 3,7 \cdot 10^{-2}\text{s}$ ).

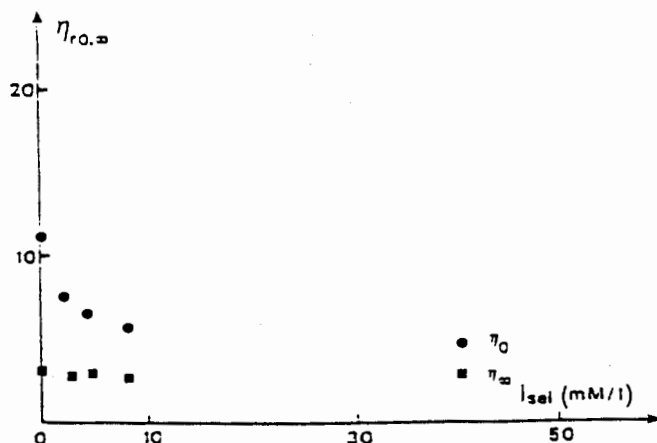


Fig.8 : viscosités limites  $\eta_{r0}$  et  $\eta_{r\infty}$  en fonction de  $I_{sel}$ .

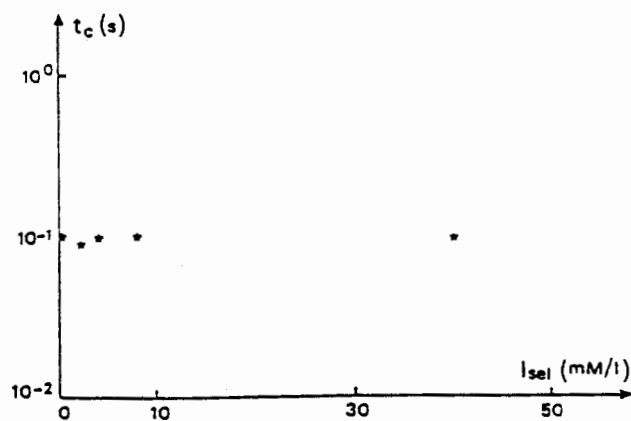


Fig.9 : temps caractéristique  $t_c$  en fonction de  $I_{sel}$ .

#### b) latex Styrène Butadiène

les viscosités limites  $\eta_{r0}$  et  $\eta_{r\infty}$  sont représentées sur la figure 10 et le temps caractéristique  $t_c$  sur la figure 11.



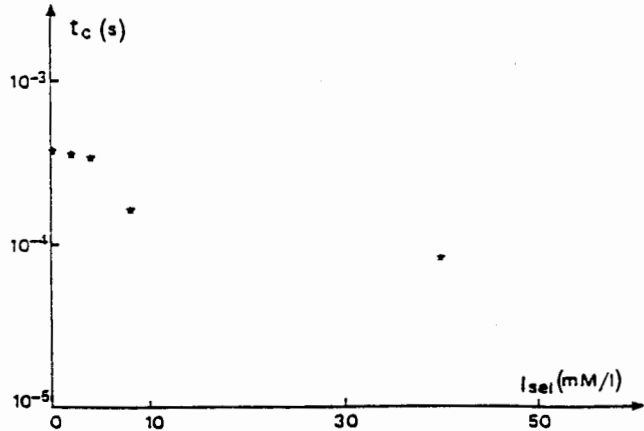
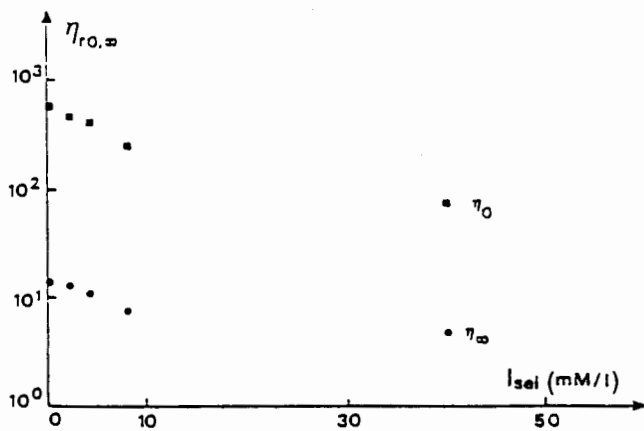


Fig. 10 : viscosités limites  $\eta_{r0}$  et  $\eta_{r\infty}$  en fonction de  $I_{sel}$

Fig. 11 : temps caractéristique  $t_c$  en fonction de  $I_{sel}$ .

**c) mélanges des deux latex purs**

l'ajustement par le modèle structurel des rhéogrammes donne les variations  $\eta_{r0}(\phi_S/\phi, I_{sel})$  (fig. 12),  $\eta_{r\infty}(\phi_S/\phi, I_{sel})$  (fig. 13) et  $t_c(\phi_S/\phi, I_{sel})$  (fig. 14).

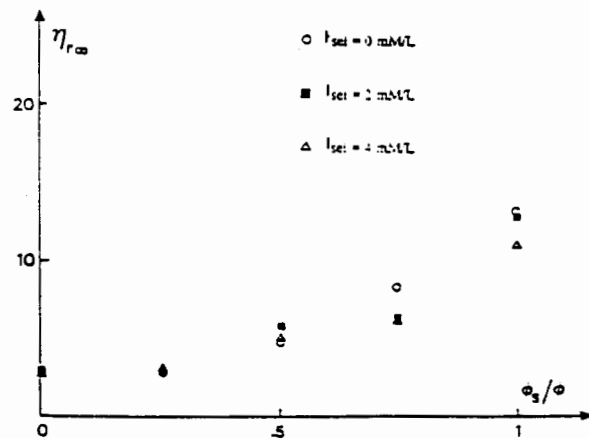
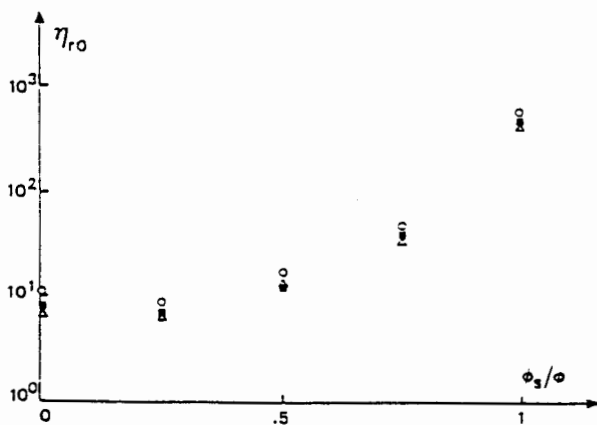


Fig. 12 : variations de  $\eta_{r0}$  en fonction de  $\phi_S/\phi$  et  $I_{sel}$ .

Fig. 13 : variations de  $\eta_{r\infty}$  en fonction de  $\phi_S/\phi$  et  $I_{sel}$ .

