REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR

ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE DE M'HAMED BOUGUARA

FACULTE DES SIENCE

Département de Chimie

Mémoire fin d'études

Domaine : Science de Matière

Spécialité : physico-chimie des matériaux organiques et composites

THEME

Etude comparative des procédés de modification du bitume routier algérien 40/50 par des déchets polymériques

Présenté Par :

OURARI Linda

DJANATI Sara

Soutenu publiquement Le : 01/06/2017

Devant le jury :

Mr LEKBIR Choukri	**Président**	**UMBB**
M^{r} beddoude karim	**Examinateur**	**UMBB**
Mr AOUDJIT Farid	**Examinateur**	**UMBB**
M^{me} HAMMADOU Souad	**Promotrice**	**UMBB**

Année Universitaire : 2016 /2017

Remerciement

En préambule à ce mémoire nous remerciant ALLAH qui nous aide et nous donne la patience et le courage durant ces langues années d'étude.

Il est difficile de savoir par où commencer quand je considère le nombre de personnes qui m'ont aidé pendant le déroulement de cette thèse. Je voudrais commencer ces remerciements en m'excusant auprès de toutes les personnes que je n'ai pas mentionnées de façon nominative mais qui ont contribué au développement de cette thèse et, de façon significative, à ma vie au cours de ces dernières années.

Je remercie également les membres du jury de thèse

Nous souhaitant adresser nos remerciements les plus sincères aux personnes qui nous ont apporté leur aide et qui ont contribué à l'élaboration de ce mémoire ainsi qu'à la réussite de cette formidable année universitaire.

Ces remerciements vont tout d'abord au corps professoral et administratif de la Faculté des sciences, pour la richesse et la qualité de leur enseignement et qui déploient de grands efforts pour assurer à leurs étudiants une formation actualisée.

Nous tenant à remercier sincèrement Mme hammadou, qui, en tant que Directrice de mémoire, elle est toujours montrée à l'écoute et très disponible tout au long de la réalisation de ce mémoire, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'ils ont bien voulu nous consacrer et sans qui ce mémoire n'aurait jamais vu le jour.

Enfin, nous adressons nos plus sincères remerciements à tous nos proches et amis, qui nous ont toujours encouragés au cours de la réalisation de ce mémoire.

Merci à tous et à toutes.

Dédicace

Je dédié ce mémoire

A mes chers parents ma mère et mon père

Pour leur patience, leur amour, leur soutien et leurs

Encouragement.

A mon mari.

A ma famille.

A mes amies et mes camarades.

Sans oublier tous les professeurs que ce soit du

Primaire, du moyen, du secondaire ou de

L'enseignement supérieur.

OURARI Linda

Je dédie ce travail

A tous les membres de ma famille leurs sacrifices, leurs encouragement, et pour leurs soutien matériel et moral tout au long de ma formation.

A mes amis qui n'ont cessé de m'aider et de me conseiller pour accomplir mon mémoire.

A tous les membres du fiduciaire qui ont fait tous leurs efforts pour m'aider à travailler dans des bonnes conditions.

Et enfin, a tous ceux qui m'ont aidé de prêt ou de loin.

DJANATI Sara

Listes des figures

Figure I-1. Coupe et aspect de surface d'un enrobé de type béton bitumineux semi-grenu 0/14 (BBSG) selon la norme NF EN 13108-1 ou NF P 98-130 [Di Benedetto et Corté 2005]. **2**

Figure I-2 : Structure hypothétique des asphaltènes **5**

Figure I-3 : Séparation chimique des 4 familles de constituants du bitume **7**

Figure I.4 : Représentation du modèle de structure colloïdale des bitumes **8**
Figure I-5 et la **Figure I-6** la structure sol-gel intermédiaire. **8**

Figure I-7 : Evolution de la viscosité et de la composition chimique du bitume au cours de son cycle de vie depuis la phase d'enrobage jusqu'à son évolution dans la chaussée. **9**

Figure I-8 : Classe de comportement du bitume **11**

Figure I.9: Caractéristiques de bitumes algériens 40/50. **19**

Figure I. 10: Evolution des bitumes entre le dépôt et les différentes centrales. **20**

Fig.II.1- Effet de la modification polymère sur la structure colloïdale du bitume : bitume original (haut) et BmP correspondant avec augmentation de la teneur en asphaltènes de la matrice (bas). Dans la réalité, la taille du domaine polymère est typiquement de 10 μm (voir couverture) quand celle des particules d´asphaltènes est de l´ordre de quelques nm. **25**

Figure II.2 : Evolution de la viscosité d'un BmP en fonction de la teneur en polymèr **26**

Figure II.3 : Mélanges bitume/SBS à teneur croissante de polymère (microscopie de fluorescence) **27**

Fig. II.4- Descriptif des microstructures de BmP **28**

Figure II.5 : Observations en microscopie UV des BmP (grossissement *40) **31**

Figure III.1-Descriptif des quelques cas de dégradation en surface **35**
Figure III.2 : organigramme de la démarche globale du travail **38**

Figure III.3 Démarche globale de l'étude expérimentale **40**

Figure III.4 : montage de préparation de matériau volcanisé **41**
Figure III.5 : différentes étapes de préparation du materai vulcanisé **42**

Figure III.6 : schéma de préparation d'un bitume modifie par caoutchouc **43**

Figure III.7: Schéma de préparation d'un bitume modifié par polyéthylène **43**

Figure III.8 : différentes étapes de préparation un mélange plastomère **44**

Figure III.9: différentes étapes de préparation un mélange élastomère **45**

Figure III.10 : spectromètre IFIR de model JASCOIFTR-4100 **46**

Figure III.11 : Pesteuse **47**
figure III.12 : Pastie de KBr **47**

Figure III.13 : Appareille de pénétrabilité **47**

Figure III.14 : Appareille de TBA **48**

Figure III. 15 : Appareille de ductilité **49**

Figure IV.1 : évolution des propriétés des bitumes modifiés par caoutchouc en fonction de taux du matériau vulcanisé (conditions : agitation 1500 rpm ; T =160 C° ; temps 2.5h.) **53**

Figure IV. 2 Influence de la quantité MV sur la modification du bitume **54**

Figure IV. 3: influence du temps d'agitations sur la modification du bitume **55**
(Conditions : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =2.5h.)

Figure IV.4 L'évolution de la pénétrabilité du bitume modifie en fonction du temps **56**

Figure IV.5 : influence de la température sur la modification du bitume **57**
(conditions : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =2.5h.)

Figure IV. 6 : évolution de la pénétrabilité en fonction de température **58**
Condition : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =3h)

Figure IV.7 : influence du taux d'ajout de PE sur la modification du bitume **59**
(conditions : 1500 rpm T=160 C°, temps = 2 h)

Liste des tableaux

Tableau I.1. : Type structuraux des bitumes en fonction de leur composition 9

Tableau I.2 : Définitions des températures : Le système classique définit la température bille-anneau et la pénétrabilité. Le système SHRP définit quant à lui 3 températures 13

Tableau 1-3 : spécifications SHRP reliant les températures du lieu au module complexe du bitume 14

Tableau I.4 : Composition élémentaire du pétrole brut Algérien 15

Tableau I.5 : Caractérisation de pétrole brut algérien par la méthode SARA 15

Tableau I.6 : Composition élémentaire des asphaltènes Algériens 15

Tableau I.7 : Spécifications des bitumes fabriqués par distillation 16

Tableau I.8 : Spécifications des bitumes fabriqués par soufflage. 17

Tableau I.9 : Bitumes purs. Norme européenne EN 12591 18

Tableau I.10 : Températures d'exploitation des bitumes selon le CTT 20

Tableau II.1. Principaux agents modifiants des bitumes 23

Tableau IV.1 : propriétés du bitume 40/50 50

Tableau IV. 2 : Propriétés de polyéthylène 51

Tableau IV.3 : Propriétés des pneus en caoutchouc 51

Tableau IV.4 : propriété huile d'olive 52

Tableau IV.5 : Compostions élémentaire des échantillons 52

Tableau IV.6 : Compostions élémentaire des liants bitumineux modifiés 53

Tableau IV.7 : Propriétés du bitume modifié par caoutchouc à différents pourcentage de matériau vulcanisé 53

Tableau IV. 8: Influence de la quantité MV sur la modification du bitume 54

Tableau IV.9 : influence du temps d'agitations sur la modification du bitume 55

Tableau IV. 10 : L'évolution de la pénétrabilité du bitume modifie en fonction du temps 56

Tableau IV.11 : influence de la température sur la modification du bitume 57

Tableau IV. 12 : évolution de la pénétrabilité en fonction de température 58

Tableau IV.13 : influence du taux d'ajout de PE sur la modification du bitume 59

Tableau. IV.14 Le tableau suivant présente les caractéristiques du bitume modifié par polyéthylène 60

Abréviations Utilisées

AFNOR	Association Française de NORmalisation
AIPCR	Assiciation Internationale Permanante des Congrés de la Route
ASTM	American Society for Testing and Material
BP	Bitume Pur
BmP	Bitume modifié par Plymère
CCM	Concentration Critique Micellaire
CERTU	Centre d'Etude sur les Réseaux, les Transports, l'Urbanisme
CPA	Coefficient de Polissage Accéléré
DLCA	Diffusion Limited Cluster Agregation
EME	Enrobés à Module Elévé
EN	European Norme
ESU	Enduits Superficiels d'Usures
EVA	Ethylène Acétzte de Vinyle
HLB	Hydrophilic Lipophilic Balance
LCPC	Laboratoire Central des Ponts et Chaussées
LSP	Laboratoire de Synthèse Pétrochimique
MV	Matériau Vulcanisé
NF	Norme Française
NF EN	Version Française de la Norme Européenne
PAV	Pressure Aging Vessel
PE	PolyEthylène
PEBD	PolyEthylène Basse Densité
PEHD	PolyEthylène Haute Densité
PIB	PolyIsoButylène
PSV	Polished Stone Value
RCAT	Rotating Cylinder Againg Test
RLCA	Reaction Limited Cluster Agregation
RTFOT	Rolling Tblim Film Oven Test
SARA	Saturés-Aromatiques-Résines-Asphaltènes
SIS	Styrène-Isoprène-Styrène
SBS	Styrène-Butadiène-Styrène
SMA	Stone Mastic Asphalt
TBA	Température de Bille et Anneau

Sommaire page

Dédicace……
Remerciement……..
Liste des figure……..……...
Liste des tableau……...
Liste d'abréviation …….
Introduction générale ……

Chapitre I : bitume et enrobée bitumineux

I.1 Introduction 1

I.2 Définition de l'enrobé bitumineux 2

I.3 Généralités sur le bitume 2

I.3.1 Structure chimique 4

I.3.1.1 Les asphaltènes 4

I.3.1.2 Structure chimique des maltènes 6

I.3.2 Caractérisation et séparation des différentes familles 6

I.3.3 Structure colloïdale 7

I.3.4 Influence de la structure du bitume sur la rhéologie 8

I.3.5 Vieillissement du bitume 9

I.4 –Propriétés des bitumes 10

I.4.1 Réactivité 10

I.4.2 Adhésivité 10

I.4.3 Cohésion 10

I.4.4 Viscoélasticité 10

I.5 Obtention du bitume 11

I.5.1 Obtention par Distillation 12

I.5.3 Obtention par soufflage 12

I.6 Caractérisation du bitume 13

I.7- Caractéristiques et spécifications générales des bitumes algériens 15

1. 7. 1 Spécifications des bitumes fabriqués par distillation (-1 < IP =+1) 16

1. 7. 2 Spécifications des bitumes fabriqués par soufflage (+1 < IP =+3,5) 16

I.8 Normalisation des bitumes modifiés et normes de spécifications en Europe 17

Chapitre 2 : La modification des mélanges bitumineux
II.1 Introduction **21**

II.2 Les objectifs de la modification **22**

II.3 LES DIFFERENTS AGENTS MODIFIANTS **23**

II.4 Principes de la Modification des Bitumes **24**

II.4.1Compatibilité bitume-polymère **25**

II.4.2 Structure du mélange **25**

II.5 Propriétés du mélange **27**

II.5.1 Bitumes modifiés par des élastomères **27**

II.5.2 Bitumes modifiés par des plastomères **28**

II.5.3 Comparaison **29**

II.6 Méthodes de caractérisation du mélange : **30**

II.6.1 Les autres modifications **30**

Chapitre III : PROTOCOLE EXPERIMENTALE ET METHODES ANALYTIQUES

III.1) Introduction 34

34

III.2 problématique

III.3) Présentation de lieu de stage 36

III.3.1 Présentation l'Enterprise Naftal 36

III.4 Démarche globale du l'étude expérimental 38

III.5 étude expérimental 39

III.5.1 réactif 39

III.5.2 matériel 39

III.6 le protocole opératoire 40

III.6.1 étude des caractéristiques des liants modifie par élastomère 40

III.6.1.1. préparation de matériau volcanisé 41

III.6.1.2 modification de polymère par plastomère 43

III.6.1.3 mélange élastomère plastomère 44

III.7 méthode analyse spectral 46

III.7.1 analyse par spectroscopie 46

III.7.2 détermination de la pénétrabilité l'aiguille 47

III.7.3 détermination de point ramollissement bille anneau 48

III.7.4 détermination de la ductilité 49

Chapitre IV : résultats et discussions

IV.1 INTRODUCTION 50

IV.2 propriété des materai utilise dans cette étude 50

IV.2.1 propriété physique chimique du bitume 50

IV.2.2 propriété de polyéthylène 51

IV.2.3 propriété des pneus en caoutchouc 51

IV.2.4 caractérisation d'huile d'olive 51

IV.3 étude des bitumes modifie par caoutchouc 52

IV.3.1 bitume modifie par caoutchouc 52

IV.4 Optimisation du paramètre opératoire sur la modification des bitumes 54

IV.4.1Influence de taux d'ajout du matériau vulcanisé sur la modification du bitume par élastomère 54

IV.4.2 Influence du temps d'agitions sur la modification du bitume 55

IV.4.2 Influence de la température du sur le procédé de modification du bitume 56

IV.4.3 influence de la température sur la modification du bitume 57

IV.4.4Influence de la température de service sur la modification du bitume par caoutchouc 58

IV.5 Modification du bitume par polyéthylène 59

IV.5.1 Influence du taux d'ajout de polyéthylène sur la modification du bitume 59

IV.6 mélange de bitume élastomère plastomère 61

Le développement durable est aujourd'hui, sous toutes les latitudes, une préoccupationmajeure qui a comme conséquence la recherche, en marche forcée, de nouveaux produits etprocédés qui respectent ses fondements écologiques, tout en restant dans un cadreéconomique raisonnable.
Il s'agit souvent de réduire la pollution aérienne et terrestre sous toutes ses formes enprivilégiant l'utilisation de ressources renouvelables et en remettant en cause, au passage, un bon nombre de matériaux et de méthodes de travail.Les infrastructures routières sont donc aujourd'hui confrontées à ces exigences à traversnotamment leur niveau de performance face à un trafic en augmentation constante.

