

Septième édition des Journées scientifiques  
du Regroupement francophone pour la recherche et la formation sur le béton  
(RF)<sup>2</sup>B

---

Toulouse, France  
19-20 juin 2006

## **Apport de la granulométrie laser dans la caractérisation physique des fillers calcaires**

F.Michel, L. Courard

GEMME - Matériaux de Construction, Département de Géoressources, Géotechnologies et Matériaux de Construction, Université de Liège, Belgique

**RÉSUMÉ** : On assiste actuellement en Belgique à une baisse importante de la production des matériaux habituellement employés comme additions dans les composites à matrice cimentaire (cendres volantes, laitier de haut fourneau). Pour faire face à ce problème, un vaste programme de recherche a été mis sur pied dans le but d'évaluer le potentiel de valorisation de fillers calcaires, de production wallonne, dans ce secteur.

Ce papier traite des techniques utilisées pour caractériser de manière physique les fillers calcaires. Une étude paramétrique a permis de définir les conditions optimales de mesure de leur granulométrie par diffraction laser. Les résultats ont été comparés à ceux obtenus par la technique plus classique de tamisage en voie humide. La *surface spécifique* des poudres a également été mesurée par adsorption d'azote (méthode BET), par perméabilité (Blaine) et calculée à partir des résultats de la diffraction, via le diamètre de Sauter.

### **1. INTRODUCTION**

Les additions utilisées actuellement en Belgique sont les cendres volantes, résidus de la combustion des charbons pour la production d'électricité et le laitier de haut-fourneau : elles entrent dans la fabrication des ciments de type CEM II et CEM III. La diminution de la production de cendres volantes prévue par le Plan Wallon des Déchets et la fermeture des hauts-fourneaux ont conduit les autorités à considérer la potentialité de nouveaux produits. Parmi ceux-ci, les fillers calcaires, pourraient constituer une solution de choix au vu de la situation tant économique que géographique de la Région Wallonne.

Les fillers calcaires sont des produits secs, finement divisés, issus de la taille, du sciage ou du travail de la roche naturelle calcaire dans l'industrie de la chaux, des granulats et des pierres ornementales. Ils se présentent sous forme de poudres non abrasives, principalement constituées de cristaux rhomboédriques de calcite ( $\text{CaCO}_3$ ), de dolomie ( $(\text{Ca},\text{Mg})_2\text{CO}_3$ ) et de quartz ( $\text{SiO}_2$ ). Quelques carbonates tels que la sidérite ( $\text{FeCO}_3$ ), l'ankérite ( $\text{Ca}_2\text{MgFe}(\text{CO}_3)_4$ ) et la magnésite ( $\text{Mg}_2\text{CO}_3$ ) sont communément associés aux gisements, en tant que composants mineurs. La dimension maximale des grains, déterminée conformément à la norme EN933-10 (2002) doit être inférieure à 2 mm. Le passant au tamis de 63  $\mu\text{m}$  doit pour sa part être supérieur à 70 %.

Un vaste programme de recherche a été mis sur pied dans le but d'évaluer le potentiel de valorisation de fillers calcaires de production régionale en tant qu'additions dans les matériaux à matrice cimentaire. Ce document traite du volet physique de leur caractérisation.

La caractérisation physique des fillers est une étape indispensable à l'étude de leur effet sur les propriétés rhéologiques et mécaniques des mortiers et des bétons dans lesquels ils sont utilisés comme addition. Cette caractérisation concerne principalement les dimensions (granulométrie), la surface spécifique et la forme : seuls les deux premiers aspects seront abordés ici.

## 2. MATÉRIAUX ETUDIÉS

L'étude expérimentale porte sur 17 fillers calcaires collectés sur l'ensemble du territoire wallon. Parmi ces produits, on distingue :

- 8 fillers humides provenant de 6 sites d'extraction : 4 fillers émanent de la découpe et du sciage de roches ornementales (boue de sciage) et 4 autres du broyage/lavage en voie humide de granulats,
- 9 fillers secs provenant de 5 sites d'extraction : 4 sont générés lors d'un procédé de broyage/concassage et 3 sont issus respectivement du séchage/criblage, séchage/dépoussiérage dans l'industrie des granulats et de la chaux.

Tableau 1 : Mode de production et secteur dont sont issus les fillers réceptionnés.

Type de filler	Mode de production	Secteur	Echantillons
Humides	sciage	Roches ornementales	M1091 A et B M1100, M1116
	broyage	Granulats	M1091 A et B M1117, M1155
Secs	concassage/broyage	Chaux	M1127 A à D M1144 M1147
		Granulats	M1144, M1147
	séchage/dépoussiérage	Granulats	M1143
	séchage/criblage		M1087
	concassage/criblage		M1193

Les 8 fillers humides ont été séchés en étuve ventilée à 80 °C puis broyés au moyen d'un broyeur à boulets intermittent de type ALC 65 ou Denver (lorsque la quantité disponible était inférieure à 10 kg), ceci afin de tendre vers la granulométrie de départ des fillers. La même procédure a été adoptée pour tous les fillers humides: la durée de broyage est augmentée de manière séquentielle avec contrôle du refus à 75 µm à l'aide d'une tamiseuse Alpine à balayage d'air. Les fillers humides ainsi traités et les fillers secs ont ensuite été échantillonnés à l'aide de diviseurs à riffle de façon à disposer des sous-lots représentatifs d'approximativement 3 kg.