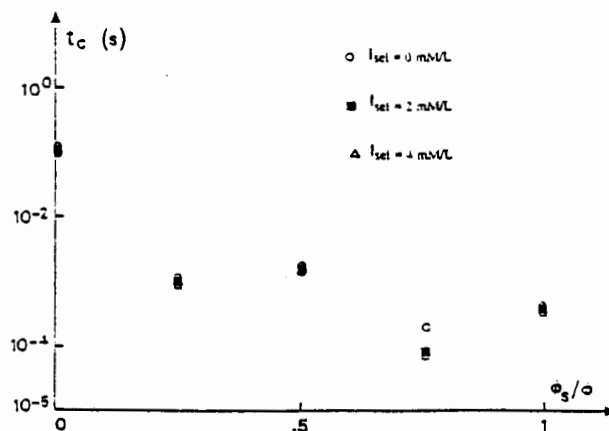


Fig. 14 : variations du temps caractéristique  $t_c$  en fonction de  $\phi_S/\phi$  et  $I_{sel}$ .

remarquons que la différence observée entre les viscosités des deux suspensions monodispersées (fig.12 et 13) à  $\phi_S/\phi = 0$  et  $\phi_S/\phi = 1$  peut s'expliquer par la différence entre les forces ioniques initiales  $I_{iS}$  et  $I_{iL}$ . La figure 14 montre une décroissance du temps caractéristique en fonction de  $\phi_S/\phi$ . Dans la limite où la suspension contient beaucoup de petites particules, on peut penser que c'est le temps caractéristique de celles ci qui domine ce qui justifierait cette décroissance.

Dans toute la suite nous allons nous intéresser à la modélisation des viscosités limites des suspensions monodispersées et bidispersées de latex, en considérant  $t_c$  comme un paramètre d'ajustement (cf. II.4.2 dans l'article 1).

## II.2. MODELISATION DES VISCOSITES LIMITES, latex purs

A partir des viscosités limites des suspensions monodispersées, déterminées au chapitre précédent, nous allons caractériser les deux latex étudiés par des relations linéaires  $\delta^{-2}(I_{sel})$ , relations qui ne seront valables que dans un domaine donné de force ionique.

### II.2.1. Détermination expérimentale de $\delta^{-2}$

Après avoir obtenu les viscosités limites des suspensions à différents ajouts de sel, l'utilisation de l'expression<sup>1</sup> :

$$\delta_{0,\infty}^{-2} = a^{-2} \left[ (1 - \eta_{ro,\infty}^{-1/2})^{1/3} \left( \frac{\phi_{0,\infty}}{\phi} \right) - 1 \right]^{-2} \quad (3)$$

$$\text{avec}^{6,7,8} \quad \phi_0 = 0,637 \quad \text{et} \quad \phi_\infty = 0,71$$

va permettre de déterminer les valeurs "expérimentales" de  $\delta_{L0}^{-2}$  pour le latex Polystyrène et celles de  $\delta_{S0,\infty}^{-2}$  pour le latex Styène Butadiène.

Dans le cas du latex Styène Butadiène (fig.15) nous avons pu constater que  $\delta_{S0}^{-2}(I_{sel})$  peut être décrit par une relation linéaire dans tout le domaine des concentrations étudiées, tandis que pour le latex Polystyrène (fig.16), le point à  $I_{sel} = 40\text{mM/l}$  est hors du domaine linéaire.

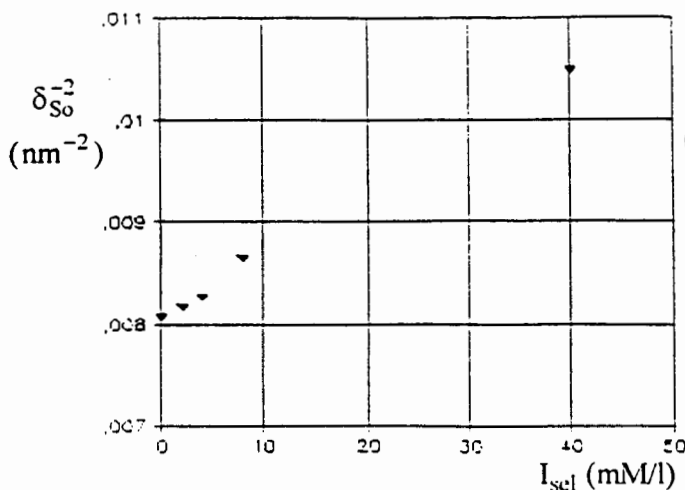


Fig.15 : variations de  $\delta_{S0}^{-2}$  en fonction  $I_{sel}$ .

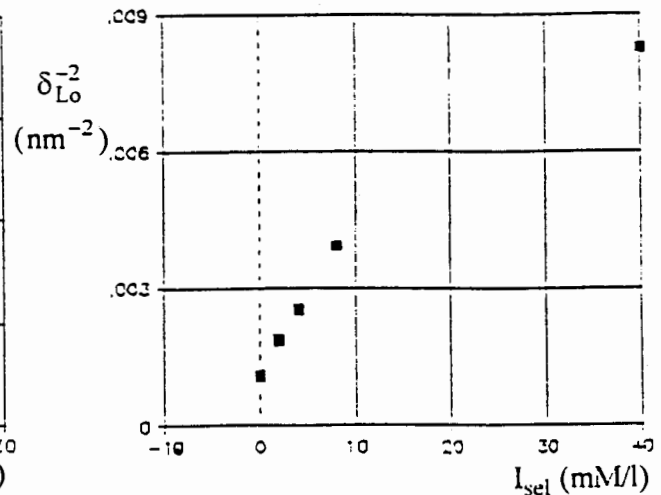


Fig.16 : variations de  $\delta_{L0}^{-2}$  en fonction  $I_{sel}$ .

Donc, pour la suite de la modélisation, nous effectuerons les régressions linéaires dans le domaine  $I_{sel} \leq 8 \text{mM/l}$ , nous avons obtenu ainsi :

**a) pour le latex Polystyrène**

\* limite  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$  : (fig. 17)

$$\delta_{Lo}^{-2}(I_{sel}) = 35.10^{-5}(3,2 + I_{sel}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (4)$$

La comparaison de l'expression théorique (5) qui relie le paramètre  $\delta^{-2}$  à la force ionique  $I_{sel}$  (équation 13 dans l'article 1) :

$$\delta^{-2}(I_{sel}) = \left( \frac{\kappa_{00}}{\xi} \right)^2 (I_i + Q + I_{sel}) \quad (5)$$

à l'expressions (4) nous donne la valeur :

$$I_{iL} + Q_L \cong 3,2 \text{mM/l.}$$

\* limite  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$

Rappelons qu'on a alors obtenu  $\delta_{L\infty} = 0$  (eq.2). Par conséquent ce sont les équations (2) et (4) que nous utiliserons pour caractériser le rayon effectif du latex Polystyrène, dans les limites  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$  et  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$ .