Faces de telles situations, une des solutions est de chercher à améliorer certaines des caractéristiques du liant par l'incorporation de polymères dans le liant bitumineux.
L'emploi des polymères dans la technique routière a permis, ces dernières années, le développement de nouvelles formules de bitumes ainsi que de nouveaux types d'enrobés. L'utilisation de ces polymères, qui sont souvent des déchets issus de l'industrie, permet aux ingénieurs routiers d'atteindre un double objectif, celui d'une part, d'améliorer les performances des couches structurelles routières et d'autre part, d'aider à l'élimination et le recyclage des déchets industriels dans un cadre environnemental.

Néanmoins, l'optimisation et la mise au point de ces nouveaux matériaux nécessitent la maîtrise des deux produits mis en commun que sont le polymère et le bitume. Ceci passe par une connaissance de toute la chaîne de la modification depuis le choix des bruts et des modifiants jusqu'à la constitution des liants et enrobés modifiés.

La modification des bitumes et enrobés est très utilisé dans plusieurs pays vu les nombreux avantages qu'elle présente. En Algérie on note quelques applications d'enrobés de type additif anti-orniérant utilisés pour la première fois en 2006. Cette utilisation tardive de la technique de modification dans notre pays est due à plusieurs raisons :

• Manque ou inexistence d'études sur la technique et ceci au niveau de plusieurs paliers (Ministère, organismes de recherche et universités) ;

• Le développement de ces techniques de modification nécessite un investissement lourd tant au niveau de la recherche que de l'application ainsi que de l'exploitation ;

• La complexité que présente la caractérisation des bitumes ainsi que leur comportement

Outre cette introduction et une conclusion générale, ce mémoire de thèse comporte quatre chapitres

Le premier chapitre est consacré à une analyse bibliographique approfondie du bitume et de ses principales applications en techniques routières. Le deuxième chapitre présente une étude qui trace à la caractérisation du principe de modification d'un revêtement bitumineux par polymère. Les travaux expérimentaux, présentés dans un troisième chapitre, on fait l'objet del'utilisation d'huiles végétales comme fluxant du bitume dans la fabrication et la modification du liant.

Enfin, nous optimisons les paramètres les paramètres opératoires d'un procédé de fabrication d'un bitume modifié par polymère, les résultats obtenus sont illustrés dans ce dernier chapitre.

I.1 Introduction

Les matériaux bitumineux sont des matériaux viscoélastiques thermo-susceptibles ayant des propriétés adhésives et cohésives, très utilisés dans la construction et l'entretien des structures de chaussées, de trottoirs et pour l'étanchéité des toitures. La construction routière représente environ 90 % de la consommation mondiale du bitume. Pour les matériaux de chaussées traités au liant bitumineux, le bitume représente en moyenne 5 % de sa composition massique, alors que le squelette granulaire représente environ 95 %. Grâce à ses propriétés viscoélastiques, de cohésion et d'adhésion, le bitume permet de lier durablement les granulats entre eux et de conférer ainsi à la chaussée une rigidité et une portance suffisante pour supporter les charges liées au trafic et aux contraintes liées au climat. Ce chapitre résume les connaissances acquises sur les propriétés des enrobé bitumineux afin d'établir le cadre général de cette étude.

Nous présentons tout d'abord une généralité sur les liants bitumineux et leurs compositions. Ensuite, les propriétés mécaniques et thermomécaniques principales des enrobés sont brièvement abordées. Ensuite nous présenterons quelques tests qui permettent d'évaluer la qualité du bitume, ce qui est un aspect important de la durabilité des chaussées bitumineuses.

I.2 **Définition de l'enrobé bitumineux**

L'enrobé bitumineux est un matériau composite constitué d'un mélange de granulats (graves, sables, fines), d'un liant hydrocarboné (bitume, en général 5 à 7% en masse et éventuellement des additifs). Le liant hydrocarboné confère la cohésion tandis que les propriétés mécaniques spécifiques de l'ensemble sont assurées par le squelette minéral devient un solide élastique et fragile à basse température. Entre ces deux états extrêmes, le bitume est un matériau viscoélastique, linéaire ou non.

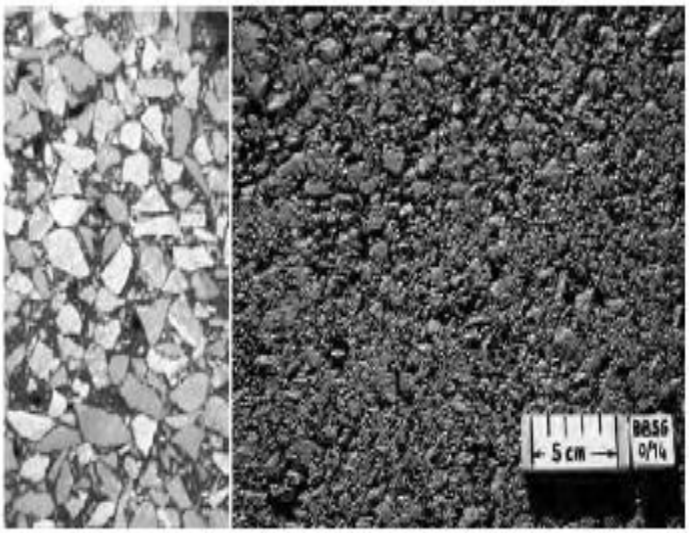


Figure I-1. Coupe et aspect de surface d'un enrobé de type béton bitumineux semi-grenu 0/14 (BBSG) selon la norme NF EN 13108-1 ou NF P 98-130 [Di Benedetto et Corté 2005].

I.3 Généralités sur le bitume

Le bitume considéré dans tout ce travail est un bitume de pétrole, fraction la plus lourde du raffinage de pétrole brut, par opposition au bitume naturel issu des roches. Le bitume est, selon sa définition, la plus classique un ensemble de produits organiques naturels, riches en carbone et en hydrogène, fusibles, combustibles et solubles dans le sulfure de carbone. Sa composition chimique et sa réponse aux sollicitations mécaniques sont complexes [**1]**. Son utilisation en technique routière est largement justifiée par ses qualités d'agglomérant à haut pouvoir adhésif, surtout sur les minéraux.

Du fait de sa complexité, la composition chimique du bitume n'est jamais réellement définie. Il n'existe pas un seul bitume mais de nombreux bitumes différents. Le mode de

raffinage et l'origine du brut pétrolier influent largement sur la composition chimique du matériau. Le bitume au singulier sera employé en terme générique et ce même mot sera employé au pluriel dans le cas d'une classification de divers bitumes selon leur grade ou leur origine. Par ailleurs, le terme liant bitumineux, par opposition aux bitumes purs, regroupe l'ensemble des bitumes purs qui ont été modifiés, fluxés ou fluidifiés.

Ne pouvant être caractérisé d'un point de vue chimique, le bitume pur est défini par deux paramètres décrivant sa consistance :

- **La pénétrabilité à l'aiguille** est une méthode de détermination de la consistance des bitumes et des liants bitumineux à 25°C. La pénétrabilité d'un liant bitumineux est « la consistance exprimée comme l'enfoncement, en dixièmes de millimètre (noté dmm), correspondant à la pénétration verticale d'une aiguille de référence dans un échantillon d'essai du matériau, dans des conditions prescrites de température, de charge et de durée d'application de la charge»**[2].**
- **La température de ramollissement bille-anneau** représente « la température à laquelle le matériau atteint une certaine consistance » **[3].** Les températures bille-anneau varient entre 30 et 150°C. Le bitume à sa température bille-anneau, n'est pas considéré comme liquide, mais il est suffisamment fluide pour permettre son écoulement.

La pénétrabilité et la température bille-anneau varient en sens contraire. Une mesure supplémentaire, « la détermination du point Fraass », permet de déterminer le comportement du bitume aux faibles températures. Il s'agit de « la température, exprimée en degrés Celsius, à laquelle un film de liant bitumineux d'une épaisseur donnée et uniforme se fissure sous des conditions de charge définies » [**4]**. Cette température, inférieure à 0°C, est directement corrélée au comportement à froid de l'enrobé. Des problèmes de répétabilité ont été constatés avec les bitumes modifiés aux polymères, notamment les bitumes fortement modifiés aux élastomères pour lesquels l'échantillonnage est délicat.

Les bitumes traditionnels sont classés selon leur grade (ou classe), classification établie par la norme NF EN 12591. Elle associe une valeur de pénétrabilité à l'aiguille et une valeur de susceptibilité thermique mesurée par l'essai de ramollissement bille-anneau. En pratique, un bitume de classe 70/100 doit présenter une pénétrabilité située entre 70 et 100 dmm, et une température de ramollissement bille-anneau comprise entre 43 et 51°C. Il existe 5 grades de bitume traditionnel, classé ici du plus dur au plus mou : 20/30, 35/50, 50/70, 70/100, 160/220.

I.3.1 Structure chimique

Le bitume est un corps noir. C'est, aux températures supérieures à 100°C, un liquide plus ou moins visqueux suivant son origine et sa préparation. Utilisable tel quel, sa viscosité peut être réduite par ajout de fluxant (terme utilisé lors de l'ajout de produits pétrochimiques), de fluidifiants (terme utilisé lors de l'ajout de produits carbochimiques) ou par émulsification dans l'eau. Le bitume ne possède pas de température de fusion. L'état « liquide » et l'état « solide » sont séparés par un domaine de ramollissement pâteux, étalé sur une plage de température d'environ 100°C [**5]**.

D'un point de vue chimique, le bitume est un corps hydrocarboné, composé de 80 à 87 % en masse d'atomes de carbone (en moyenne 83 %), de 8 à 12 % d'atomes d'hydrogène [**6**, **7]** (en moyenne 10 %) et d'hétéroatomes. L'oxygène, l'azote et surtout le soufre représentent globalement, en moyenne 7 % du bitume. D'autres éléments, tels que le fer, le vanadium, le nickel, l'aluminium et le silicium sont aussi présents dans sa composition, à l'état de traces.

Le nombre important de molécules différentes constituant le bitume rend une détermination précise de sa composition chimique impossible. En première approximation, le bitume est divisé en 2 familles d'hydrocarbures : les maltènes et les asphaltènes. Les maltènes sont, par définition, solubles dans un hydrocarbure de faible poids moléculaire généralement le n-heptane, tandis que les asphaltènes, par définition, précipitent dans ce solvant mais sont solubles dans le toluène. A ces deux familles s'ajoutent parfois 0 à 2 % de carboïdes et 0 à 0,2 % de carbènes.

I.3.1.1 Les asphaltènes

Les asphaltènes constituent la fraction la plus condensée du bitume **[8,9].** Lorsque ces asphaltènes sont séparés du bitume par précipitation, ils se présentent sous la forme d'un solide dur et friable **[8, 10,9**], de couleur brun-noir **[10,11]** dont le point de ramollissement est assez élevé, compris entre 150 et 200 °C. Les asphaltènes peuvent représenter jusqu'à 30% du bitume **[12].** Pour un bitume de distillation direct **[13]** ou à usage routier **[11]** leur quantité est estimée à moins de 20%. Les asphaltènes sont constitués de carbone et d'hydrogène avec un rapport H/C généralement égale à 1,1 mais aussi d'azote, d'oxygène et jusqu'à 10% de soufre **[8].** Les métaux sont également présents dans les asphaltènes, essentiellement du nickel, du fer et du vanadium **[8,13].**

La masse moléculaire des asphaltènes est élevée et varie selon la méthode utilisée. Néanmoins, d'après plusieurs chercheurs **[11, 12, 10,13],** elle varie dans une fourchette de 800 à 300000g/mol. Leur taille varie de 5 à 30nm **[11**].