## 3. TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION

La distribution granulométrique des fillers calcaires a été déterminée par granulométrie laser et par tamisage en voie humide. La surface spécifique a été mesurée par perméabilimétrie et par adsorption d'azote.

### 3.1 Le tamisage en voie humide

Le tamisage est l'une des plus anciennes méthodes d'analyse granulométrique et aussi l'une des plus largement utilisées lorsqu'il s'agit d'analyser la taille de particules supérieures à 45 µm : c'est en effet une technique peu coûteuse. La technique consiste à diviser en fractions, à l'aide d'une colonne de tamis, la matière ou une partie adéquate de celle-ci constituant un échantillon parfaitement représentatif. La séparation idéale n'est cependant jamais réalisée puisque :

- les ouvertures de tamis ne sont pas égales mais sont distribuées autour d'une moyenne,
- la forme des mailles de tamis (carrées ou rondes) influence les distributions granulométriques mesurées, à l'exception du cas où toutes les particules sont parfaitement sphériques,
- la morphologie des grains conditionne la séparation,
- l'opération de tamisage est limitée dans le temps.

Le tamisage ne convient dès lors pas lorsque les particules présentent une forme lamellaire ou fibreuse. Il ne convient pas non plus lorsque la structure du matériau granulaire est hétérogène (masses volumiques différentes au sein d'un même produit, présence d'aspérités).

### 3.2 La granulométrie par diffraction laser

La granulométrie par diffusion laser est une technique de mesure indirecte couramment utilisée pour déterminer la distribution de taille des matériaux granulaires pulvérulents. Le principe de la méthode est le suivant :

- l'unité optique du granulomètre enregistre l'image de la diffusion (diffraction, réflexion, réfraction) d'un rayonnement monochromatique par une suspension de particules (Figure 1),
- des images de diffusion sont calculées à partir d'un modèle de diffusion, en fonction de distributions granulométriques théoriques,
- les images calculées et l'image mesurée sont ajustées par la méthode des moindres carrés.

Les logiciels commerciaux pour granulomètre intègrent généralement deux modèles mathématiques. Le modèle le plus complet est basé sur la théorie de la diffusion de Mie. Il prend en considération l'ensemble des phénomènes optiques liés à la diffusion des particules (diffraction, réflexion, réfraction). Le calcul de l'image de diffusion dépendra dans ce cas non seulement de la distribution granulométrique théorique considérée, mais également de la nature du matériau diffusant, par l'intermédiaire de ses propriétés optiques :

$$m = n - ik \quad (1)$$

Avec  $m$  l'indice de réfraction complexe  
 $n$  la partie réelle de l'indice de réfraction  
 $k$  la partie complexe de l'indice de réfraction, appelée indice d'absorption

L'approximation de Fraunhofer implique par contre des simplifications importantes de la théorie de Mie. Les particules sont considérées par l'algorithme comme des disques plats et opaques : seule la diffraction est prise en compte et la connaissance de la nature du matériau et de ses propriétés optiques n'est pas nécessaire.

Van de Hulst (1957) quantifie le domaine de validité du modèle de Fraunhofer à partir d'un paramètre appelé variation de phase  $p$ , fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  du rayon incident, du diamètre  $d$  de la particule, et de l'écart entre les indices de réfraction  $n_s$  du matériau et  $n_f$  du fluide porteur de la suspension. Dans le cas des matériaux courants du génie civil ( $n_s$  compris entre 1,5 et 1,7) en suspension dans l'eau, Cyr (1999) calcule que la limite de validité de l'approximation de Fraunhofer est atteinte pour des particules de diamètre compris entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Dès lors, l'emploi du modèle de Mie se justifie lorsque l'on désire caractériser la distribution de taille d'un matériau constitué de particules microniques.