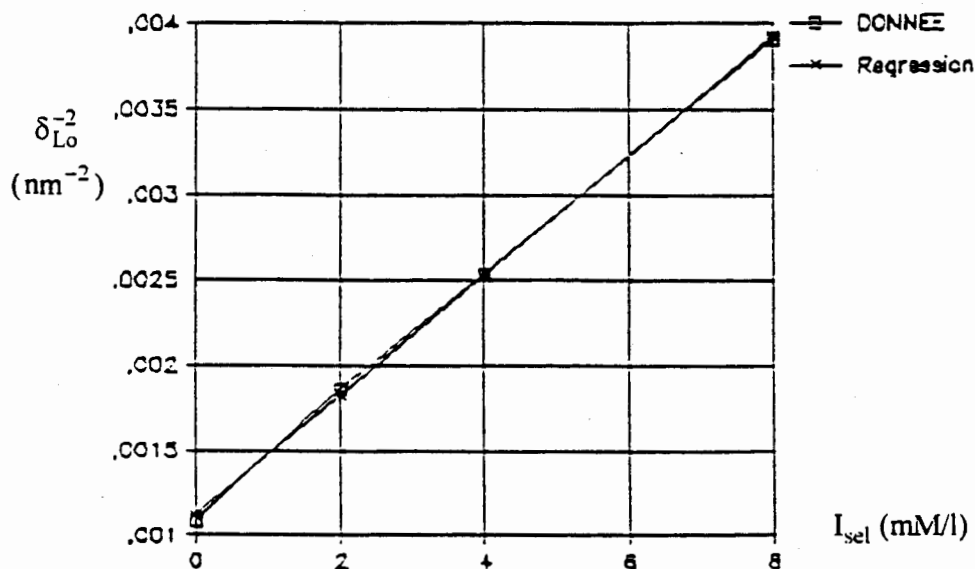


Fig.17 : régression linéaire de  $\delta_{Lo}^{-2}$  en fonction  $I_{sel}$ .

**b) pour le latex Styrene Butadiène**

\* limite  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$  : (fig. 18)

$$\delta_{So}^{-2}(I_{sel}) = 73.10^{-6}(109,9 + I_{sel}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (6)$$

relation qui caractérise le rayon effectif à  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$  du latex Styrene Butadiène. En comparant les équations (6) et (5), nous obtenons :

$$I_{iL} + Q_L \cong 109,9 \text{mM/l.}$$

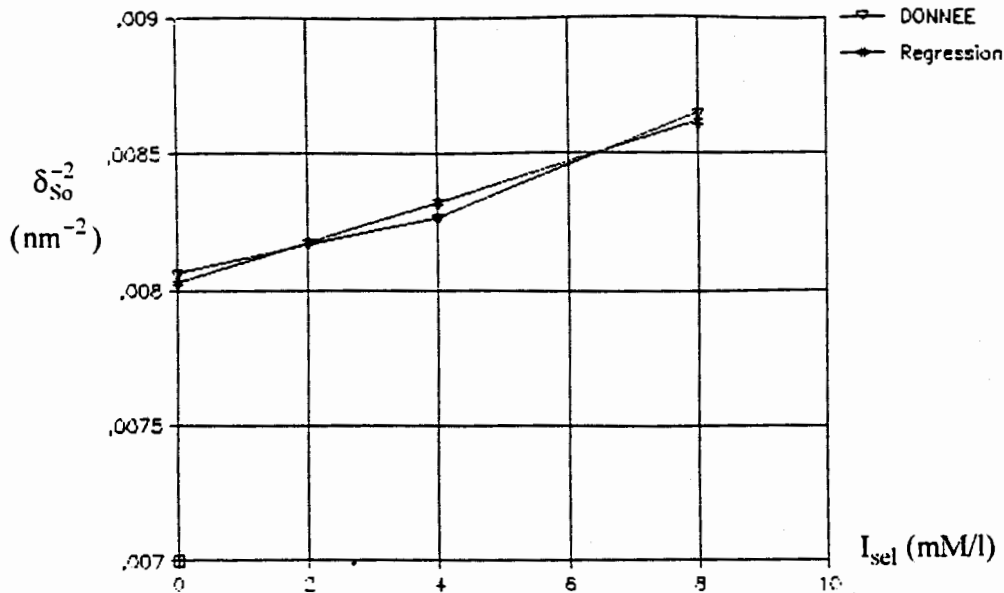


Fig.18 : régression linéaire de  $\delta_{S_0}^{-2}$  en fonction  $I_{sel}$ .

\* limite  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$  : (fig. 19)

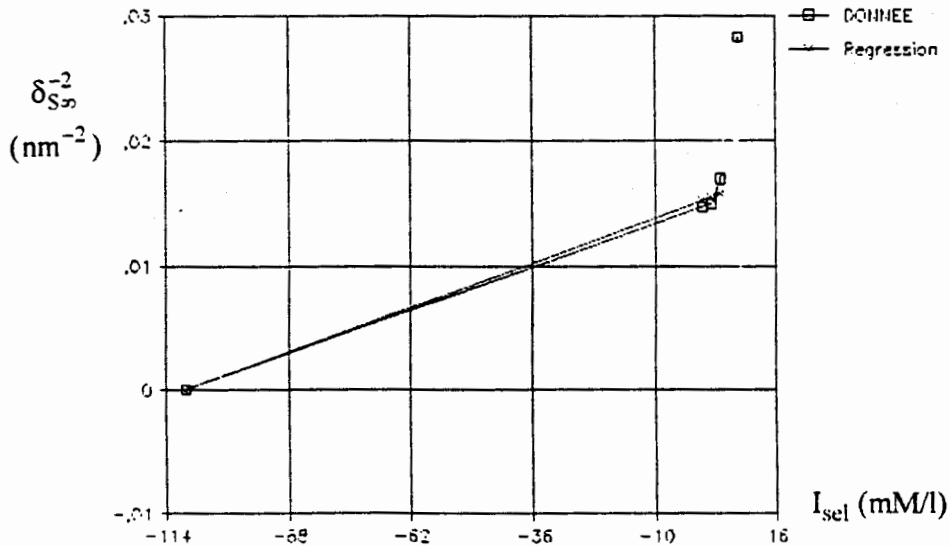


Fig.19 : variation de  $\delta_{S_\infty}^{-2}$  en fonction  $I_{sel}$ .

les valeurs expérimentales  $\delta_{S_\infty}^{-2}(I_{sel})$  portées sur la figure 19 montrent que l'ensemble des quatre points peut être décrit par une relation linéaire mais qui donnerait une valeur  $I_{iS} + Q_S$  beaucoup plus faible que celle obtenue ci dessus. Etant donné que les grandeurs  $I_{iS}$  et  $Q_S$  sont indépendantes du cisaillement, il a semblé plus justifié de considérer que le point défini par  $\delta_{S_0}^{-2} = 0$  et  $I_{sel} = -109,9$  doit être aussi un point de la droite  $\delta_{S_\infty}^{-2}(I_{sel})$ . Au contraire nous avons écarté le point à 8mM/l, pour les raisons suivantes :

1. la partie du rhéogramme accessible à la mesure est le plateau newtonien  $\eta_0$  et une portion de la partie rhéofluidifiante ce qui laisse une assez grande imprécision sur la détermination, par ajustement, du plateau  $\eta_\infty$

2. lorsque  $I_{sel}$  augmente, la viscosité  $\eta_{\infty}$  diminue et l'imprécision sur sa détermination devient de plus en plus grande.

Par conséquent nous ajoutons le point dont les coordonnées sont : (-109,9; 0) aux points  $\delta_{S\infty}^{-2}$  déduits des valeurs de viscosités  $\eta_{\infty}(I_{sel})$  et nous effectuons la régression linéaire dans le domaine  $-(I_{iS}+Q_S) \leq I_{sel} \leq 4\text{mM/l}$ , ce qui conduit à la relation suivante :

$$\delta_{S\infty}^{-2}(I_{sel}) = 138,6 \cdot 10^{-6} (109,5 + I_{sel}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (7)$$

L'équation (7) sera utilisée pour caractériser le rayon effectif à  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$  du latex Styène Butadiène.