Les asphaltènes peuvent être précipités **[7]** par n-hexane ou par le n-heptane. Afin d'uniformiser leur obtention, la norme T 60-115 a normalisé leur précipitation par le n-heptane **[14].**

Les asphaltènes sont essentiellement composés d'atomes de carbone et d'hydrogène. Des études RMN [**11]** ont permis d'évaluer le rapport C/H à 1,1, et ont montré que près de 40 % des atomes de carbone sont inclus dans des cycles aromatiques et 90 % des atomes d'hydrogène sont portés par un carbone saturé. La concentration en hétéroatomes est élevée (N : 0,5-0,7 %, O : 1,5-5 %, S : 1,6-10 %)

Comme la composition globale des bitumes, la composition et la structure des asphaltènes sont différentes suivant le mode de fabrication du bitume. En effet, les asphaltènes résultent d'une polycondensation de monomères qui a lieu en deux temps : tout d'abord, dans le pétrole brut, au cours de l'évolution géologique, et ensuite lors de la production du bitume. Par ailleurs, les asphaltènes d'un bitume soufflé sont différents de ceux d'un bitume issu de distillation directe [**15]**. Une structure hypothétique d'asphaltènes est donnée dans la Figure I-2.

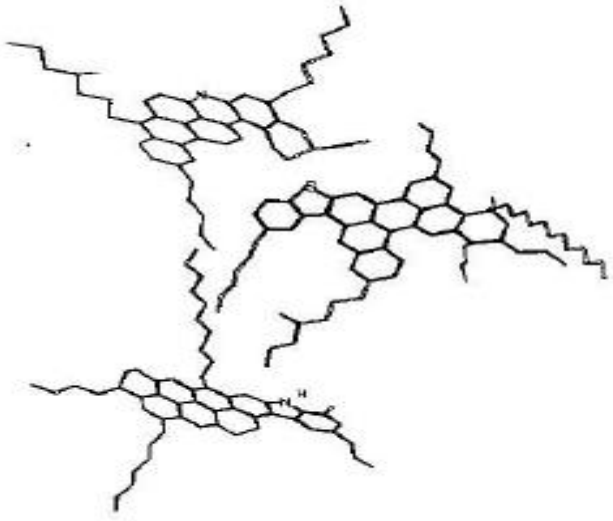


Figure I-2 : Structure hypothétique des asphaltènes

I.3.1.2 Structure chimique des maltènes

Les maltènes, constituants principaux du bitume, représentent la fraction la plus légère.
Ils contiennent 3 familles chimiques de masse moléculaire croissante :

- -Les huiles saturées, légèrement colorées, de masse molaire moyenne de 300 à 600 g/mol, sont liquides à température ambiante. Elles sont composées de paraffines, d'isoparaffines, de cycloparaffines et de naphtènes éventuellement condensés et ne contiennent aucune structure aromatique. D'après Lesueur et Planche **[16],** ces huiles saturées ont un effet néfaste sur le bitume pour une utilisation en technique routière. En effet, elles induisent des problèmes d'adhésivité liants-granulats ainsi qu'une forte susceptibilité thermique. Leur cristallisation à froid fragilise le matériau **[17].**
- Les huiles aromatiques et naphténoaromatiques, liquides colorés jaunes ou rouges, ont une masse molaire moyenne de 800 g/mol. 30 % des carbones sont inclus dans des cycles aromatiques. Elles ne contiennent pas de molécules aliphatiques, mais une quantité importante d'hétéroatomes. La plus grande partie des produits sont des hydrocarbures naphténo-aromatiques. Les huiles saturées, aromatiques et naphténo-aromatiques représentent 40 à 60 % des constituants du bitume.

- Les résines sont des solides noirs, de masse molaire comprise entre 1000 et 2000 g/mol. Elles sont composées de plusieurs cycles aromatiques condensés et contiennent des composés polaires notamment des acides carboxyliques à caractère tensioactif. Le nombre de noyaux aromatiques par molécule est plus élevé que dans les huiles aromatiques. Les composés à hétérocycles soufrés ou oxygénés sont prépondérants. Les qualités d'adhésivité du bitume sur la matière minérale sont dues en partie aux éléments polaires des résines [**1**].

I.3.2 Caractérisation et séparation des différentes familles

S'il est impossible de déterminer la composition chimique précise d'un bitume, il est envisageable et parfois nécessaire de séparer les quatre familles qui le composent. La teneur relative de chacune des familles influe sur la viscosité du système et surtout sur la rhéologie. La séparation chimique des différentes familles est présentée dans la Figure I-3.

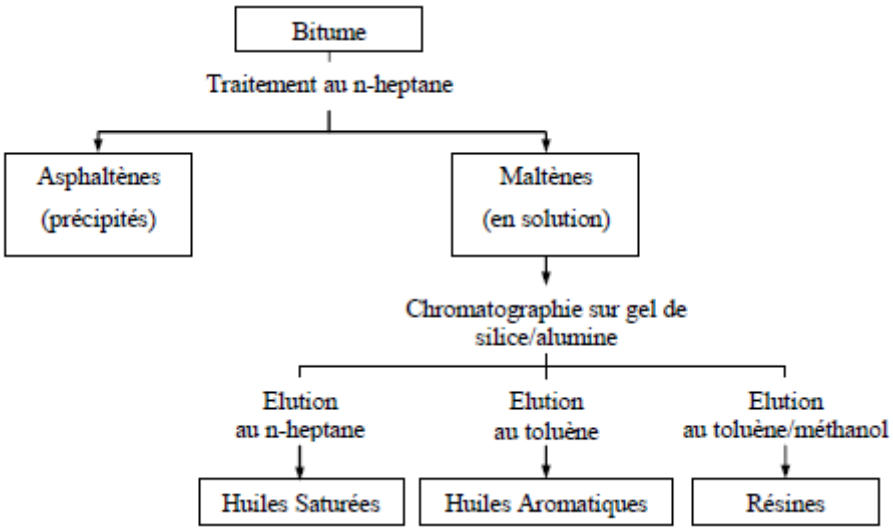


Figure I-3 : Séparation chimique des 4 familles de constituants du bitume

I.3.3 Structure colloïdale

Nellenstein [**18]**, en 1924 a été le premier à proposer pour le bitume, une structure colloïdale. Les quatre familles définies précédemment (les huiles saturées, les huiles aromatiques, les résines et les asphaltènes), forment un mélange biphasique. La fraction asphalténique est dispersée dans la fraction malténique sous forme de micelles plus ou moins agglomérées. Ces micelles sont stabilisées par les résines tensioactives malténiques dont la fraction de plus haut poids moléculaire s'adsorbe sur le réseau asphalténique. Les études des asphaltènes solides en microscopie électronique [**19]** montrent que ces asphaltènes s'associeraient sous la forme de feuillets à partir des cycles aromatiques plans, polynucléaires, dont la cohésion est assurée par liaison [**15**, **20]**. Ces feuillets plans, de rayon compris entre 8,5 et 15 Å et d'épaisseur comprise entre 16 et 20 Å, s'empilent pour constituer des micelles sur lesquelles les résines polaires, s'adsorbent. Les résines polaires jouant le rôle de tensioactif du système colloïdal, assurent la répulsion entre les micelles asphalténiques ainsi que leur dispersion. Des édifices plus complexes peuvent alors être créés par association de plusieurs micelles en agglomérat (Figure I- 4). La nature des interactions intermoléculaires responsables de cette cohésion est mal définie.

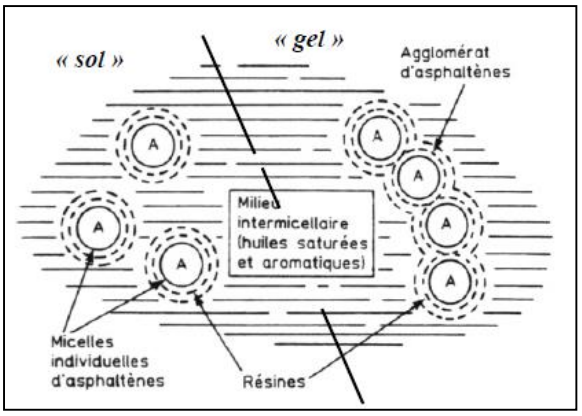


Figure I.4 : Représentation du modèle de structure colloïdale des bitumes **[70]**

Les asphaltènes garantissent les propriétés de cohésion du produit, mais c'est la matrice malténique qui détermine leur organisation au sein du matériau.

I.3.4 Influence de la structure du bitume sur la rhéologie

Di Bendetto et Corté[**1]** considèrent que le comportement rhéologique du bitume résulte du type de dispersion des asphaltènes dans la fraction huileuse. L'organisation de la structure peut, en effet, conférer au fluide un caractère « sol », un caractère « gel » ou un caractère intermédiaire « sol-gel ». Kennel [**21]** a étudié les 2 structures colloïdales extrêmes, sol et gel, structures schématisées dans la Figure I-5 et la Figure I-6, ainsi que la structure sol-gel intermédiaire.

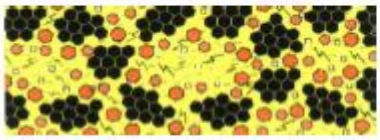


Figure I-4 : Bitume type gel

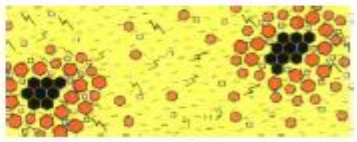
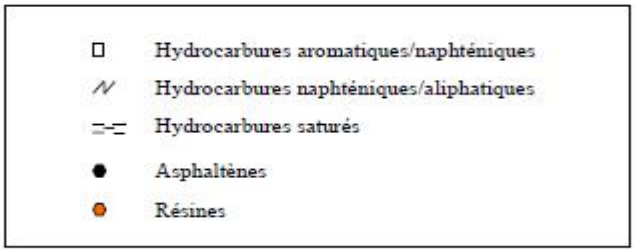


Figure I-5 : Bitume type sol



Ces classes de bitume ont été associées [67,68] aux différentes structures sol, gel et sol/gel (tableau I.1).

Tableau I.1. : Type structuraux des bitumes en fonction de leur composition [67]

Type de bitume		*Asphaltènes (%)*	*Résines (%)*	*Huiles (%)*
Gel	*1*	*> 25*	*< 24*	*> 50*
Sol	*2*	*< 18*	*> 36*	*< 48*
Sol/Gel	*3*	*21 à23*	*30 à 34*	*45 à 49*

I.3.5 Vieillissement du bitume

Le bitume évolue et s'altère au cours de son utilisation, depuis sa fabrication en raffinerie jusqu'à son utilisation comme liant routier. En pratique, le vieillissement se traduit par une augmentation importante de la viscosité du matériau pouvant entraîner la perte de plusieurs grades. L'oxydation des différentes familles du bitume et la désorganisation du système colloïdal en sont les causes principales [**22]**. Toutes les familles présentes dans le bitume sont concernées par ce vieillissement (Figure I-7). Le vieillissement est différent suivant l'opération à laquelle est soumis le bitume : stockage, enrobage, répandage, vieillissement in situ sur la chaussée [**23]**. Deux types d'évolution sont à considérer : des évolutions physiques et un vieillissement chimique **[40].**

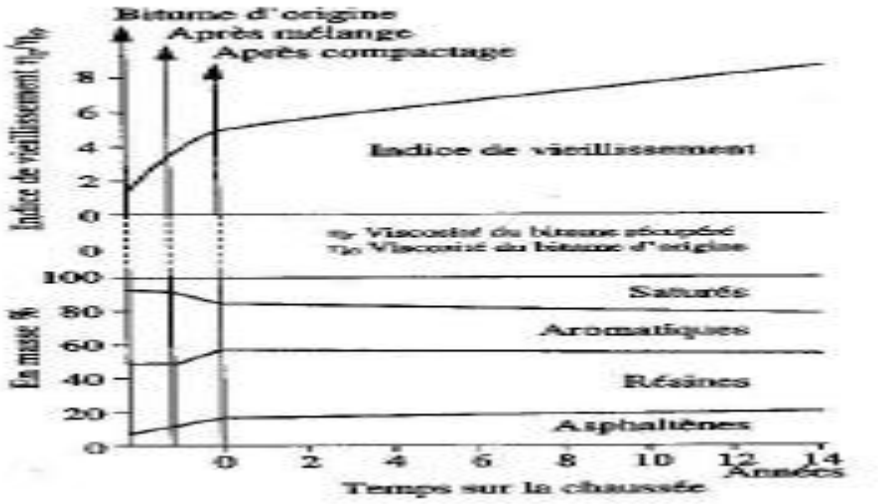


Figure I-7 : Evolution de la viscosité et de la composition chimique du bitume au cours de son cycle de vie depuis la phase d'enrobage jusqu'à son évolution dans la chaussée.

I.4 –Propriétés des bitumes

Le bitume a été choisi comme matériau principal dans l'élaboration des routes pour sa souplesse d'emploi, ses propriétés d'adhésivité, de plasticité, d'élasticité, d'insolubilité dans l'eau et d'inertie à de nombreux agents chimiques.

I.4.1 Réactivité

En général, le bitume est inerte chimiquement vis-à-vis de la plupart des composés hydrocarbonés, mais, les composés aromatiques peuvent réagir notamment avec l'oxygène.
Les bitumes soufflés ou oxydés sont d'ailleurs préparés grâce à ce type de réaction. Outre ces réactions d'oxydation, des réactions de condensation peuvent avoir lieu à des températures supérieures à 160°C en présence de H2S [**25].** Les acides présents dans les résines du bitume sont aussi sensibles à certaines attaques basiques.