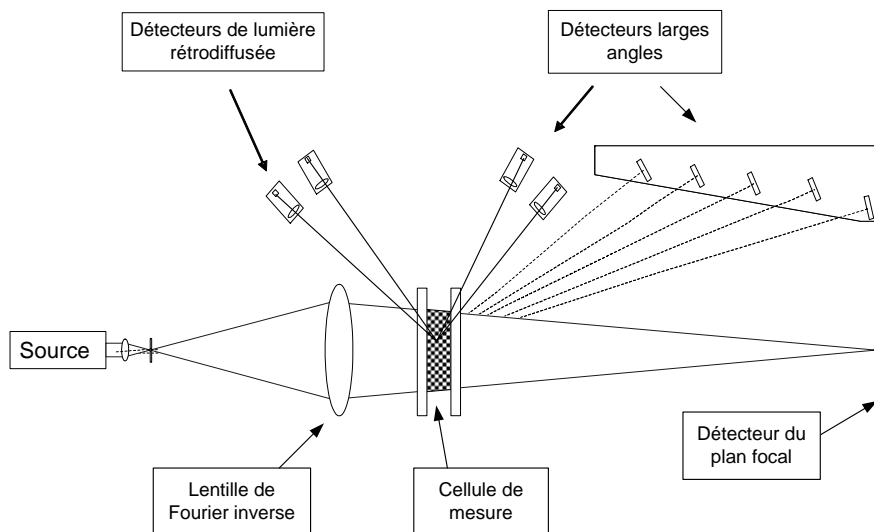


Figure 1 : Schéma simplifié de l'unité optique d'un granulomètre laser.

### 3.3 La surface spécifique par perméabilimétrie

La surface spécifique  $S_s$  est un paramètre souvent utilisé pour déterminer la finesse et "l'activité" des ciments et des additions. Dans le cas des ciments et des additions calcaires, la surface spécifique est déterminée sur base de la théorie de Kozeny-Carman, en mesurant la perméabilité sous charge variable d'un lit de poudre compacté (Figure 2). La relation entre la surface spécifique  $S_{s,koz}$  et le temps de passage d'un volume d'air connu dans l'empilement granulaire est donnée dans la norme EN 196-6 : 1996 :

$$S_{s,koz} = K_{app} \frac{\varepsilon^{3/2}}{\rho_s (1 - \varepsilon)} \frac{t^{1/2}}{(0,1\eta)^{1/2}} \quad (2)$$

avec  $K_{app}$  la constante de l'appareil [ $g^{1/2} \cdot cm^{3/2} \cdot s^{-1}$ ]  
 $\varepsilon$  la porosité du lit de poudre compacté  
 $\eta$  la viscosité de l'air [Pa.s]  
 $\rho_s$  la densité absolue du matériau [ $g \cdot cm^{-3}$ ]  
 $t$  le temps de passage du liquide manométrique [s]

Les paramètres qui conditionnent la constante  $K_{app}$  peuvent être déterminés en intégrant, dans l'équation générale de Kozeny-Carman dans la relation (2). Si de plus, on prend en considération la compressibilité de l'air dans le calcul de la perméabilité (Yssorche et al., 1995), on obtient la relation suivante :

$$K_{app} = 10^{-2} \sqrt{\frac{0,1\rho_L D_{cell}}{k C_{air} D_{tube} L_{éch}}} \quad (3)$$

avec  $\rho_l$  la densité du liquide manométrique [ $g \cdot cm^{-3}$ ]  
 $D_{cell}$  le diamètre de la cellule de mesure [cm]  
 $D_{tube}$  le diamètre du tube en U [cm]  
 $k$  la constante adimensionnelle de Kozeny  
 $L_{éch}$  l'épaisseur du lit de poudre. [cm]  
 $C_{air}$  le terme qui prend en compte la compressibilité de l'air entre les deux pressions régnant de part et d'autre de l'échantillon. Il dépend de la pression atmosphérique et des caractéristiques géométriques de l'appareil Blaine.

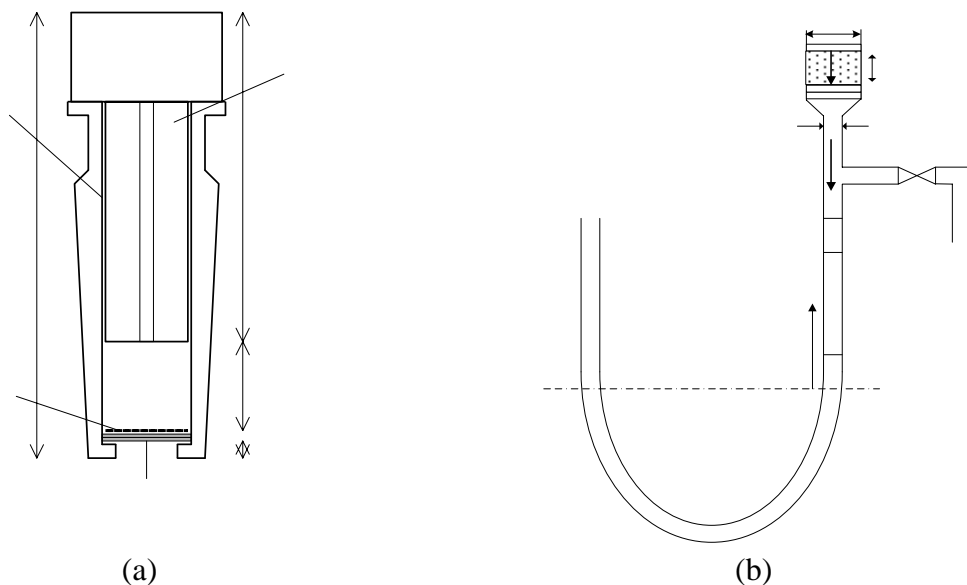


Figure 2 : Cellule de mesure (a) et tube manométrique (b) de l'appareil Blaine.