Pour calculer les viscosités limites théoriques du latex Styène Butadiène, nous avons calculé les fractions volumiques effectives à l'aide des équations (6) et (7) introduites dans :

$$\phi_{\text{eff}}^{0,\infty} = \phi \left( 1 + \frac{\delta_{S0,\infty}}{a_S} \right)^3 \quad (8)$$

en portant ces valeurs dans l'équation suivante :

$$\eta_{ro,\infty} = \left( 1 - \frac{\phi_{\text{eff}}^{0,\infty}}{\phi_{0,\infty}} \right)^{-2} \quad (9)$$

nous avons obtenu les valeurs des viscosités limites  $\eta_{ro}$  et  $\eta_{r\infty}$ .

Alors nous avons effectué la comparaison des rhéogrammes  $\eta(\dot{\gamma})$  correspondant à ces valeurs limites  $\eta_{ro}$  et  $\eta_{r\infty}$  ( $p=0,5$ ), aux rhéogrammes expérimentaux en ajustant le temps caractéristique  $t_c$ . Ceci a permis de constater une bonne comparaison entre les deux types de rhéogrammes même pour  $I_{sel} = 8\text{mM/l}$ , et de trouver, pour les différentes suspensions de Styène Butadiène, un temps caractéristique pratiquement indépendant de  $I_{sel}$  et dont la valeur moyenne est  $t_c \cong 3,6 \cdot 10^{-4}\text{s}$ , valeur très proche du temps de diffusion brownienne ( $t_{Br} \cong 3 \cdot 10^{-4}\text{s}$ ).

### II.2.2. Discussion des valeurs de " $I_i+Q$ "

Les régressions linéaires effectuées (eq.4, 6, 7) ont permis d'obtenir, pour la somme " $I_i+Q$ ", les valeurs suivantes :

**a) latex Polystyrène :** ( $I_{iL}+Q_L \cong 3,2\text{mM/l}$ )

Si tous les acides sont supposés dissociés, la valeur de la densité de charge des particules de Polystyrène est :  $q \cong 8,8\mu\text{C/cm}^2$ . Le calcul du paramètre  $Q_L$  est fait en utilisant l'expression:

$$Q = \frac{3}{z e N_A} \frac{\phi}{(1-\phi)} \frac{q}{2a} \quad (10)$$

et donne :  $Q_L \cong 2,82\text{mM/l}$ , ce qui permet de déduire la valeur de la force ionique :  $I_{iL} \cong 0,38\text{mM/l}$ ,

valeur qui paraît tout à fait acceptable compte tenu de la qualité du lavage effectué.



**b) latex Styrene Butadiene** : ( $I_{IS} + Q_S \cong 109,9 \text{ mM/l}$ )

Puisque la qualité du lavage est semblable pour les deux latex, nous pouvons supposer que la force ionique  $I_{IS}$  est du même ordre de grandeur que  $I_{IL}$ , ce qui nous permet d'écrire :

$I_{IS} \ll 109,9 \text{ mM/l}$  ( $= I_{IS} + Q_S$ ), et par conséquent de négliger la valeur de  $I_{IS}$  devant celle de  $Q_S$ . De  $Q_S \cong 109,9 \text{ mM/l}$  on déduit  $q_S \cong 68,5 \mu\text{C/cm}^2$  soit environ les 3/4 de la charge "totale", si tous les acides étaient supposés dissociés. Cependant comme nous l'avons souligné dans le premier article, nous ne pouvons supposer une dissociation totale des acides dans le cas du latex Styrene Butadiene, car cela donnerait un nombre total de sites occupés supérieur à ce que donnent les calculs théoriques<sup>9,10</sup>.

**II.3. MODELISATION DES VISCOSITES LIMITES, suspensions bidispersées**

Rappelons que la modélisation des viscosités limites d'une suspension bidispersée nécessite l'utilisation de fractions volumiques effectives  $\phi_{\text{eff}}^{0,\infty}$  (eq.8) et de fractions de packing maximum<sup>8</sup>  $\phi_{\text{MB}}^{0,\infty}$  (eq.17 dans 1), valables pour des systèmes bidispersés. Donc pour un mélange défini par les fractions  $\frac{\phi_S}{\phi}$  et  $(1 - \frac{\phi_S}{\phi})$ , le calcul des fractions  $\phi_{\text{eff}}^{0,\infty}$  et  $\phi_{\text{MB}}^{0,\infty}$  utilise les relations linéaires  $\delta_{0,\infty}^{-2}(I_{\text{sel}})$  donnant  $a_{\text{eff}}^{0,\infty}(I_{\text{sel}})$  pour les deux latex.

Pour  $I_{\text{sel}} = 0$ , ces relations linéaires exprimées en fonction de la force ionique "initiale" du mélange  $I_{\text{im}}$ , deviennent d'après les équations (4), (6) et (7) :

**a) pour le latex Polystyrène**

$$\delta_{L0}^{-2}(I_{\text{im}}) = 35 \cdot 10^{-5} ((3,2 - I_{IL}) + I_{\text{im}}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (11a)$$

$$\delta_{L\infty}(I_{\text{im}}) \cong 0 \quad (11b)$$

**b) pour le latex Styrene Butadiene**

$$\delta_{S0}^{-2}(I_{\text{im}}) = 73 \cdot 10^{-6} ((109,9 - I_{IS}) + I_{\text{im}}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (12a)$$

$$\delta_{S\infty}^{-2}(I_{\text{im}}) = 138,6 \cdot 10^{-6} ((109,5 - I_{IS}) + I_{\text{im}}) \quad (\text{nm})^{-2} \quad (12b)$$

où 
$$I_{\text{im}} = I_{IS} \frac{\phi_S}{\phi} + I_{IL} \left( 1 - \frac{\phi_S}{\phi} \right) \quad (13)$$

Dans la mesure où  $I_{\text{im}}$  reste inférieure à  $8 \text{ mM/l}$ , les relations linéaires définies précédemment, (11) (12) et (13), doivent nous permettre de déterminer les valeurs limites des rayons effectifs correspondant aux deux latex, dans les conditions du mélange, et par conséquent de calculer pour chaque limite 0,  $\infty$  la fraction volumique effective et la fraction de packing maximum des suspensions bidispersées. En portant ces valeurs dans les expressions des viscosités limites :

$$\eta_{\text{ro},\infty} = \left( 1 - \frac{\phi_{\text{eff}}^{0,\infty}}{\phi_{\text{MB}}^{0,\infty}} \right)^{-2} \quad (14)$$