I.4.2 Adhésivité

Le bitume se comporte comme une colle de très bonne qualité qui assure une liaison entre les granulats. Il adhère sur la plupart des roches. Cette adhésivité se manifeste d'une manière active par le collage solide des granulats secs et propres entre eux et d'une manière passive en permettant une résistance aux phénomènes de dés enrobage dus à l'eau et aux attaques chimiques. Seuls les produits chimiques dérivés du pétrole, tel que le kérosène et le gazole, peuvent endommager l'enrobé.

I.4.3 Cohésion

Même lors de contraintes particulières exercées sur la chaussée, l'enrobé ne se désagrège pas. La ductilité du bitume permet un écoulement lent au sein de l'enrobé et non une rupture, tandis que sa ténacité assure une résistance suffisante sous l'effet de contraintes de traction.

I.4.4 Viscoélasticité

Le bitume n'est ni un fluide newtonien, ni un solide élastique, il a un comportement intermédiaire suivant la température, et la charge appliquée. La viscoélasticité confère des propriétés mécaniques de souplesse et de fermeté au bitume. Mais ce caractère est largement dépendant de la température et de l'origine du bitume.
En première approximation, le bitume peut être considéré comme un solide ou un liquide visqueux à haute température (> 80°C), un liquide ou un solide viscoélastique de 0°C à 80°C, et un solide élastique fragile à basse température <0°C. Le comportement du bitume suivant la température a été résumé par Olard et coll. [**26] (**Figure I-8).

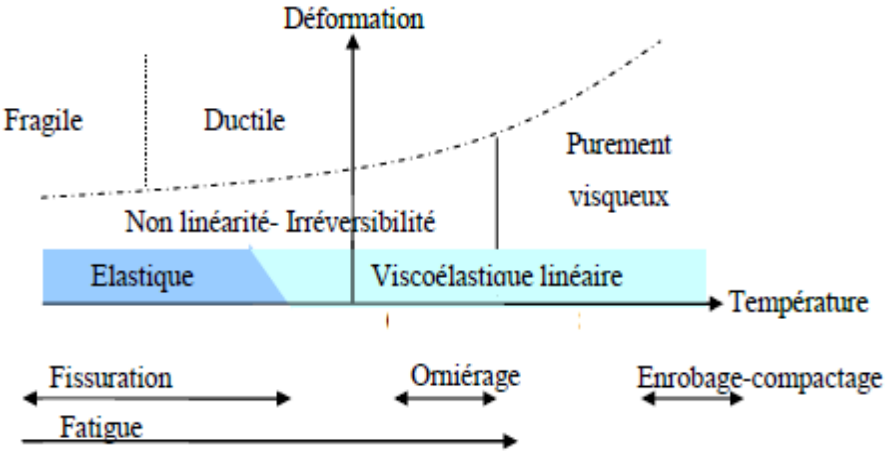


Figure I-8 : Classe de comportement du bitume**.**

Ainsi, à basse température, pour des temps de charge très courts, le bitume se comporte comme un fluide élastique, la déformation est proportionnelle à la charge appliquée et le fluide retrouve sa position initiale si la charge est annulée rapidement. A -20°C, le module de cisaillement G tend vers une valeur fixe de 1 GPa indépendamment des conditions de mesure. Il se trouve en fait dans le domaine vitreux des maltènes**[6],** le liant est alors très fragile.

Pour des températures supérieures à 60°C et une contrainte appliquée lentement, le bitume se comporte comme un fluide newtonien de viscosité o, la déformation est continue.

Pour des températures intermédiaires, le bitume a un comportement viscoélastique. La viscoélasticié du bitume peut être mise en évidence en soumettant un échantillon de bitume à une sollicitation périodique et en analysant sa réponse.

I.5 Obtention du bitume

Les modes de fabrication ont évolué. Avant la crise pétrolière des années 1970, on faisait appel presque exclusivement à des bruts lourds de forte densité, de type vénézuélien (faible degré API1), permettant de fabriquer les différentes classes de caractérisés par des densités moins élevées (degrés API plus forts). Il existe plusieurs techniques pour fabriquer le bitume, reposant principalement sur la distillation directe du pétrole (90 % de la production française). Lorsque le choix d'un brut bitume par distillation directe, sans qu'il soit nécessaire d'utiliser une colonne sous-vide de grande efficacité. Actuellement les bruts à bitume ont des origines diverses mais la plupart d'entre eux proviennent du Moyen-Orient, le reste venant du Venezuela et du Mexique. Ces bruts sont et celui d'une technique ont été décidés, le fabricant suit rigoureusement le processus et s'y maintient. Ces choix font l'objet pour chaque fabricant

De procédures d'homologation très sévères, dans le souci de fournir des produits industriels d'une qualité constante et conformes aux spécifications.

I.5.1 Obtention par Distillation

Le bitume peut être obtenu soit par distillation soit par extraction.

- Dans le premier cas, le pétrole brut est d'abord distillé à 340°C, sous pression atmosphérique. Les produits légers tels que l'essence et le kérosène sont éliminés du pied de distillation. Une seconde distillation à une pression de quelques dizaines d'hectopascals, permet ensuite d'éliminer les produits plus lourds. Pour éviter l'altération du bitume par craquage, la température de distillation doit nécessairement rester inférieure à 400°C. Cette opération est menée jusqu'à ce que le bitume recueilli en pied de distillation atteigne la consistance recherchée. Si le bitume obtenu n'est pas en adéquation avec les spécifications, une étape de soufflage est nécessaire. L'utilisation, lors du raffinage, d'un solvant non polaire de bas poids moléculaire ajouté au pétrole brut permet, quant à lui, un raffinage par extraction. L'opération s'effectue à température modérée. La structure chimique n'est donc pas dégradée, la formation d'asphaltènes est inhibée. Les bitumes obtenus contiennent beaucoup d'aromatiques. La susceptibilité thermique de produits peut ainsi être augmentée. Par ce mode de raffinage, un bitume et une base pour lubrifiant sont obtenus.

I.5.2 Obtention par craquage

Des fonds de colonne de distillation de pétrole brut sont chauffés à une température comprise entre 450°C et 500°C sous une pression variant de 2 à 25 bars. Ils sont ensuite distillés sous vide pour donner des bitumes très durs, trop durs pour envisager une utilisation en technique routière.

I.5.3 Obtention par soufflage

Le soufflage corrige certaines caractéristiques du bitume comme la susceptibilité thermique **[15]**. Le mode opératoire consiste en une injection d'air dans le bitume à une température comprise entre 250 et 300°C. L'oxygène est peu consommé mais permet :

- la réticulation oxydante de molécules du bitume, par arrachement d'atomes d'hydrogène de certains hydrocarbures,
- la formation d'asphaltènes.

Le bitume durcit. Il existe deux types de soufflage :

- le semi-soufflage. Il s'agit du traitement de bitume trop mou issu de fond de colonne de distillation, afin d'obtenir un bitume routier,

- le soufflage d'une base plus complexe afin d'obtenir des bitumes de faible susceptibilité thermique.

I.6 Caractérisation du bitume

I.6.1 Caractérisation classique

Trois mesures classiques caractérisent le bitume de manière empirique.

- La pénétrabilité,
- La température de ramollissement bille-anneau,
- Le point Fraass.

La pénétrabilité et la température bille-anneau définissent la consistance du bitume et permettent de le classifier et de déterminer un indice de pénétration noté IP. Cet indice de pénétrabilité caractérise la susceptibilité thermique du bitume et l'évolution de sa consistance en fonction de la température [4]. Plus cet indice est élevé, moins le bitume est sensible à des variations de température Malgré leur fiabilité et leur reproductibilité sur la plupart des bitumes purs, les problèmes d'adaptabilité de ces méthodes aux bitumes modifiés aux polymères et aux bitumes soufflés, notamment lors de l'essai Fraass, ont nécessité la mise en oeuvre de nouvelles méthodes de caractérisation : les essais SHRP.

I.6.2 Essais américains SHRP (Highway Research Program :

Programme de recherche concernant l'étude des routes) Cette technique prend en compte de nouveaux paramètres tels que la météorologie du lieu (température maximale et minimale à la surface de la chaussée), sa situation géographique (latitude) et la rhéologie [**27]**. Elle permet d'accéder aux caractéristiques intrinsèques du bitume telles que la mesure du module de rigidité. Ce module peut être déterminé à toutes les températures auxquelles la chaussée peut être soumise. Avec les essais SHRP, le liant est entièrement décrit d'un point de vue rhéologique.

- ✓ Définitions des températures : Le système classique définit la température bille-anneau et la pénétrabilité. Le système SHRP définit quant à lui 3 températures caractéristiques du système (Tableau I-2) :

désignation	*définition*	*Phénomène étudié*
*T1**	***Température maximale atteinte par la surface de la chaussée***	***Orniérage***
T2	***Température moyenne annuelle évaluée sur plusieurs années***	***Rupture par fatigue***
T3	***Température minimale de l'air***	***Fissuration et fragilité***

***T1 peut aussi s'appliquer à la température atteinte par une sous-couche pour une profondeur déterminée [69]**

- ✓ Spécifications sur les grandeurs rhéologiques : Dans le système SHRP, les températures précédemment définies sont reliées aux grandeurs rhéologiques telles que le module complexe, grandeur intrinsèque du bitume. De nouvelles spécifications rhéologiques sont ainsi définies. Elles tiennent notamment compte du comportement du bitume au jeune âge, mais aussi après vieillissement du à l'enrobage. Ainsi, la mesure du module complexe et de la complaisance (inverse du module) permet de déterminer les températures T1, T2 et T3, et de valider l'utilisation d'un bitume dans une zone climatique précise. Les spécifications établies par le système SHRP sont répertoriées dans le Tableau I-3

Température	*Phénomène étudié*	*Avant RTFOT^e*	*Après RTFOT^e*
T1	***Lutte contre l'orniérage***	***G*/sinø≥1KPa***	***G*/sinø≥2.2KPa***
T2	***Lutte contre la fatigue***		***G*≤ 5MPa***
T3	***Fissuration thermique***	***G*≤ 300MPa***	

Tableau 1-3 : spécifications SHRP reliant les températures du lieu au module complexe du bitume

Dans le système SHRP, chaque classe de bitume est définie par T1 et T3. Un nouvel intervalle de plasticité est caractérisé par la différence T1-T3. Dans le cas où des conditions de trafic augmentent les contraintes subies par la chaussée, le grade du bitume peut alors être corrigé en augmentant la température haute T1 [**28]**. Les essais SHRP peuvent être reliés aux essais traditionnels de pénétrabilité et de température de ramollissement bille-anneau grâce à l'abaque mis au point par Van Der Poel [**29]**.

L'inconvénient majeur des bitumes pur réside dans leur susceptibilité thermique importante. Elle conduit notamment au fluage à haute température, à une rigidité et une fragilité à basse température. Par ailleurs, leur sensibilité aux produits chimiques et surtout au kérosène peut être gênante sur certains chantiers. L'augmentation perpétuelle du trafic a nécessité la mise au point d'enrobés de plus en plus performants. Cette amélioration a abouti notamment à la première modification des bitumes par ajout de polymères en 1963. Il s'agissait alors d'ajouter au niveau du malaxeur divers caoutchoucs naturels ou synthétiques mais les résultats ne furent pas exploitables industriellement. D'autres recherches se sont orientées vers l'addition de polymères thermoplastiques pour développer des enrobés dont les

Performances mécaniques ou rhéologiques furent bien meilleures **[30]** comme nous allons le préciser.

I.7 Caractéristiques et spécifications générales des bitumes algériens

Le bitume de distillation, se présente comme un système colloïdal dans lequel les asphaltènes peptisés par les résines constituent les micelles, tandis que les huiles représentent la phase inter micellaire **[31].** Ce système peut être considéré comme un sol présentant les caractéristiques des liquides newtoniens. C'est en particulier le cas des bitumes dits "soufflés" ou "oxydés" dans lesquels des phénomènes de déshydrogénation, de polymérisation des asphaltènes et des résines leur donnent quelquefois le comportement des composés thixotropes. Suivant le caractère sol ou gel, les propriétés diffèrent. C'est ainsi que les bitumes sols présentent une excellente résistance aux sollicitations rapides, en contrepartie ils seront plus sensibles que les bitumes gels aux sollicitations lentes ainsi qu'aux variations de température, mais entre ces deux types de comportements extrêmes, il existe toutes les variantes intermédiaires possibles. **[32, 33**]

La composition élémentaire de pétrole brut et des asphaltènes algérien est donnée dans les tableaux ci- dessous :

Tableau I.4 : Composition élémentaire du pétrole brut Algérien

Pétrole (gisement) Algérie	*Teneur en asphaltènes*	*C*	*H*	*S*	*O*	*N*
	0.75 %	***85.48***	***12.84***	***0.19***	***0.80***	***0.14***

Tableau I.5 : Caractérisation de pétrole brut algérien par la méthode SARA

Pétrole (gisement) Algérie	*Saturés*	*Aromatiques*	*Résines*	*Asphaltènes*
	48.205	***26.565***	***24.479***	***0.750***

Tableau I.6 : Composition élémentaire des asphaltènes Algériens

Asphaltènes Algérie	*C*	*H*	*S*	*O*	*N*	*C : H*
	87.87	***7.80***	***0.42***	***2.70***	***0.56***	***11.26***

1. 7. 1 Spécifications des bitumes fabriqués par distillation (-1 < IP =+1)

Ce procédé s'effectue dans une tour sous vide qui consiste à créer un vide à l'aide d'éjecteurs de vapeur, la pression réduite à l'intérieur de la tour est destinée à poursuivre la séparation physique des constituants sans les dégrader thermiquement, la température ne doit pas dépasser 400°C à la sortie du four. Cette technique est utilisée par les raffineries en Algérie et permet d'obtenir tous les grades des bitumes (tableau. 3. 4).