L'équation 3 permet de constater que la constante de l'appareil  $K_{app}$  doit être utilisée avec prudence puisqu'elle n'est valide que dans les conditions où elle a été déterminée. En réalité, indépendamment des caractéristiques dimensionnelles du perméamètre, la seule constante qui intervient véritablement dans le calcul de  $K_{app}$  est la constante de Kozeny  $k$ . Pour limiter les sources d'erreurs liées à l'utilisation de cette constante, il paraît plus approprié de déterminer expérimentalement la valeur de  $k$ . Pour chaque nouvel essai, l'épaisseur du lit de poudre compacté  $L_{éch}$  et le terme  $C_{air}$  seront calculés.

### 3.4 La surface spécifique par adsorption d'azote

L'adsorption physique d'un gaz par un solide est en général destinée à fournir des informations sur la surface spécifique et sur la structure poreuse du solide. Pour un système particulier et à une température donnée, l'isotherme d'adsorption est l'expression de la quantité adsorbée en fonction de la pression (Figure 3).

$$v = f(P/P_0)_{T, gaz, solide} \quad (4)$$

Bien que de nombreuses méthodes aient été développées pour rendre compte de la forme des isothermes, c'est la théorie de Brunauer, Emmett et Teller (1940) qui reste la plus utilisée. Lorsque le nombre de couches moléculaires pouvant s'adsorber n'est pas limité (Baroghel, 1994) l'équation BET des isothermes d'adsorption peut s'écrire :

$$\frac{P}{v(P - P_0)} = \frac{c - 1}{v_m c} \frac{P}{P_0} + \frac{1}{v_m c} \quad (5)$$

Avec  $v$  le volume de vapeur adsorbé par gramme de solide [ $cm^3/g$ ] sous une pression  $P$ ,  
 $P_0$  la pression atmosphérique,  
 $v_n$  le volume de vapeur nécessaire pour recouvrir entièrement la surface du solide d'une couche monomoléculaire d'adsorbat par unité de masse d'adsorbant [ $cm^3/g$  d'adsorbant],  
 $c$  une constante caractéristique du système gaz – solide étudié.

D'après l'équation (5), les points obtenus expérimentalement s'alignent selon une droite dans le graphique de coordonnées  $(\frac{P}{P_0}, \frac{P}{v(P - P_0)})$ , encore appelé diagramme B.E.T. (Figure 4). La pente  $\alpha$  et l'ordonnée  $\beta$  à l'origine de la régression linéaire des points expérimentaux permettent alors

calculer le volume d'une monocouche  $v_m$  et la constante  $c$ . A partir de  $v_m$ , il devient possible de calculer la surface spécifique  $S_{S,BET}$  du solide ( Eq. 6).

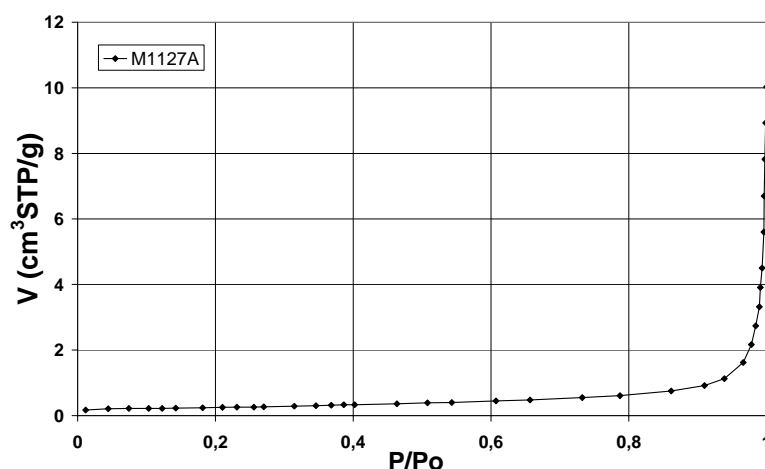


Figure 3 : Isotherme d'adsorption de l'échantillon de filler calcaire M1127A.