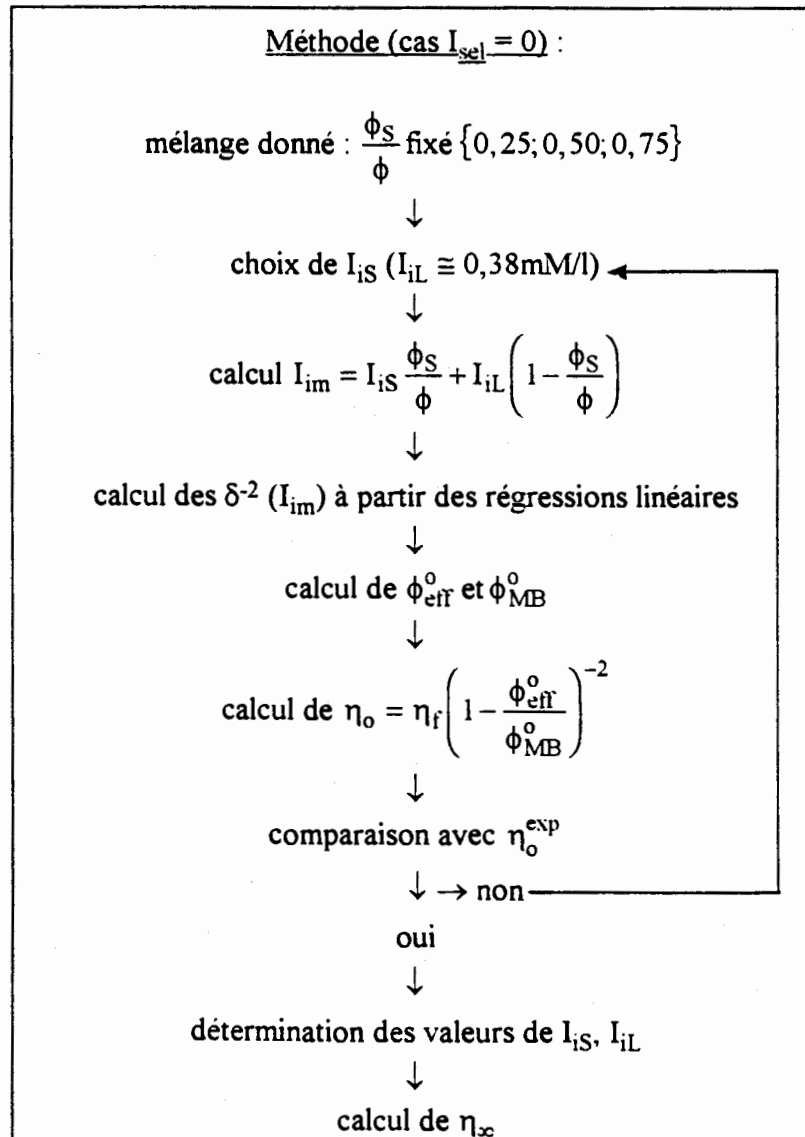
$$\phi_{\text{eff}}^{0,\infty} = \phi \left[ \frac{\phi_S}{\phi} \left( 1 + \frac{\delta_S^{0,\infty}}{a_S} \right)^3 + \left( 1 - \frac{\phi_S}{\phi} \right) \left( 1 + \frac{\delta_L^{0,\infty}}{a_L} \right)^3 \right] \quad (15)$$

nous obtenons les viscosités limites  $\eta_{r0}$  et  $\eta_{r\infty}$  des mélanges. Ce calcul nécessite, bien sûr, la connaissance des valeurs  $\delta$  pour chacun des deux latex, et par conséquent celle des paramètres  $I_{iS}$  et  $I_{iL}$ . Comme nous ne connaissons pas avec précision la valeur de la densité de charge du latex Styène Butadiène, nous ne pouvons donner de valeur précise à  $Q_S$  et par conséquent nous ne pouvons fixer la valeur de  $I_{iS}$ . C'est pourquoi le paramètre  $I_{iS}$  a été considéré dans la suite comme un paramètre ouvert.

Nous allons maintenant nous intéresser à la modélisation des systèmes bidispersés. Nous considérons dans un premier temps le cas des mélanges correspondant à  $I_{sel} = 0$ .

### II.3.1. Mélanges bidispersés sans ajout de sel

Tableau 1 :



Pour modéliser les viscosités limites  $\eta_{ro}$  obtenues par ajustement direct du modèle de viscosité sur les rhéogrammes  $\eta(\dot{\gamma})$  des trois mélanges bidispersés, pour lesquels  $\phi_S/\phi = 0,25; 0,5$  et  $0,75$ , nous avons recherché la valeur de  $I_{iS}$  qui donne des viscosités  $\eta_{ro}$  théoriques les plus proches possibles des  $\eta_{ro}$  expérimentales. Connaissant la valeur de  $I_{iL} (\cong 0,38\text{mM/l})$  nous avons fait varier celle de  $I_{iS}$  et pour chaque valeur de  $I_{iS}$  nous avons calculé les rayons effectifs des deux latex en utilisant les relations (11), (12) et (13). Une fois ces rayons effectifs obtenus, nous avons pu calculer la fraction volumique effective (eq.15) et la fraction de packing maximum<sup>11</sup> de chaque mélange, et par suite la viscosité  $\eta_{ro}$  théorique (eq.14). En comparant chaque valeur de  $\eta_{ro}$  théorique à la valeur expérimentale obtenue par ajustement, pour un  $\phi_S/\phi$  donné, nous avons pu constater que le meilleur ajustement correspondait à  $I_{iS} = I_{iL} (\cong 0,38\text{mM/l})$ , ce qui signifie que les valeurs des rayons effectifs des latex "purs" ne sont pas modifiées dans les mélanges. Alors l'utilisation de (11b) et (12b) (avec  $I_{iS} = I_{iL}$ ) dans le calcul de la fraction volumique effective,  $\phi_{eff}^{\infty}$ , et la fraction de packing maximum,  $\phi_{MB}^{\infty}$ , va nous permettre de calculer la viscosité limite  $\eta_{rx}$  (eq.14) des mélanges bidispersés. La méthode utilisée est schématisée sur le tableau I. Une fois les valeurs limites  $\eta_{ro}$  et  $\eta_{rx}$  obtenues, nous devons comparer les rhéogrammes théoriques correspondant à ces valeurs limites aux rhéogrammes expérimentaux, cette comparaison se faisant par l'ajustement du seul temps caractéristique  $t_c$  ( $p=0,5$ ). Puisqu'un tel ajustement représente une translation du rhéogramme  $\eta(\dot{\gamma})$  parallèlement à l'axe des  $\dot{\gamma}$ , et ne modifie ni les valeurs des plateaux  $\eta_{ro}$  et  $\eta_{rx}$ , ni la courbure du rhéogramme (cf. chap.II.4.2. dans 1), nous pourrions considérer que la modélisation proposée décrit correctement les systèmes étudiés si nous constatons une bonne comparaison modèle - expérience. Les rhéogrammes expérimentaux  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $\tau(\dot{\gamma})$  correspondant aux trois mélanges à  $\phi_S/\phi = 0,25; 0,5$  et  $0,75$  et leurs modélisations sont représentés sur les figures 20 à 25 et permettent de constater que les rhéogrammes théoriques et expérimentaux sont en très bon accord.

$I_{sel} = 0\text{mM/l}$ :

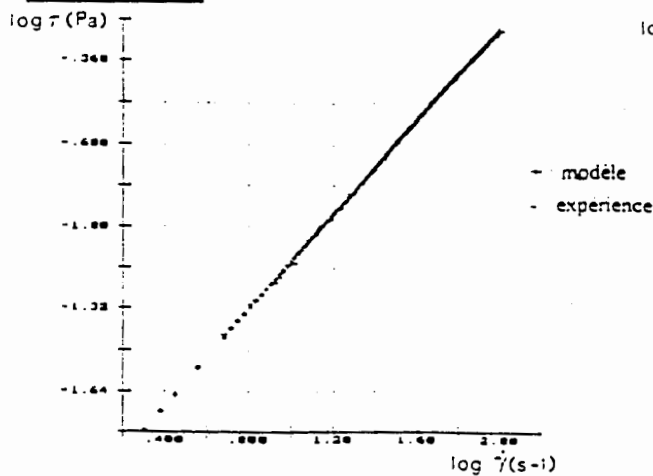


Fig.20 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_S/\phi = 0,25$

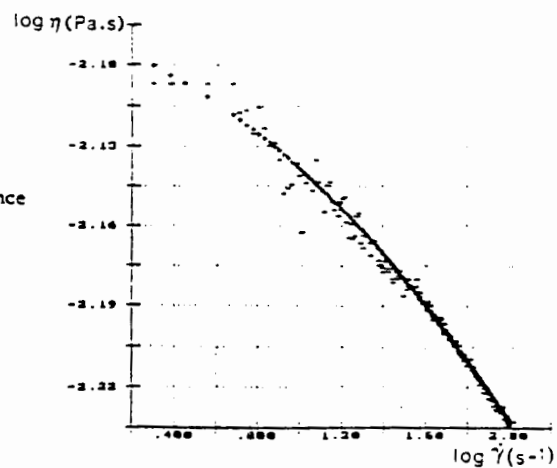


Fig.21 : log de la viscosité en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_S/\phi = 0,25$