Tableau I.7 : Spécifications des bitumes fabriqués par distillation

Caractéristiques	*Normes Françaises*	*Recommandations du CTTP d'Alger 40/50*	*EXEMPLE Shell Bitumes MEXPHALTE 35/50*
Pénétrabilité à 25°C	***35/50***		
100g , 5s , 1/10 mm	***EN 1426***	***40/50***	***35/50***
Point de ramollissement	***55/63***		
bille et anneau ° C	***EN 1427***	***52 à 57***	***50 à 56***
Densité relative à	***1,00 à 1,10***		
25 °C (au pycnomètre)	***NF EN 1097-7***	***1,00 à 1,10***	***1,00 à 1,10***
Point d'éclair (vase ouvert)	***240***		
°C	***EN 22592***	***> 230***	***> 250***
Ductilité à 25 °C, cm	***= 60***		
	NF T66-006	***= 60***	***= 60***
Teneur en paraffine %	***4,5***		
	EN 12606-2	***< 9***	***< 4,5***
Température limite de	***130***		
pompabilité , °C	***NF P 98-150-1***	***125***	***125***

1. 7. 2 Spécifications des bitumes fabriqués par soufflage (+1 < IP =+3,5)

Cette technique consiste à injecter de l'air dans la colonne de soufflage à des températures comprises entre 240 et 280 °C et un débit de 1000 Nm^3/h, l'introduction d'air diminue la susceptibilité à la température et permettra de créer les asphaltènes au détriment des aromatiques, ainsi qu'a un changement de structure colloïdale (sol gel). Ce procédé existe à la raffinerie d'Arzew (Algérie)

Tableau I.8 : Spécifications des bitumes fabriqués par soufflage.

Caractéristiques	Recommandations Françaises	Recommandations du CTTP d'Alger 40/50	Shel l Bitumes R 100/40
Pénétrabilité à 25°C	**35/50**	**40/50**	**35/45**
100g , 5s , 1/10 mm	**EN 1426**		
Point de ramollissement bille	**55/63**	**57 à 61**	**95 à 105**
et anneau ° C	**EN 1427**		
Densité relative à 25 °C	**1,00 à 1,10**	**1,00 à 1,10**	**1,00 à 1,07**
(au pycnomètre)	**NF EN 1097-7**		
Point d'éclair (vase ouvert)	**240**	**> 230**	**> 250**
°C	**EN 22592**		
Température limite de	**130**	**125**	**185**
pompabilité , °C	**NF P 98-150-1**		

On constate que la température de pompabilité du bitume Shell R 100/40 est beaucoup plus importante que celle du bitume recommandé par le CTTP d'Alger à cause du procédé de semi soufflage recommandé. Il est à noter que la température ne doit pas descendre en dessous de la température de pompabilité car le bitume doit être réchauffée avec une précaution très importante à prendre en considération qui est la formation de vapeur d'eau dans les citernes de stockage et donc le risque de moussage ce qui influe négativement sur la qualité des enrobés par la suite. [34]

I.8 Normalisation des bitumes modifiés et normes de spécifications en Europe

La norme EN 14023 adoptée en 2005 est dédiée aux bitumes modifiés par des polymères utilisés dans les applications routières. De nombreux types de bitumes polymères sont utilisés en Europe et, en fonction des conditions climatiques, du type de construction et des pratiques locales, des qualités différentes peuvent être utilisées pour des applications similaires. Le cadre indiqué dans cette norme définit à minima le liant adapté à l'usage prévu **[35].**

Les principales exigences portent sur :

- la consistance des bitumes modifiés aux températures intermédiaires de services (pénétrabilité EN 1426) ;
- la consistance des bitumes modifiés aux températures élevées de service (TBA EN 1427) ; la consistance des bitumes modifiés aux températures basses de service (Fraass/Force-Ductilité) ;

- la cohésion (Mouton-pendule) ;
- la tenue au vieillissement (RTFOT/PAV**) [36].**

Tableau I.9 : Bitumes purs. Norme européenne EN 12591

Caractéristiques	unité	Méthodes	Désignation des classes appropriées				
			20/30	35/50	50/70	70/100	160/220
Pénétrabilité à 25°C. 100g, 5 s	x0.1mm	EN 1426	20-30	35-50	50-70	70-100	160-220
TBA	°C	EN 1427	55-63	50-58	46-54	43-51	35-43
Résistance au durcissement RTFOT à 163 °C		EN 12607-1					
Variation de masse max, +/-	%	EN 12607-1	0.5	0.5	0.5	0.8	1.0
Pénétrabilité restante, min	%	EN 1426	55	53	50	46	37
TBA après durcissement, min	° C	EN 1427	57	52	48	45	37
Augmentation du TBA, max	° C	EN 1427	8	8	8	9	11
Point d'éclair	° C	EN ISO 2592	240	240	230	230	220
Solubilité, min	% (min)	EN 12592	99.0	99.0	99.0	99.0	99.0
Teneur en paraffine, max	% (min)	EN 12606-2	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5

L'analyse des spécifications algériennes et européenne met en évidence des différences importantes :

- l'intervalle de la température bille anneau proposé par les recommandations algériennes (entre 4 et 6°C) est inférieur à l'intervalle arrêté par les spécifications EN (8°C) ;
- du point de vu teneur en paraffines les spécifications européennes (< 4,5 %) sont plus sévères que celle de l'Algérie (< 9 %). En notant que ce critère est limité, en Algérie, pour le brut de base importé ne prenant pas donc en compte l'évolution des paraffines lors du raffinage du brut ;
- la plage des classes du bitume utilisées en Algérie présente des discontinuités ne couvrant pas ainsi toutes les consistances possibles pour les liants. Ce qui rend les bitumes fabriqués non classables ;
- dans les spécifications algériennes, le comportement aux hautes températures n'est pas pris en compte.

Ces différentes anomalies ont étés déjà signalées lors d'une étude effectuée, au sein du CTTP en collaboration avec le laboratoire centrale des ponts et chaussées (LCPC paris), par Laradi en 2000 **[37].** Il faut noter que la classe des liants de catégorie 40/50 approvisionnés au port d'Alger sur une période de 10 ans, correspond sensiblement aux spécifications françaises antérieures à 1992 concernant la catégorie 40/50. Par ailleurs, il a été constaté que 50% des liants n'appartenaient à aucune classe (fig.3.6). Ces anomalies peuvent ainsi influencer la qualité des bitumes algériens. En effet la qualité des approvisionnements sur chantier dépend des caractéristiques des liants à la sortie des raffineries, mais aussi de leur évolution éventuelle au cours des transports et des stockages entre la raffinerie et le dépôt, puis entre le dépôt et le chantier. Ces variations à court terme peuvent être gênante et ne permettent pas à l'ingénieur d'adapter la bonne formule d'enrobés. **[38]**

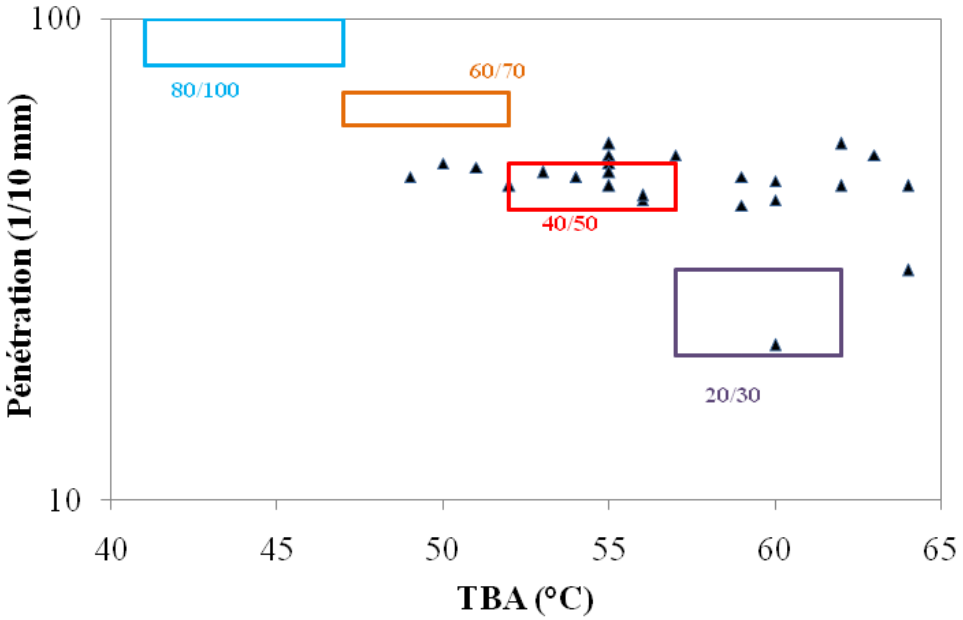


Figure I. 9: Caractéristiques de bitumes algériens 40/50.

Les conditions de transport et de stockage entre le dépôt et le chantier peuvent aussi être une source de fluctuation de la qualité des liants. A titre d'exemple, on donne l'évolution d'un bitume entre le dépôt du port d'Alger et les différentes centrales d'enrobage. Les résultats des analyses effectuées par le CTTP sont montrés sur la fig. 3. 7 **[39].**

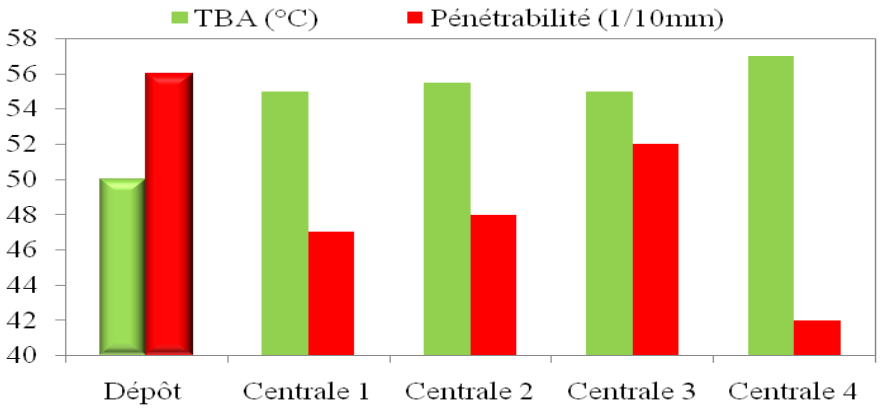


Fig.I. 10: Evolution des bitumes entre le dépôt et les différentes centrales.

On peut constater que l'évolution du liant n'est pas négligeable. Ceci peut être le résultat du non-respect des températures de transport et de stockage. Dans le tableau 3.10, sont rappelées, pour chaque classe de bitume, les températures de transport, de pompabilité et d'utilisation.

Tableau I.10 : Températures d'exploitation des bitumes selon le CTT

Classe du bitume	20/30	40/50	60/70	80/100
Température de transport (°C)	160 - 170	155 - 165	150 - 160	145 - 155
Température de pompabilité (°C)	130	125	120	115
Température d'utilisation (°C)	160 - 170	155 - 165	150 - 160	145 - 155

Chapitre II : La modification des mélanges bitumineux

II.1 Introduction

L'amélioration des caractéristiques des chaussées souples routières s'avère indispensable devant la croissance des trafics et les performances de plus en plus grandes des véhicules. Cette amélioration s'est développée, entre autres, par l'introduction de nouvelles techniques et procédés de modification des produits bitumineux ; ceci constitue un axe de recherche très étudié à travers le monde ces dernières années **[40].**

Les polymères sont les agents de modification les plus souvent employés pour améliorer les propriétés viscoélastiques des bitumes. Ils accroissent le domaine de température sur lequel un liant peut résister à l'orniérage et à la fissuration thermique, ainsi que sa durabilité en fatigue **[41,42].**

La première utilisation des polymères synthétiques dans un processus de modification remonte à 1843 **[43]** et a été appliquée à l'asphalte naturel. L'utilisation de matières plastiques recyclées est presque aussi ancienne que le développement des bitumes polymères. On relève ainsi à partir de la fin des années 50, aux États-Unis, la réalisation d'enrobés avec du bitume modifié par des caoutchoucs incorporés sous forme de latex **[43].** Des opérations du même genre furent effectuées en Europe. Mais ces applications, souvent réalisées à titre d'essai (planches expérimentales), furent généralement considérées comme insuffisamment au point, onéreuses et non indispensables malgré l'essor important des travaux publics durant la décennie 60. Les travaux de construction routière furent réalisés à cette époque avec des bitumes purs.

Le développement significatif des liants modifiés ou comportant des additifs, avec des processus industrialisés et maîtrisés remontent aux années 70.

Dans ce chapitre, la problématique des chaussées en l'occurrence les limites des bitumes seront abordées. A travers les objectifs recherchés par la modification il sera dressé un état de l'art sur divers recherches en mettant l'accent sur les principales évolutions de la modification.