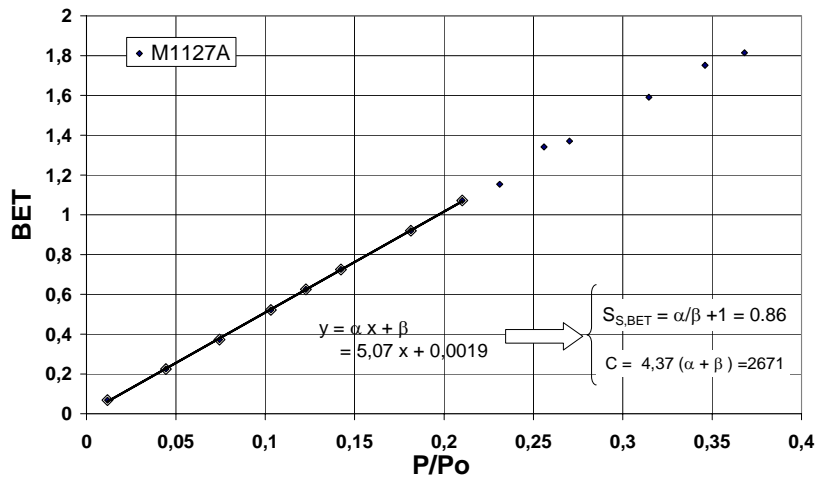


Figure 4 : Diagramme B.E.T. de l'échantillon de filler calcaire M1127A.

$$S_{S,BET} = \sigma \frac{v_m \cdot N}{V} \quad (6)$$

Avec  $\sigma$  la surface occupée par une monocouche [ $\text{\AA}^2$ ]  
 $N$  le nombre d'Avogadro [ $\text{mole}^{-1}$ ]  
 $V_m$  le volume occupé par une mole de vapeur [ $\text{cm}^3/\text{mole}$ ]

### 3 RESULTATS ET DISCUSSIONS

#### 3.1 Présentation des résultats

Le tableau 2 reprend les principaux résultats de la caractérisation physique des fillers calcaires étudiés. La granulométrie par tamisage est effectuée sous eau, sur des tamis de 45, 63 et 125  $\mu\text{m}$ . Les valeurs obtenues indiquent que les produits sont caractérisés, dans la majorité des cas, par une grande finesse à l'exception de trois échantillons M1143, M1147 et M1193 qui ne sont pas des fillers au sens de la norme EN 12620 (passant à 63  $\mu\text{m}$  inférieur à 70 %). On peut également observer que les fillers humides sont, pour la plupart, plus fins que les fillers secs, en particulier les échantillons issus de l'industrie des pierres ornementales (opération de sciage).

Les diamètres  $d_{10}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{90}$ <sup>1</sup> sont déterminés au moyen du granulomètre laser Mastersizer 2000 (Malvern Instrument), en condition humide. La vitesse de circulation de la suspension dans le circuit ainsi que le temps d'ultra-sons sont paramétrés de manière à optimiser la dispersion des particules. La concentration solide de la suspension est limitée pour éviter les erreurs de mesure induites par l'apparition des phénomènes de diffusion multiple. En raison de l'hétérogénéité minéralogique des matériaux de l'étude et du caractère biréfringent de la calcite, le calcul d'un indice de réfraction moyen semble fortement aléatoire. Les distributions granulométriques ont par conséquent été calculées en utilisant l'approximation de Fraunhofer. Les faibles valeurs des diamètres médians  $d_{50}$  obtenus (inférieure à 20  $\mu\text{m}$  pour 15 des 17 fillers) laisse présager que des erreurs de mesure importantes pourraient toucher la fraction fine de la courbe granulométrique. Cette remarque permettrait alors d'expliquer la faible dispersion des  $d_{10}$  mesurés (tous compris entre 1 et 2  $\mu\text{m}$  exceptés les trois échantillons de granulométrie grossière).

Dans le cas de la mesure de la surface spécifique par perméabilimétrie, la constante de Kozeny  $k$  a préalablement été estimée au moyen d'un ciment Portland de référence, dont les caractéristiques

<sup>1</sup> Le diamètre  $d_x$  est défini comme le diamètre tel que  $x$  % en volume de la population est constitué de particules de taille inférieure.

physiques sont certifiées par la National Institute of Standards and Technology (NIST). Les caractéristiques (épaisseur  $L_{ech}$  et porosité  $\varepsilon$ ) de l'empilement granulaire compacté constitutif de la prise d'essai sont calculées avant chaque mesure. On constate que les fillers calcaires sont caractérisés par des surface spécifique  $S_{S,koz}$  comprises entre 2000 et 10000  $cm^2/g$ . Les fillers humides sont généralement caractérisés par une surface spécifique plus grande que les fillers secs ce qui abonde dans le sens des résultats obtenus par tamisage et par granulométrie laser. La même interprétation peut être réalisée à l'analyse des résultats obtenus par adsorption d'azote.

Tableau 2 : Analyse physiques des fillers calcaires de l'étude.