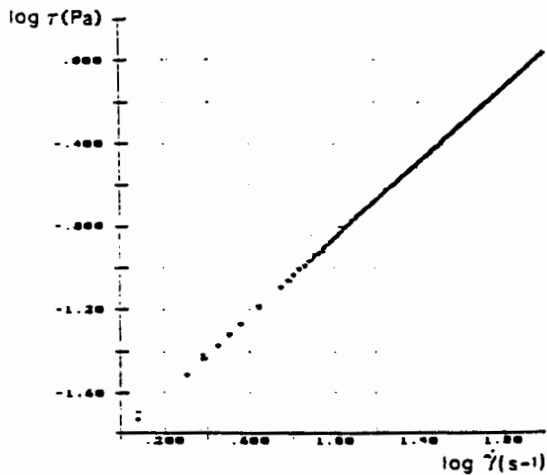


Fig.22 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0,50$

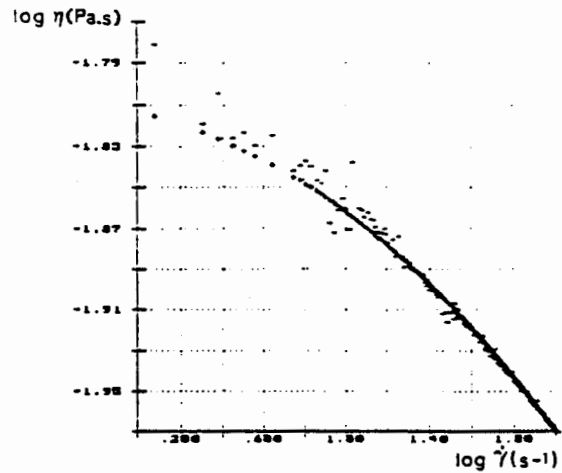


Fig.23 : log de la viscosité en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0,50$

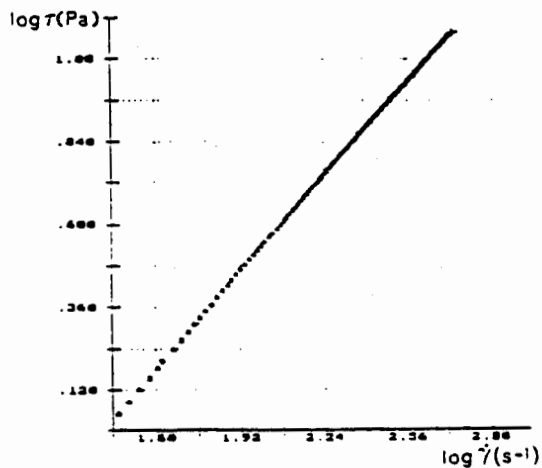


Fig.24 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0,75$

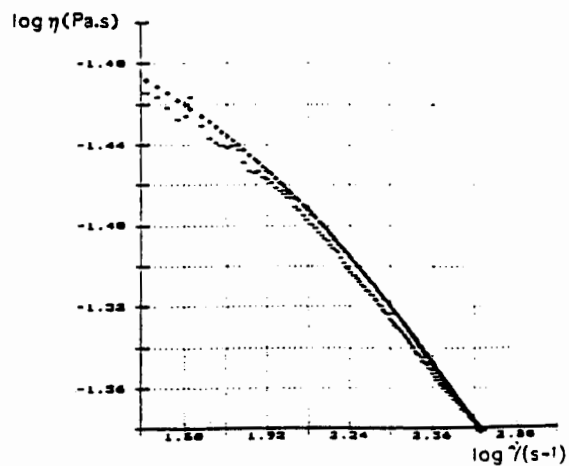


Fig.25 : log de la viscosité en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0,75$

Maintenant tous les paramètres du modèle sont connus, par conséquent il nous est possible de calculer les viscosités limites des mélanges bidispersés avec ajout de sel.

Une fois les viscosités limites des mélanges bidispersés avec ajout de sel calculées, nous pouvons effectuer la comparaison "courbe théorique - courbe expérimentale" et en déduire la valeur du temps caractéristique  $t_c$ .

### II.3.2. Mélanges bidispersés avec ajout de sel

Pour ces mélanges nous avons comparé les rhéogrammes  $\tau(\dot{\gamma})$ . Les résultats de ces différentes comparaisons sont représentés sur les figures 26 à 34.