Dans toute cette étude, le terme bitume est employé pour qualifier un bitume pur, et le terme liant regroupe le mélange contenant un bitume et un ou plusieurs additifs : polymères, fluxants, cires…

II.2 Les objectifs de la modification

Les objectifs recherchés par la modification des bitumes par des polymères sont multiples. Il s'agit avant tout de modifier le comportement aux températures extrêmes atteintes par la chaussée : conserver une consistance suffisamment élevée aux hautes températures pour éviter ressuages et déformations permanentes, diminuer la fragilité à basse température pour éviter fissurations et arrachements de gravillons.

Ces objectifs dépendent aussi des domaines d'application et des techniques projetés : enduits superficiels, tapis minces, enrobés drainants, couches de roulement pour routes à trafic intense, couche d'assise pour routes à trafic intense, membranes anti-fissures, chapes d'étanchéité d'ouvrages d'art **[44].**

- Enduits superficiels ; enrobés ultra-minces (1-2 cm), très minces (2-3 cm)
  - Amélioration de la résistance sous les sollicitations de traction et de cisaillement ;
  - Assurer la durabilité ;
  - Eviter le ressuage ;
  - Améliorer l'adhésivité/tenue à l'eau.
- Enrobés ouverts
  - Améliorer les propriétés anti-dérapantes ;
  - Augmenter la viscosité aux températures d'application.
- Enrobés épais (> 5cm), enrobés minces (3 à 4cm)
  - Assurer la résistance à l'orniérage ;
  - Améliorer le comportement à basse température ;
  - Améliorer le comportement à la fatigue.
- Couche d'assise de chaussée
  - Augmenter la résistance à la fatigue sous les chargements répétés du trafic ;
  - Apport d'une certaine flexibilité.
- Renforcement des chaussées
  - Minimiser l'épaisseur du rechargement.
- Membranes anti-fissures, imperméable
  - Augmenter la capacité d'allongement.

II.3 LES DIFFERENTS AGENTS MODIFIANTS

Les polymères thermoplastiques constituent la famille d'agents modifiants chimiques la plus utilisée pour la modification des bitumes.

Ils sont subdivisés en deux familles : les élastomères et les plastomères qui se distinguent, aux températures d'usage, par des comportements différents du point de vue, en particulier, de leur rigidité, de leur déformabilité et de leur résilience.

Pour les plastomères, la déformation élastique s'accompagne d'une déformation permanente qui peut être relativement importante.

La modification du bitume peut être obtenue avec d'autres agents modifiants que les polymères de synthèse, il s'agit notamment de la poudrette de caoutchouc et des latex. Il faut par ailleurs noter que des déchets de produits polymériques sont fréquemment utilisés comme la poudrette de caoutchouc de pneus usés et les polymères provenant des déchets municipaux comme le polyéthylène et le polypropylène.

Une liste des principaux agents modifiants du bitume employés en technique routière classés par catégorie est donnée dans le tableau 5.1 :

Tableau II.1. Principaux agents modifiants des bitumes **[44].**

Polymèresthermoplastiquesélastomères	
SBS	Copolymère styrène-butadiène-styrène
SIS	Copolymère styrène-isoprène-styrène
SB	Styrène-butadiène
SBR	Copolymère statistique styrène-butadiène
Polymères thermoplastiques plastomères	
EVA	Copolymère éthylène-acétate de vinyle
EMA	Copolymère éthylène-acrylate de méthyle
EBA	Copolymère éthylène-acrylate de butyle
PIB	Polyisobutylène
Latex	
CR	Polychloroprène
SBR	Caoutchoucstyrène-butadiène
NR	Caoutchouc naturel

D'autres additifs **[45]** ont montré leur apport plus ou moins bénéfique sur le comportement rhéologique des bitumes, il s'agit en l'occurrence de la lignine, le noir de carbone, le souffre et la résine époxyde.

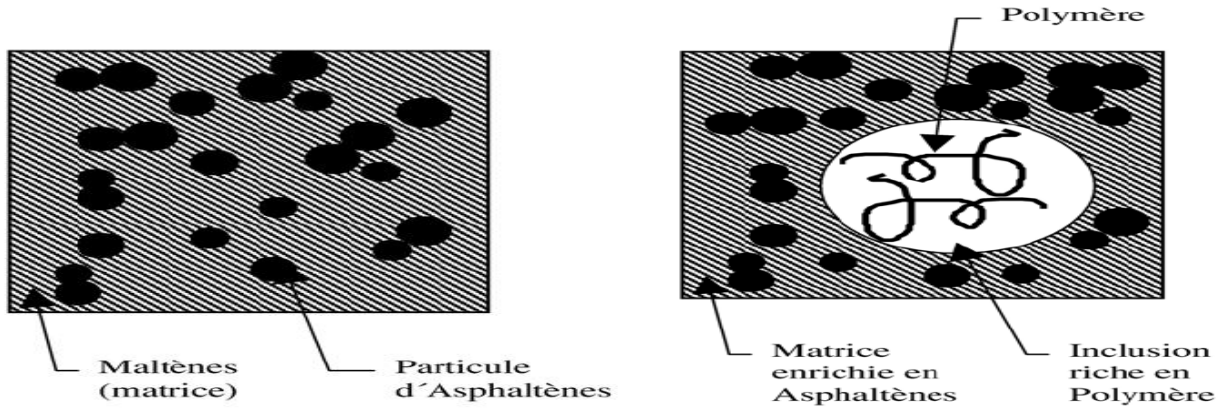
Des additifs de différentes natures peuvent être utilisés afin de modifier les caractéristiques des enrobés bitumineux. Ces ajouts sont introduits directement dans le malaxeur. Leurs performances sont appréciées directement sur le mélanges fini (l'enrobé).

Ils sont répartis dans les familles suivantes :

- les polymères ajoutés en centrale,
- les matières plastiques recyclées,
- les granulats de caoutchouc,
- les fibres de différents types (minérales, organiques, synthétiques ou métalliques) **[46],**
- les bitumes et asphaltes naturels.

II.4 Principes de la Modification des Bitumes

Dans les enrobés drainants très ouverts, les BMP sont recommandables pour épaissir le film de liant et lui permettre de résister plus longtemps à l'oxydation. Leur forte adhésivité trouve un champ d'application particulièrement indiqué là où les contraintes de cisaillement de surface sont des facteurs cruciaux (ronds-points, routes sinueuses, pistes de circuits de course…). Les procédés de fabrication en usine varient, selon les types de bitume, la nature du polymère et les propriétés recherchées. Le mélange à chaud peut être purement physique sous simple effet d'une agitation mécanique ou s'accompagner d'une réaction chimique comme la réticulation, obtenue par l'ajout d'un agent chimique, par exemple un dérivé soufré, au cours de laquelle un réseau tridimensionnel de polymère se forme au sein de la matrice bitume (Fig. II.1).



- Fig.II.1- Effet de la modification polymère sur la structure colloïdale du bitume : bitume original (haut) et BmP correspondant avec augmentation de la teneur en asphaltènes de la matrice (bas). Dans la réalité, la taille du domaine polymère est typiquement de 10 μm (voir couverture) quand celle des particules d´asphaltènes est de l´ordre de quelques nm.

II.4.1Compatibilité bitume-polymère

Tous les bitumes ne sont pas modifiables par des polymères. La compatibilité du bitume avec le polymère se traduit par un mélange bitume/polymère visuellement homogène auquel l'ajout de polymères confère des propriétés mécaniques intéressantes. Elle est étroitement liée à la stabilité de la structure colloïdale du bitume et à sa composition chimique [**47]**. Pour cela, le polymère ne peut être compatible avec le bitume que s'il est au moins gonflable ou mieux soluble dans la fraction huileuse des maltènes. Seuls les polymères thermoplastiques, les plastomères (en général les copolymères d'éthylène) et les élastomères (les copolymères séquentiels styrène-butadiène pour les plus connus), sont compatibles avec ce type d'utilisation.

II.4.2 Structure du mélange

La notion de compatibilité est une notion macromorphologique et non micromorphologique[**26]**. Le mélange idéal bitume/polymère a un aspect homogène à l'oeil nu, il est ainsi macrohomogène. En revanche, observé au microscope, il n'est pas formé d'une phase unique mais d'une phase polymère et d'une phase bitume finement imbriquées l'une dans l'autre [**48],** il est microhétérogène. Lors de l'ajout de polymères au bitume chaud, le polymère gonfle par absorption d'une partie des huiles des maltènes. Le bitume est alors appauvri en maltènes et enrichi en asphaltènes. Sa composition chimique et sa structure colloïdale sont largement modifiées. Les BmP ne forment pas une solution mais un mélange.

Des problèmes de stabilité peuvent donc se rencontrer lors du stockage du matériau. La stabilité thermique de ce nouveau liant dépend notamment de leur micromorphologie mais aussi de la composition du bitume de base [**49]**.

Le mélange biphasique peut présenter 3 structures différentes suivant la teneur en polymères du BmP [**48]** (Figure I-10). C'est le mode de dispersion des deux phases liquides qui est modifié :

- Si la teneur en polymère est inférieure à 4 % en masse, le bitume appauvri en maltènes constitue la phase continue dans laquelle le polymère gonflé par ces maltènes est dispersé. Le bitume est faiblement modifié par cet ajout, la température bille-anneau (TBA) n'est pas modifiée (Figure I-10).
- Si cette teneur est supérieure à 7 %, le polymère gonflé par une partie de la fraction malténique occupe un volume qui est de 5 à 10 fois plus élevé que le volume du polymère seul. La phase polymère constitue alors la phase continue dans laquelle le bitume est dispersé. Le liant devient un adhésif thermoplastique. La TBA a largement augmenté, le liant modifié est beaucoup plus dur que le bitume de départ. Il est peu utilisable en tant que revêtement routier.
- Pour une teneur intermédiaire, 5 % par exemple, les phases polymère et bitume sont continues et imbriquées l'une dans l'autre. La TBA se situe dans un domaine intermédiaire. Cette modification permet une augmentation souhaitée de la consistance du liant. On cherchera, en général, à travailler dans ce domaine.

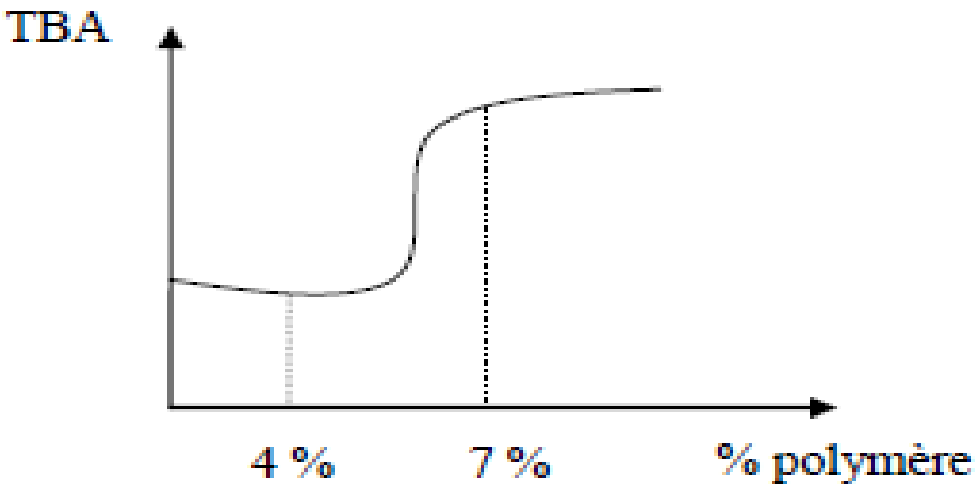


Figure II.2 : Evolution de la viscosité d'un BmP en fonction de la teneur en polymère

II.5 Propriétés du mélange

En général, une modification aux polymères renforce la consistance à chaud (diminution du fluage) et/ou améliore la souplesse à froid (diminution de la fragilité aux basses températures) [**7]**. Le gonflement du polymère par absorption d'huiles malténiques a pour effet d'enrichir la phase bitume en résines et en asphaltènes. Ceci se traduit par une augmentation de la viscosité de la phase bitumineuse. Le liant devient plus élastique et plus résistant à l'écoulement [**49]**.

II.5.1 Bitumes modifiés par des élastomères

Les élastomères utilisés sont des copolymères styrène-butadiène-styrène (SBS), styrèneisoprène- styrène... Lors du mélange du bitume et du copolymère, les blocs centraux élastomériques, butadiène ou isoprène, du polymère absorbent une partie importante des huiles malténiques. Sous cette action, ils gonflent occupant un volume 5 à 10 fois supérieur à celui du volume de départ du polymère. Aucune trace de polymère n'est observée dans la phase bitume car ce type de polymère n'est pas soluble dans le bitume.

D'un point de vue composition chimique, Dony et Durrieu ont étudié l'influence de la nature du bitume de base sur les propriétés des bitumes modifiés par 5 % de copolymère SBS [**50]**. Dans cette étude, les auteurs ont seulement changé la nature du bitume de base. Il en ressort que quelque soit la nature du bitume de base, le taux de gonflement du polymère est constant dans les différents cas testés, mais la teneur en asphaltènes augmente différemment d'un BmP à l'autre. Elle est multipliée d'un coefficient 1,1 à 1,5. Les composés saturés et aromatiques diminuent eux aussi dans tous les cas, à des taux variables. Brûlé rapporte par ailleurs que l'aromaticité des maltènes joue un rôle important sur la compatibilité SBS bitume [**49]**.