	Densité [g/cm <sup>3</sup> ]	Tamisage			Granulométrie laser			Surface spécifique	
		< 45 $\mu m$ [%]	< 63 $\mu m$ [%]	< 125 $\mu m$ [%]	d <sub>10</sub> [ $\mu m$ ]	d <sub>50</sub> [ $\mu m$ ]	d <sub>90</sub> [ $\mu m$ ]	S <sub>S,koz</sub> [cm <sup>2</sup> /g]	S <sub>S,BET</sub> [m <sup>2</sup> /g]
M1091A	2,7154	94,47	97,57	99,54	1,06	4,87	4,83	9942	4,42
M1091B	2,7006	91,13	95,27	99,12	1,14	6,11	1,17	9045	4,36
M1094A	2,7196	89,67	95,19	99,89	1,42	8,61	1,74	6815	5,85
M1094B	2,7368	91,45	96,11	99,67	1,33	7,70	1,94	6971	6,68
M1100	2,7378	94,15	97,24	99,26	1,17	6,23	6,47	7941	3,95
M1116	2,7057	94,89	97,62	99,60	1,12	4,50	1,33	9304	4,29
M1117	2,7711	80,36	89,94	99,91	1,71	15,16	0,58	4106	4,05
M1155	2,8126	79,41	89,14	99,40	1,56	13,38	1,22	4597	4,57
M1087	2,6946	81,50	87,99	96,00	1,35	12,08	4,36	5480	5,46
M1127A	2,7167	78,49	87,45	98,86	2,01	15,50	2,86	3301	0,86
M1127B	2,7205	80,91	87,81	97,39	1,35	8,87	3,54	5285	1
M1127C	2,7022	70,28	78,92	94,03	1,78	18,47	2,55	3597	0,88
M1127D	2,7110	80,56	89,77	99,63	1,91	14,47	1,37	3548	0,72
M1143	2,7178	64,86	72,41	89,46	1,63	18,83	2,75	3830	1,28
M1144	2,7399	81,44	89,87	99,75	1,47	12,34	1,42	4730	1,42
M1147	2,8489	57,82	69,72	90,70	2,84	35,48	0,99	2135	1,13
M1193	2,7101	53,19	62,17	82,17	2,90	39,07	2,67	3034	2,81

### 3.2 Comparaison de la granularité mesurée par tamisage et par diffusion laser

La figure 5 illustre la relation entre les passants à 45  $\mu m$  déterminés par tamisage humide et par granulométrie laser. L'abscisse à l'origine de la droite de corrélation est positive et sa pente est inférieure à l'unité : le granulomètre laser "voit" donc une population plus importante de fines particules que celle observée lors d'une opération de tamisage. Deux phénomènes peuvent rendre compte de cette observation :

- la forme des particules : le tamisage d'un échantillon composé de particules non sphériques conduit à une dispersion plus importante des fractions résultantes en raison des différentes orientations que peuvent prendre les particules sur un tamis; de plus, les calculs en granulométrie laser sont réalisés pour des particules sphériques, alors que les grains des fillers présentent plutôt un aspect allongé (spécialement dans la tranche 10 -15  $\mu m$ ) ;
- la densité des particules : les courbes ne pourraient en aucun cas être identiques puisque toutes les particules d'un même matériau n'ont pas la même densité.

Les mêmes observations peuvent être faites à 63 et 125  $\mu m$ . On peut également observer que les écarts entre les passants obtenus par les deux méthodes sont plus importants lorsque le filler analysé est constitué de grosses particules. Cet effet peut être attribué à l'erreur d'échantillonnage. La masse introduite dans la cellule de mesure du granulomètre est très faible (pour limiter la diffusion multiple) et similaire pour tous les fillers. La masse représentative minimale étant fonction de la taille des plus grosses particules de l'échantillon (Gy,1975), l'erreur systématique d'échantillonnage sera d'autant plus grande que le diamètre maximal des particules sera grand.

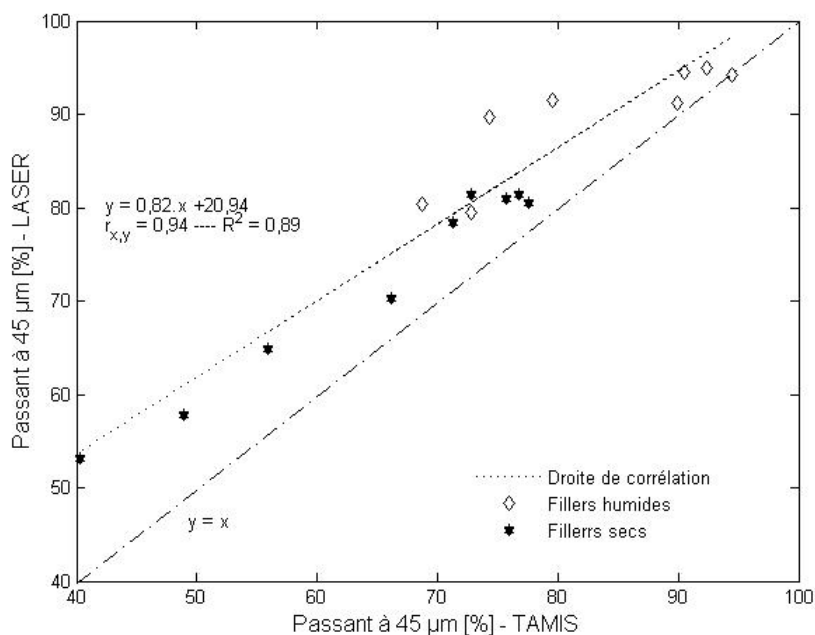


Figure 5 : Comparaison des passants à 45 µm mesurés par tamisage et par granulométrie laser.