$I_{gel} = 2mM/l$

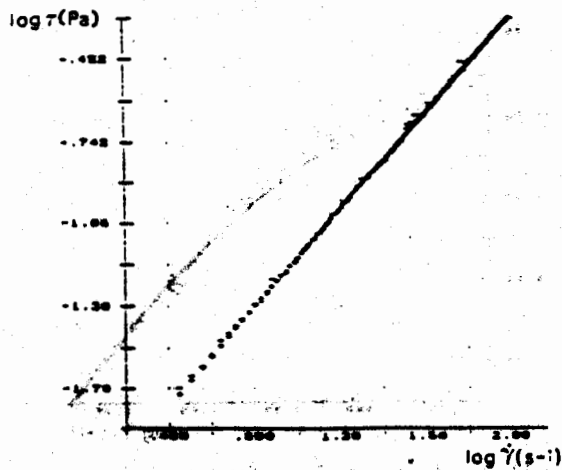


Fig.26 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.25$

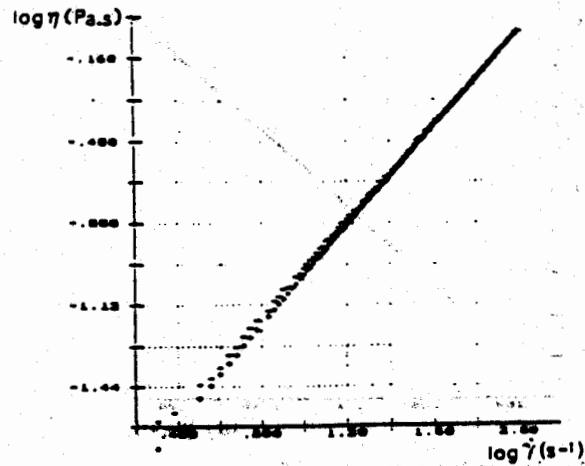


Fig.27 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.50$

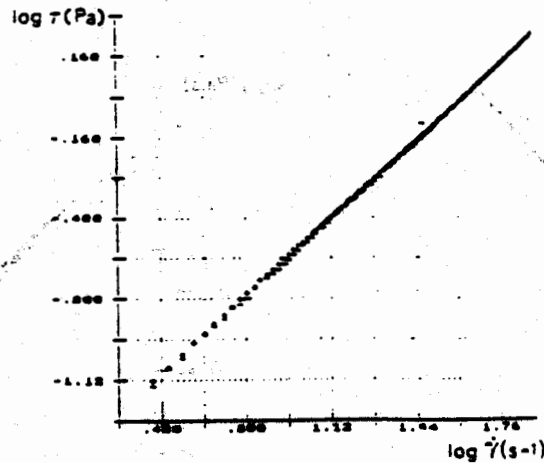


Fig.28 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.75$

$I_{gel} = 4mM/l$

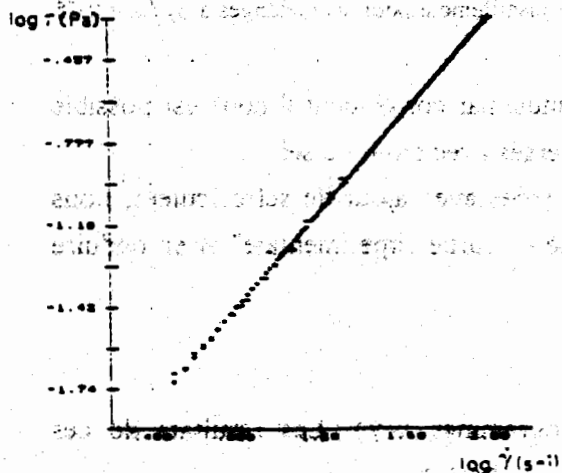


Fig.29 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.25$

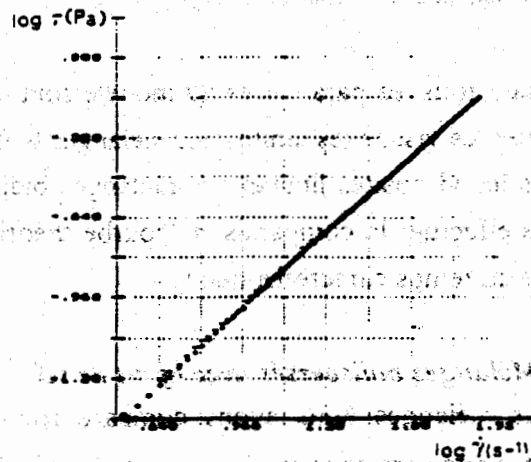


Fig.30 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.50$



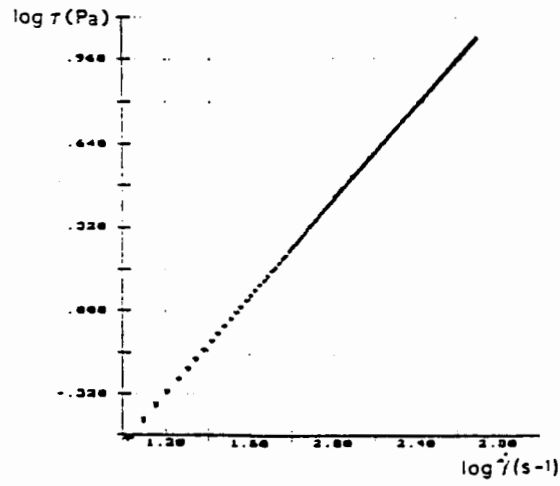


Fig.31 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.75$

$I_{sel} = 8mM/l:$

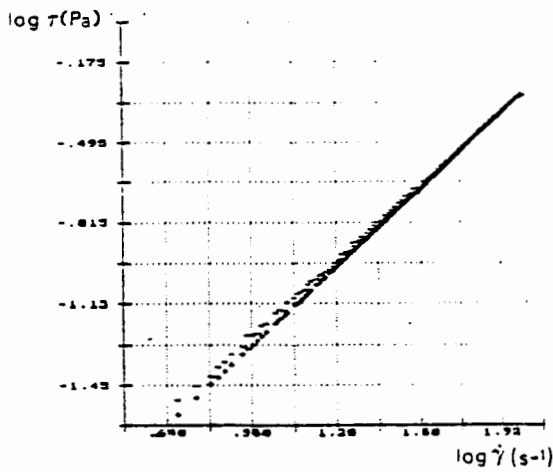


Fig.32 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.25$

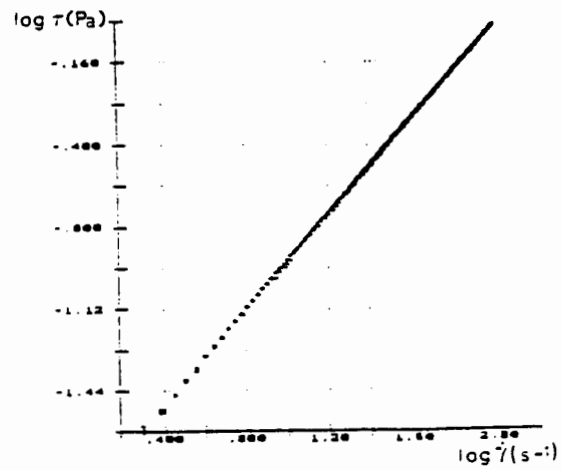


Fig.33 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.50$

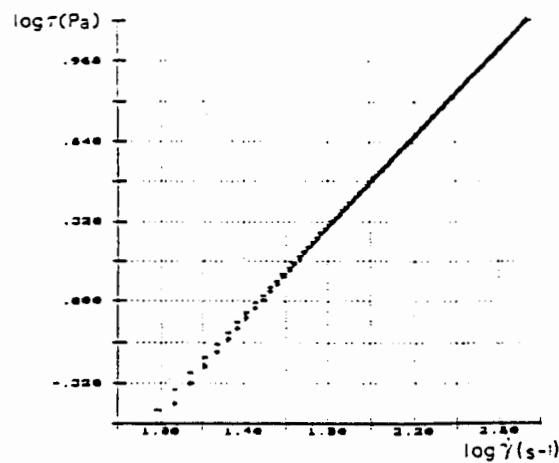


Fig.34 : log de la contrainte en fonction du log du cisaillement pour les mélanges à  $\phi_s/\phi = 0.75$

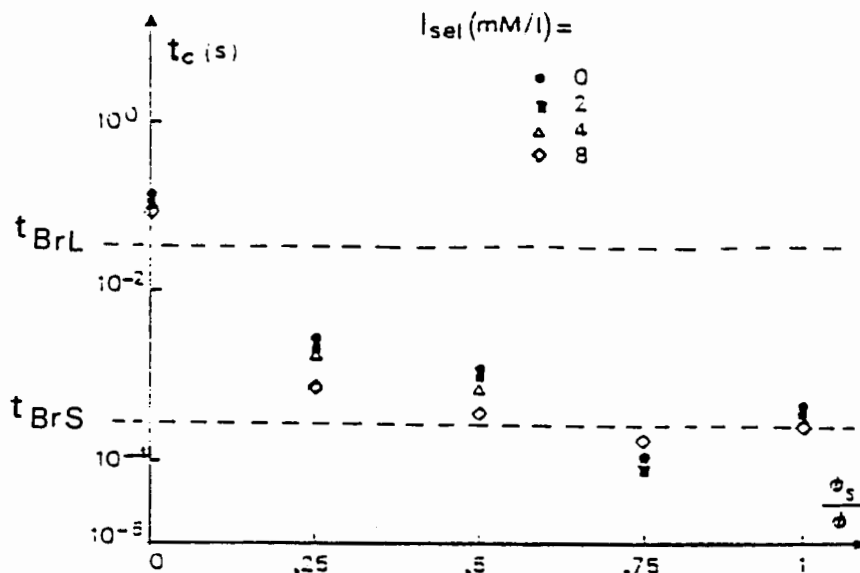


Fig.35 : temps caractéristique en fonction de  $\phi_s/\phi$  pour les mélanges à différents ajouts de sel.