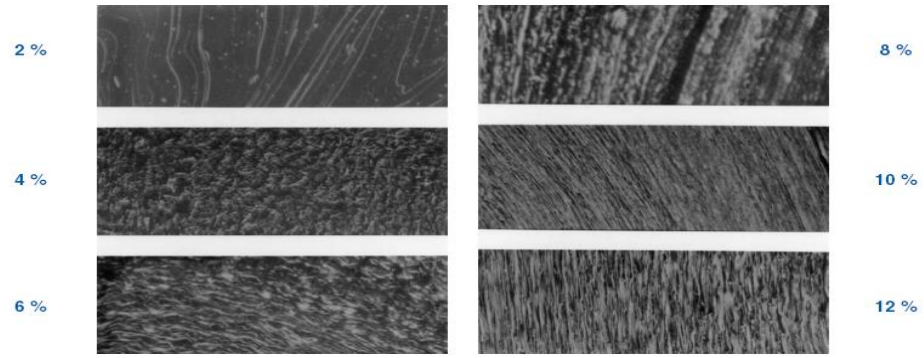


Figure II.3 : Mélanges bitume/SBS à teneur croissante de polymère (microscopie de fluorescence)

Outre une influence sur la composition chimique du mélange, la modification aux polymères influe sur les propriétés du mélange [**49]**. Ainsi, comme nous l'avons vu, la TBA du BmP diffère de celle du bitume pur. Cette augmentation est due :

- d'une part à la masse moléculaire des séquences polystyrène et polybutadiène,
- d'autre part à la teneur en huile saturée du bitume.

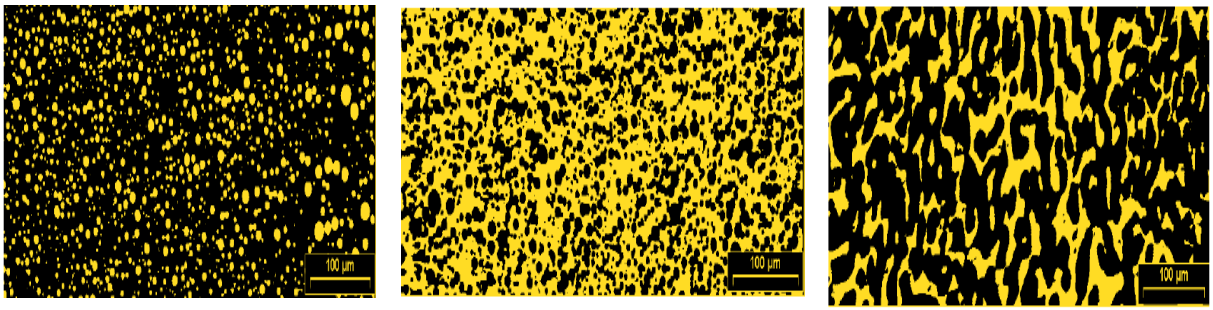
La composition du polymère influe peu sur le taux de gonflement. Selon Brion [**26]**, le taux de gonflement du polymère varie légèrement et en sens inverse de la concentration en styrène dans le polymère. Le mode de préparation peut aussi avoir une influence sur le taux de gonflement, notamment les agitateurs et la température d'élaboration du mélange.

La modification du bitume par des élastomères induit des différences de comportement rhéologique. Le bitume modifié par le SBS présente, à basse température, une meilleure flexibilité que le bitume pur. La situation s'inverse à haute température. Le comportement d'un BmP est plus élastique que celui du bitume pur.

II.5.2 Bitumes modifiés par des plastomères

Les polymères utilisés sont des copolymères éthylène-acétate de vinyle (EVA), éthylène-acrylate de méthyle (EMA), éthylène-acrylate de butyle (EBA) et les polyisobutylènes. Les EVA ayant une teneur en acétate de vinyle de 18 à 33 %, sont particulièrement adaptées à la modification de bitume en vue d'une utilisation en techniques

Routières [**51]**. Brion et Brulé **[26]** ont mis en évidence un gonflement de la phase polymère lors de l'ajout du polymère mais contrairement à ce qu'il se passe avec les élastomères, la phase bitume contient aussi une fraction polymère. Il y aurait une solubilisation partielle des plastomères dans le bitume.



a) Microstructure d'un bitume plastomère à matrice bitume continue

b) Microstructure d'un bitume plastomère à matrice polymère continue

c) Microstructure d'un bitume plastomère à matrice mixte

Fig. II.4- Descriptif des microstructures de BmP

Le comportement du BmP dépend de la teneur en plastomère. Ainsi, aux faibles teneurs en plastomères (inférieures à 5 %), la modification des propriétés est due essentiellement à l'augmentation de la teneur en asphaltènes de la phase bitume. Dans ce cas, le choix du bitume d'origine est prépondérant. Les copolymères d'éthylène sont qualifiés de semi-cristallins, les séquences polyéthylène étant susceptibles de cristalliser. Cette cristallinité est d'autant plus importante que la teneur en comonomères acétate de vinyle est faible. Une augmentation en comonomères diminue la cristallinité du liant et augmente sa flexibilité. Cette diminution de la rigidité du liant est accompagnée d'une amélioration des propriétés à basse température ainsi que d'une augmentation de l'adhésivité et de la compatibilité avec les granulats [**52]**. Par ailleurs, une augmentation de la masse moléculaire du polymère s'accompagne :

- d'un mélange plus difficile avec le bitume,
- d'une diminution de la rigidité du liant,
- de propriétés mécaniques améliorées, notamment en traction,
- d'un comportement élastique plus prononcé.

Ainsi, suivant le choix du plastomère, selon sa cristallinité et sa masse moléculaire, il est possible d'orienter les propriétés du mélange final. L'addition de PIB (polyisobutylène) aux bitumes routiers en diminue la fragilité à froid. L'utilisation conjointe de PIB et d'EVA, telle que l'a proposée Lesage [**53]**, permet d'améliorer simultanément le comportement à haute et basse température par cumul des qualités des 2 polymères.

Par ailleurs, lors de l'enrobage, Wegan et Brulé [**54]** ont mis en évidence qu'une partie de la phase polymère semble se concentrer autour des granulats. Le reste de cette phase est dispersé sous forme de globules dans le bitume.

Les BmP modifiés aux plastomères ou aux élastomères ont une susceptibilité thermique plus faible que le bitume pur de départ. Les propriétés escomptées pour le BmP conduisent au choix du copolymère à utiliser.

II.5.3 Comparaison

Chappat et Durand [**55]** ont étudié la modification aux élastomères et aux plastomères, via les essais SHRP, en comparant les indices de plasticité, avant et après vieillissement. L'indice de plasticité est défini par la différence entre les températures T1 et T3 caractéristiques des essais SHRP définis au paragraphe I.1.1.6.2.2.1. De ce point de vue, il apparaît que la modification par des élastomères est 2 fois plus efficace qu'une modification aux plastomères.

L'indice de plasticité obtenu par un liant modifié avec 3.5 % d'élastomères (SBS) est en effet

de 110°C pour un liant vieilli et de 105°C pour un liant neuf. Pour un bitume modifié par des plastomères (EVA), cet indice est obtenu avec un taux de plastomères ajouté au bitume de 7 %. Cependant il est nécessaire de garder à l'esprit qu'une modification d'un bitume par des polymères est fortement influencée par le bitume de base et par le polymère utilisé. Les études sont menées dans des cas particuliers difficilement comparables

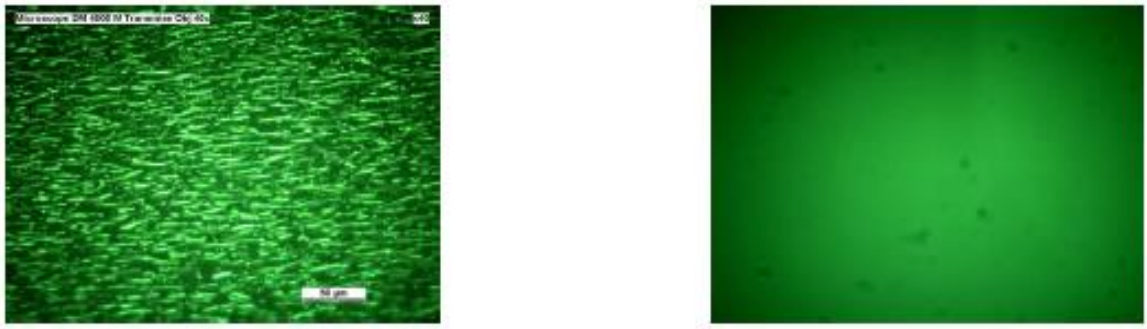
II.6 Méthodes de caractérisation du mélange :

De nombreuses techniques analytiques peuvent être utilisées pour caractériser un BmP[**56]**. Ainsi, la spectroscopie infrarouge et la RMN du proton permettent l'identification du polymère. La chromatographie sur gel perméable (GPC) peut compléter ces analyses par un dosage du polymère. Mais l'utilisation de la GPC implique une détermination préalable de la nature du polymère. Les techniques de spectroscopie UV [**57]** permettent d'observer la structure des BmP. Eclairé en lumière excitatrice, le bitume seul n'est certes pas observable. Mais lorsque le polymère est intimement lié à certains composants de ces bitumes, le polymère répond à l'excitation par la lumière UV.

Si les essais traditionnels, pénétrabilité, température bille-anneau, sont parfaitement adaptables aux BmP, ils ne définissent pas la performance de l'enrobé. La structure du liant bitumineux modifié dans l'enrobé n'est pas toujours identique à celle du BmP avant l'enrobage [**54]**. D'après Brûlé et coll. [**58],** les essais les plus acceptables pour la prédiction des propriétés des enrobés se basent préférentiellement sur l'approche SHRP.

II.6.1 Les autres modifications

La faible affinité bitume/polymère diminue considérablement la stabilité au stockage, et engendre un vieillissement prématuré du liant [**59]**. Pour pallier à cela, Puls et coll.[**60]** ainsi que Planche et coll [**61]** ont chacun mis au point leur propre procédé de BmP réticulé au soufre. La réticulation améliore la compatibilité du mélange bitume-polymère, par formation de ponts soufrés entre les chaînes polymère et des molécules du bitume [**7]**. La dispersion du polymère est alors bien meilleure et la solution se rapproche d'une solution homogène. Des observations au microscope à fluorescence UV soulignent la meilleure dispersion des polymères dans les BmP réticulés au soufre (Figure I-11-a, b). Le phénomène de séparation de phase est largement diminué. On constate par ailleurs une diminution des problèmes de rigidité.



a) Bmp non réticulé b) BmP réticulé au soufre

Figure II.5 : Observations en microscopie UV des BmP (grossissement *40)

Cette technique connaît aussi certaines limites. Ainsi les produits soufrés utilisés ont une toxicité importante ce qui se traduit par une corrosion accrue des appareils de mise en oeuvre. Brûlé et coll.[**62]** préfèrent quant à eux un nouveau procédé de fabrication basé sur une augmentation de la température de 180 à 250°C, lors du mélange du bitume et de l'élastomère. L'augmentation de la température de mise en oeuvre améliore l'affinité bitume/polymère sans aucune conséquence néfaste tant au niveau de l'oxydation du bitume qu'au niveau de ses propriétés mécaniques. Par ailleurs, pour une même température d'enrobage, les propriétés mécaniques à basse température sont mêmes meilleure que celles d'un BmP classique. La température bille-anneau est augmentée et la pénétrabilité est diminuée par rapport à un BmP classique.

De leur côté, Ernst et coll[.**63]** modifient le bitume avec des polymères contenant des fonctions isocyanates libres. Ces polymères sont formés à partir d'un polyisocyanate, d'un polydiène-polyol et d'un copolymère d'éthylène contenant des fonctions hydroxyles. La réticulation du polymère a lieu après compactage par action de l'oxygène de l'air. Ce liant a été testé selon les critères SHRP. Une addition de 10 % de ces polymères augmente la température maximale d'utilisation T1 de 19°C, la température minimale d'utilisation T3 du liant n'augmentant quant à elle que de 2,3°C. En outre, une moindre sensibilité au kérosène a été mise en évidence. Ce liant est particulièrement adapté aux zones où les températures sont élevées.

Pour pallier aux problèmes de stockage des BmP et aux problèmes de toxicité du soufre évoqués précédemment, Dempsey et Bellomy[**64]** ont ajouté au bitume des amides linéaires de type R1-CO-N-(CH2)x-N-CO-R2 (éthylène bis-stéramide). L'amide est ajouté à des bitumes purs, à des taux variant entre 0,5 et 3 % aussi bien qu'à des BmP pour lesquels le taux d'amide varie de 0,1 à 0,3 %. Ce nouveau liant a été étudié selon les critères SHRP. Il en ressort que la température maximale d'utilisation T1 d'un bitume pur modifié par 2,5 %

D'amide peut augmenter de 18°C alors que la température minimale reste constante. Il est intéressant de préciser que, lors d'une modification d'un bitume par 2,5 % de polymère et par 1,5 % d'amide, les actions de l'amide et du polymère se cumulent. Ainsi, l'ajout du polymère seul permet une augmentation de 6°C de la température maximale d'utilisation T1 définie par les essais SHRP et une diminution de 6°C de la température minimale d'utilisation T3 définie par les mêmes essais. L'addition conjointe de l'amide et du polymère permet une augmentation de 6°C supplémentaires de la température maximale T1. L'indice de plasticité, défini par la différence T1-T3, est, par conséquent, largement augmenté. Ce bitume modifié permet à l'enrobé d'être moins sensible à l'orniérage, puisque la température T1 a été augmentée de 12°C. A froid, il résiste mieux à la fissuration dans la mesure où la température T3 a été diminuée de 6°C. Ainsi les effets des deux polymères se cumulent.