### 3.3 Comparaison des surfaces spécifiques mesurées par perméabilimétrie et par adsorption d'azote

La figure 6 reprend les résultats des mesures de surface spécifique réalisées par perméabilimétrie  $S_{S,koz}$  et par adsorption d'azote  $S_{s,BET}$ . On peut observer que :

- les surfaces spécifiques  $S_{s,BET}$  obtenues par adsorption d'azote sont largement supérieures à celles déduites de la mesure de la perméabilité  $S_{S,koz}$ . Ces fillers n'étant pas poreux, on peut considérer que cette tendance est principalement induite par la morphologie et la "rugosité" de surface des grains ;
- les fillers humides sont caractérisés, de manière générale, par des surfaces spécifiques  $S_{s,BET}$  (de l'ordre de  $4 \text{ m}^2/\text{g}$ ) supérieures à celles des fillers secs ( $\pm 1 \text{ m}^2/\text{g}$ ) ;
- deux fillers secs (M1087 et M1193) et deux fillers humides (M1094 A et MA094 B) développent des surface spécifiques  $S_{s,BET}$  beaucoup plus importantes que leurs homologues secs et humides, tendance qui n'est pas observée par perméabilité sous charge variable.

La mesure des teneurs en  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , révèle que les quatre produits susmentionnés comportent une quantité importante d'argile, comparativement aux autres produits. Ces particules d'argile, très fines, augmentent considérablement la surface totale développée par ces matériaux, ce qui explique les résultats observés au B.E.T. Mais pourquoi, dès lors, n'observons-nous pas cette même tendance par perméabilimétrie ? Une explication plausible est de penser que ces très fines particules s'adsorbent à la surface de particules plus grosses (adsorption solide-solide) en raison des phénomènes de surface qui prédominent à cette échelle. Ces particules ne contribuent dès lors pas à une chute de la perméabilité de l'empilement granulaire par effet "filler". Cet accroissement de surface ne peut être par conséquent pas être décelé par mesure de la perméabilité.



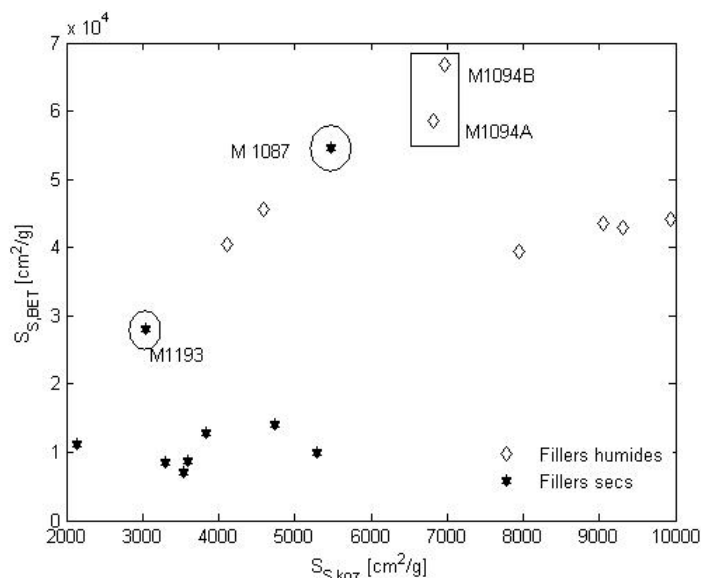


Fig.6 : Comparaison des mesures de surface spécifique obtenues par perméabilimétrie  $S_{s,koz}$  et par adsorption d'azote  $S_{s,BET}$ .

### 3.4 Comparaison des surfaces spécifiques mesurées par perméabilimétrie et par diffraction laser

Une troisième mesure de la surface spécifique, appelée surface spécifique géométrique  $S_{s,laser}$ , peut être déduite de la courbe granulométrique en considérant que :

- la densité est homogène et indépendante de la taille de la particule,
- les particules sont sphériques,
- l'étendue granulaire du matériau est petite.

$$S_{s,geom} = \frac{surface}{volume} = \frac{6}{\rho_s d} \quad (7)$$

avec  $d$  le diamètre moyen de la distribution de taille  
 $\rho_s$  la densité absolue du matériau granulaire