Sur la figure 35 nous avons représenté les variations du temps caractéristique  $t_c$  en fonction de  $\phi_s/\phi$ , ainsi que les valeurs des temps de diffusion brownienne correspondant aux deux latex, nous pouvons constater que les valeurs correspondant aux différents mélanges varient de manière relativement continue entre ces deux temps caractéristiques.

Ces comparaisons "courbe expérimentale - courbe théorique" montrent que ce modèle décrit bien les systèmes avec ajout de sel, sauf le mélange à  $I_{sel} = 8mM/l$  et  $\phi_s/\phi = 0,25$  (25% de Styrène Butadiène), pour lequel nous constatons une différence entre les deux courbes. Différence qui peut être expliquée par l'effet de non linéarité, dans le cas des gros latex, qui se manifeste pour des valeurs de forces ioniques moyennes, et qui doit mettre rapidement en défaut l'approximation de sphères dures.

## CONCLUSION

Dans ce travail, nous avons proposé une tentative de modélisation de la viscosité de systèmes colloïdaux bidispersés. Cette modélisation a été effectuée en 2 étapes :

- a. Extension aux systèmes colloïdaux d'un modèle développé pour les systèmes monodispersés non colloïdaux., en traitant nos suspensions monodispersées comme des suspensions de sphères dures.
- b. Application de ce modèle aux systèmes bidispersés, traités comme des suspensions de sphères dures de tailles différentes.

L'utilisation du modèle monodispersé a permis de caractériser les latex lavés (en présence d'ajouts successifs de sel) par des relations linéaires  $\delta^{-2}(I_{sel})$ , avec  $\delta \sim (a_{eff} - a)$ . Ces relations ont été vérifiées expérimentalement dans un domaine limité de  $I_{sel}$  au dessus d'une certaine valeur  $I_{0sel}$ . Ces relations expérimentales, considérées comme relations caractérisant chaque latex, ont permis de prédire le rayon effectif de chaque particule et par conséquent

les viscosités limites  $\eta_0$  et  $\eta_\infty$ , pour toute force ionique  $I_{sel}$  donnée inférieure à cette limite  $I_{0sel}$ .

Dans le cas des systèmes bidispersés, les fractions volumiques réelles  $\phi$  ont été remplacées par les fractions volumiques effectives  $\phi_{eff}$  de chaque composant, et le packing maximum par la fraction de packing maximum d'un mélange de sphères développée par Ouchiyama et Tanaka, c'est-à-dire en remplaçant là encore le rayon réel par le rayon effectif pour chaque type de particule. Ceci nous a permis de décrire les mélanges de latex lavés en gardant pour chacun des deux latex dans chaque mélange les mêmes relations linéaires  $\delta^{-2}(I_{sel})$  caractérisant les latex purs. Cette description a été faite dans un premier temps pour les mélanges sans ajout sel et a permis de trouver une modélisation cohérente des deux systèmes lavés, en les supposant à la même force ionique initiale.

Une fois déterminés les paramètres décrivant les mélanges sans ajout de sel, la même modélisation a pu être appliquée, avec succès, aux différents mélanges en présence de différents ajouts de sel, avec un seul paramètre ouvert, à savoir le temps caractéristique du modèle structurel non newtonien. Cette dernière confrontation théorie - expérience a permis de "contrôler" le domaine de validité de la modélisation proposée.

\*\*\*\*\*

Ce travail a bénéficié dans un premier temps d'un financement de la société Rhône Poulenc. Sa partie finale a été réalisée dans le cadre de l'ARC CNRS-Industries : "Suspensions Colloïdales Concentrées", et, dans ce cadre, a bénéficié du financement des sociétés suivantes : Rhône Poulenc, Institut Français du Pétrole, Lafarge, Pechiney et Total.

Nous tenons à remercier toutes ces sociétés pour leur collaboration et leur support financier.

\*\*\*\*\*

## NOTATIONS

- $a_L$  : rayon des "grosses" particules
- $a_S$  : rayon des "petites" particules
- $a_{eff}$  : rayon effectif de la particule
- $I_{iL}$  : force ionique "initiale" dans la suspension de "grosses" particules
- $I_{iS}$  : force ionique "initiale" dans la suspension de "petites" particule
- $I_{sel}$  : force ionique apportée par ajout de sel
- $I_{im}$  : force ionique "initiale" dans le mélange bidispersé
- $I_i$  : force ionique "initiale"
- $p$  : paramètre semi-empirique du modèle structurel

- $t_c$  : temps caractéristique interne du système  
 $\eta$  : viscosité dynamique la suspension  
 $\eta_0$  : plateau de viscosité à  $\gamma \rightarrow 0$   
 $\eta_\infty$  : plateau de viscosité à  $\gamma \rightarrow \infty$   
 $\eta_f$  : viscosité du fluide suspensé  
 $\eta_r$  : viscosité relative de la suspension :  $\eta/\eta_f$   
 $\gamma$  : vitesse de cisaillement  
 $\delta$  : (rayon effectif) - (rayon réel de la particule)  
 $\phi$  : fraction volumique réelle  
 $\phi_{eff}$  : fraction volumique effective  
 $\phi_L/\phi$  : fraction en volume des "grosses" particules dans le mélange  
 $\phi_S/\phi$  : fraction en volume des "petites" particules dans le mélange  
 $\phi_p$  : fraction de packing maximum pour une suspension monodispersée  
 $\phi_{MB}$  : fraction de packing maximum pour une suspension bidispersée  
 $\tau$  : contrainte de cisaillement  
 $\lambda_D$  : longueur de DEBYE  
 $\lambda_{Def}$  : longueur de DEBYE effective  
 $\xi$  : facteur de proportionnalité

## REFERENCES

1. Talbi I. et Quemada D., *Les Cahiers de Rhéologie*. Vol XI, numéro 2, 45-57 (1993).
2. Talbi I., *thèse Université Paris VII*. (mars 1993).
3. Russel W.B., in "*Theory of Multiphase Flow*" (Ed. R. E. Meyer), 1-34 (Acad. Press 1983).
4. Quemada D., *Rheol. Acta*. **16**, 82-94 (1977).
5. Quemada D., *Rheol. Acta*. **17**, 632-642 (1978).
6. de Kruif C.G., van Iersel E.M.F., Vrij A. et Russel W.B., *J. Chem. Phys.* **83** (89), 4717-4725 (1985).
7. van der Werff J.C. et de Kruif C.G., *J. Rheol.* **33** (3), 421-454 (1989).
8. Andrew D., Jones R., Leary B. et Boger D.V., *J. Colloid Interface Sci.* **147** (2), 479-495 (1991).
9. Spalla O. et Belloni L., *J. Chem. Phys.* **95** (10), 7689-7687 (1991).
10. Groot R.D., *J. Chem. Phys.* **95** (12), 9191-9203 (1991).
11. Ouchiyama N. et Tanaka T., *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **23** (4), 490-493 (1984).