Le diamètre moyen considéré est le diamètre de Sauter défini par la relation suivante :

$$d = d[3,2] = \frac{\sum_{i=1}^k n_i d_i^3}{\sum_{i=1}^k n_i d_i^2} \quad (7)$$

avec  $n_i$  le nombre de particule de la  $i$ ème classe granulométrique  
 $d_i$  le diamètre moyen de la  $i$ ème classe granulométrique  
 $k$  le nombre de classes granulométriques

Ce diamètre permet de comparer les effets de volume (inertiel) aux effets de surface. Physiquement, il représente le diamètre de la particule qui a le même rapport surface/volume que celui développé par l'ensemble des particules de la distribution. La figure 7 compare les surfaces spécifiques mesurées par perméabilimétrie et par diffraction laser. On observe que les résultats des deux mesures concordent assez bien lorsque la finesse des produits n'est pas trop grande. Par contre, les résultats divergent de manière croissante au fur et à mesure que la finesse du matériau augmente (pour  $S_{s,koz} > 5500 \text{ cm}^2/\text{g}$ ). On peut attribuer ce comportement à l'utilisation du modèle de Fraunhofer dont la validité diminue au fur et à mesure que la taille moyenne des particules diminue.

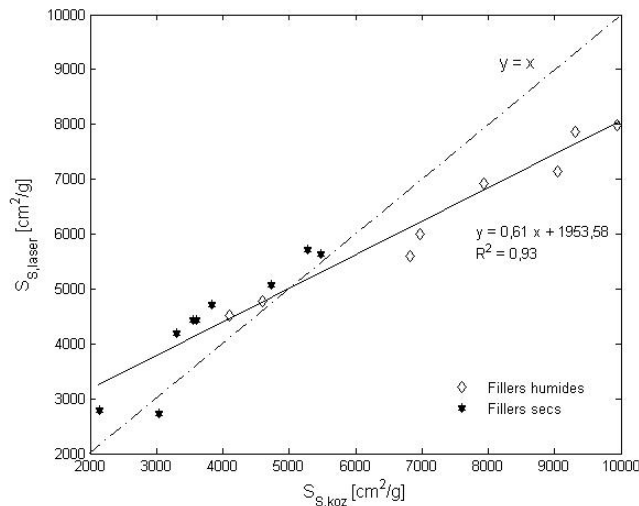


Fig. 7 : Comparaison des mesures de surface spécifique obtenues par perméabilimétrie  $S_{S,koz}$  et mesurée à partir de la distribution granulométrique.

#### 4 CONCLUSIONS

Les erreurs les plus importantes qui sont commises au cours une analyse granulométrique laser affectent la population des fines particules. Pour minimiser ces erreurs, une connaissance préalable de propriétés optiques du matériau est nécessaire. Dans le cas d'un matériau hétérogène, le problème du choix des propriétés optiques se pose. Une solution rigoureuse n'existe pas et il est dès lors difficile de déterminer avec un haut niveau de confiance la granularité du matériau. Le problème de la morphologie des particules intervient également puisque la relation entre une image de diffusion et une distribution granulométrique n'est mathématiquement établie que si les particules sont sphériques.

La comparaison des résultats de l'analyse de la granulométrie par diffraction laser (c'est-à-dire par application du modèle de Fraunhofer) avec d'autres techniques de caractérisation confirme ces informations dans le cas des fillers calcaires. La corrélation des résultats est satisfaisante lorsqu'il s'agit de techniques de caractérisation telle que le tamisage en voie humide ou la surface spécifique Blaine. Par contre, contrairement à l'analyse BET, la granulométrie ne permet pas de distinguer sensiblement les fillers calcaires argileux.

#### 5 REMERCIEMENTS

Cette étude a été rendue possible grâce à la participation financière du Gouvernement de la Région Wallonne. Les auteurs souhaitent également remercier leurs partenaires dans ce projet, le Centre Scientifique et Technique de la Construction (C.S.T.C.) et le Centre Terre et Pierre (C.T.P.).

#### 6 BIBLIOGRAPHIE

- Baroghel-Bouvy, V. (1994), *Caractérisation des pâtes de ciment et des bétons. Méthodes, analyse, interprétation*, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, Paris (467p)
- Brunauer, S. et al. (1940), Adsorption of gaz in multimolecular layers, *Journal of the American Chemical Society*, 60 : 309-319.
- Cyr, M (1999) *Contribution à la caractérisation des fines minérales et à la compréhension de leur rôle dans le comportement rhéologique des matrices cimentaires*, Université de Sherbrooke (279p)
- Gy P. (1975), *Théorie et pratique de l'échantillonnage des matières morcelées*, Edition P.G., Cannes
- Van der Hulst, H.C. (1957), *Light Scattering by Small Particles*, Wiley, New York, NY USA (176p)
- Yssorche, M.P. et Bigas, J.P. et Ollivier, J.P., (1995), Mesure de la perméabilité à l'air des bétons au moyen d'un perméamètre à charge variable, *Materials and Structures*, 28 :401-405