Shuey et Custer [**65]** se sont plus particulièrement intéressés aux problèmes d'adhésivité. Pour cela, ils ajoutent préférentiellement 0,1 à 1 % d'extraits végétaux contenant des polyphénols traités avec de l'ammoniac. Ces extraits végétaux proviennent essentiellement du quebracho. Utilisé à chaud, cet additif permet d'augmenter l'adhésivité et la résistance à l'abrasion.

Par ailleurs, un ajout de 1 % d'extrait de quebracho au bitume augmente la température bille-anneau du liant de 15°C, diminue de 2 dmm la pénétrabilité. Ainsi, la viscosité du bitume augmente fortement. De plus, la résistance au désenrobage d'un enrobé fabriqué avec ce nouveau liant peut augmenter jusqu'à 12 % par ajout de 0,5 % de NPVE (natural polyphenolic-containing vegetable extract), et atteindre la valeur de 89,7 % de tenue au désenrobage, par combinaison avec un agent « anti-désenrobage » classique. De plus, cet ajout permet, en outre, une meilleure stabilité au stockage.

Une autre possibilité de modification [**59]** de bitume consiste à ajouter un polymère inorganique, non oxydant, l'APP (Acide Polyphosphorique) sur des bitumes purs et sur des BmP. Un ajout de 1,2 % d'APP sur un bitume pur diminue la susceptibilité thermique du liant et augmente son caractère élastique. Par ailleurs, le comportement d'un bitume pur modifié avec 1,2 % d'APP est similaire à celui d'un bitume modifié par 4 % de styrène-butadiènestyrène (SBS). Une attention particulière doit être portée au type de bitume utilisé. Ainsi, le bitume naphténique est beaucoup plus sensible à la modification à l'APP qu'un bitume par affinique. L'APP peut également être ajouté à des BmP. Ainsi un bitume modifié par ajout de 3 % de SBS a des caractéristiques rhéologiques similaires à celles du même bitume modifié par ajout de 0,5 % d'APP et de 1,5 % de SBS. L'ajout de cet acide inorganique permet de diminuer la quantité de SBS dans le liant modifié. Ce nouveau liant

Présente un caractère élastique plus prononcé, les propriétés dues au polymère et à l'APP se cumulent. pour interpréter ces résultats, les auteurs ont émis l'hypothèse d'interactions APP-asphaltènes covalentes de type ester. Ainsi les agglomérats d'asphaltènes seraient détruits et la surface des particules polaires dans la phase malténique serait augmentée. L'organisation colloïdale du bitume est modifiée et le comportement rhéologique aussi.

Sainton et coll. [**66]** ont quant à eux montré les avantages d'un ajout de chaux. Au départ la chaux est utilisée pour pallier aux problèmes d'adhésivité du liant sur le granulat. La chaux réagit à la fois avec le bitume et avec le granulat, elle modifie ainsi le comportement de l'enrobé. Outre l'amélioration de la tenue au désenrobage, elle permet une résistance plus importante aux phénomènes d'orniérage, une plus grande souplesse à faible température et une meilleure tenue au vieillissement du bitume.

Les modifications du bitume par ajout de polymères améliorent donc les propriétés mécaniques du liant mais ne résolvent pas encore les effets néfastes d'un point de vue écologique et d'un point de vue sanitaire, de la mise en oeuvre du bitume et des enrobés.

CHAPITRE III

I : PROTOCOLE EXPERIMENTALE ET METHODES ANALYTIQUES

III.1) Introduction :

Ce chapitre est essentiellement constitué de deux parties. La première porte sur la description de la préparation des échantillons et la seconde dans laquelle nous décrivons les protocoles expérimentaux que nous avons utilisés pour l'étude de la modification du bitume par des déchets polymériques.

II1. 2) -Problématique

Les chaussées routières sont en permanence soumises à des sollicitations mécaniques et Thermiques combinées avec des phénomènes chimiques qui vont participer, plus ou moins rapidement selon leurs niveaux de sollicitation, à la dégradation du revêtement. Ces éléments, responsables des dégradations, ont pour origine:

1- les sollicitations du trafic : principalement les effets dynamiques dus aux passages répétés des poids lourds, les effets statiques lors du ralentissement du trafic et les frottements de surface pneu-chaussée ;

2- les sollicitations climatiques: entraînant des variations de température au sein des enrobés Bitumineux. Ces variations sont soit de courte durée (journalières) ou soit de longue durée (Saisonnières) ;

3- les phénomènes chimiques : dus à l'oxydation naturelle des liants hydrocarbonés, à l'action Des sels de déverglaçage provenant des entretiens hivernaux, et aux dégradations de surface de la chaussée par le rayonnement solaire. Ces actions diverses, agissant simultanément sur le revêtement bitumineux conduisent aux dégradations couramment observées, notamment:

- les fissurations de surface sous la forme de fissures isolées ou, dans les cas les plus graves, Sous la forme de faïençage généralisé ;
- les déformations permanentes (ou orniérage) suite à l'accumulation de déformations Irréversibles ;
- les dégradations de surface sous la forme de polissage des granulats, les dés enrobages et perte de gravillons, les pelades et les nids de poule.

Un des phénomènes de dégradation de surface des revêtements visible dans des points singuliers du réseau routier est l'arrachement de granulats à la surface des revêtements après un ou plusieurs passages de véhicules lourds (Fig. 1.1).

Figure III.1-Descriptif des quelques cas de dégradation en surface

Le suivi des points singuliers par les gestionnaires routiers montre que ce problème d'arrachement dépend d'un grand nombre de facteurs dont la géométrie de la route, le type d'essieu, les caractéristiques du pneumatique et du revêtement qui constituent la surface d'échange pour la sollicitation et des conditions environnementales.

Ces exigences se combinent avec celles d'imperméabilité, de résistances mécaniques (orniérage, fissuration, fatigue) et de tenue au vieillissement, ce qui fait que la meilleure réponse globale est un compromis, sous la forme de liants bitumineux modifiés ou spéciaux.

Le bitume pur, lorsque son grade est bien choisi pour le produit bitumineux concerné (enrobé ou enduit) et dans une application donnée répond dans une grande majorité de cas à l'objectif qui est de garantir des propriétés d'adhésion et des propriétés mécaniques satisfaisantes dans les conditions de trafic et de climat auxquelles on a affaire.

Les matériaux bitumineux, qui sont des mélanges de granulats et de liant hydrocarboné, sont de très loin les plus utilisés pour constituer les enrobés des structures routières. Dans le mélange, le liant assume le rôle d'agent de cohésion entre les particules granulaires pour former un corps rigide. Les mélanges bitumineux sont thermiquement et cinétiquement susceptibles, propriétés héritées des caractéristiques du liant hydrocarboné.

Dans cette situation, on pourra chercher à accroître la capacité structurelle par l'emploi d'un liant de plus grande rigidité sans pénaliser la résistance en fatigue par un accroissement de la teneur en liant ou l'emploi d'un bitume modifié ou spécial.

III.3) Présentation de lieu de stage :

Note travail de fin d'étude à été effectué au sin de l'entreprise NAFTAL Spa est une société nationale de commercialisation et de distribution de produits pétroliers. La Branche Carburants, est l'une de ses Branches, qui assure la Satisfaction en produits Aviation, Marine et stockage des carburants terres des besoins des clientèles nationales et étrangères.

L'activité de distribution des produits pétroliers a été assurée par SONATRACH jusqu'à l'application de décret 80-101 Avril 1980 portant création de l'entreprise National de raffinage et de distribution des produits pétroliers (ERDP).

Entrée en activité le : 1 janvier 1982, elle est chargée de l'industrie du raffinage et de la distribution des produits pétroliers sous le sigle NAFTAL.

L'ERDP a été modifié par le décret 87-189 du 25 Aout 1987 qui sépare les activités de raffinage et de distribution des produits pétroliers par la création de deux entreprises NAFTAL et NAFTEC.

La raison sociale de la société change suite à cette séparation des activités et NAFTAL est désormais chargée de la commercialisation et de la distribution des produits pétroliers et dérives.

A partir de 1998, elle change de statut de devient Société par actions finale a 100% de SONATRACH.

1.1. Présentation de l'entreprise NAFTAL

L'entreprise NAFTAL constitue un facteur très important dans la mise en œuvre de la politique énergétique nationale, elle met en place une nouvelle stratégie et un nouveau mode de fonctionnement qui lui permet l'évolution dans le marché concurrentiel de plus en plus ouvert.

● NAFTAL (l'entreprise Nationale de Commercialisation et de distribution de produits pétroliers) : Est chargée de la distribution et de la commercialisation des produits pétroliers sur le Marche national dans les domaines suivants : Distribution, Stockage et commercialisation des carburants terre et aviation marine, GPL, Lubrifiants, bitumes, Pneumatique, produits spéciaux.

● Enfutage GPL.

● Formulation des bitumes.

● Transport des produits pétroliers.

Pour assurer la disponibilité des produits sur tout le territoire, Naftal met à contribution plusieurs modes de transport :

• Le cabotage et les pipes, pour l'approvisionnement des entrepôts à partir des raffineries.

• Le rail pour le ravitaillement des dépôts à partir des entrepôts.

• La route pour livraison des clients et le ravitaillement des dépôts non desservis par le rail.

A l'ère de la mondialisation, Naftal a jugé indispensable la mise en place d'une nouvelle organisation par ligne de produit (bitumes, lubrifiants, réseaux, logistique, GPL, pneumatique, Aviation, Marine).

Naftal fournit près de 13,3 millions de tonnes de produits pétroliers par an, un chiffre appelé à augmenter avec une demande en constante croissance.

Elle a également mis en place une nouvelle vision stratégique à moyen terme orientée client avec un plan de mise en œuvre.

● NAFTEC : chargée du raffinage, a pour mission l'organisation, la gestion, la promotion et le développement de l'industrie du raffinage.

Pour assurer la disponibilité des produits sur tout le territoire, Naftal met à contribution plusieurs modes de transport :

• Le cabotage et les pipes, pour l'approvisionnement des entrepôts à partir des raffineries.

• Le rail pour le ravitaillement des dépôts à partir des entrepôts.

• La route pour livraison des clients et le ravitaillement des dépôts non desservis par le rail.

A partir de 1998, NAFTAL change de statut de devient société par actions, filiale 100% SONATRACH. Son capital social est fixe à la somme 6 650 000 000 DA, il est passe respectivement à 12 650 000 000 DA en Aout 2002, puis a 15 650 000 000DA en Novembre 2002.

Les nouvelles données économique, NAFTAL opte pour une nouvelle organisation de direction mixte c'est-à-dire une structure par produits et par fonction.

III.4 Démarche globale du l'étude adoptée

Ce travail s'inscrit dans un cadre général de la modification des performances de bitume en incorporant des déchets polymériques. Afin de répondre à cette problématique, nous avons adopté une démarche qui porte d'une part sur les choix des matériaux agrosourcés (huile d'olive) et déchets à recycler et d'autre part sur l'optimisation d'un procédé de modification simple et qui garanti la qualité du collage entre le bitume et le granulat lors de l'enrobés.

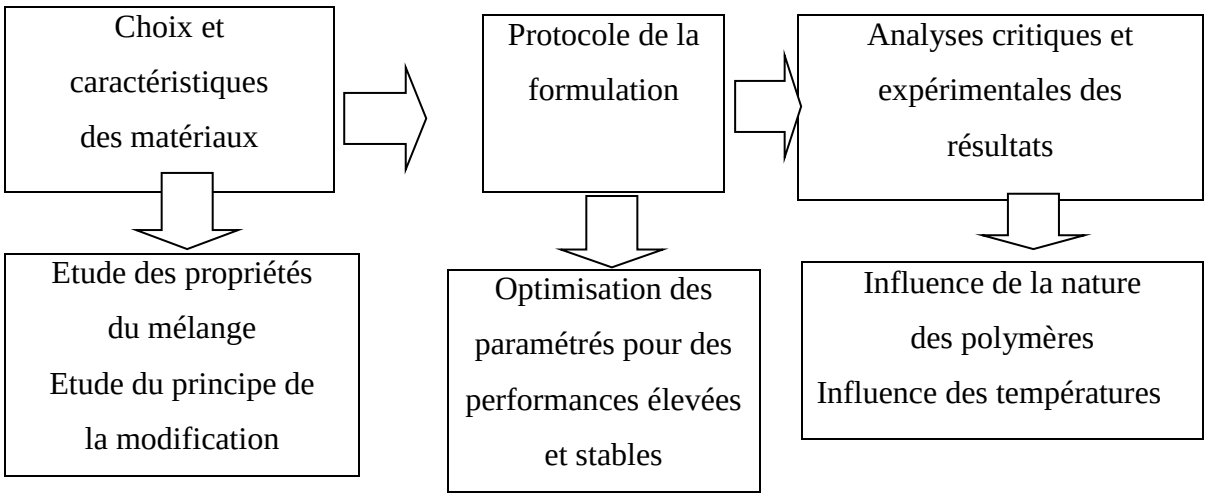


Figure III.2 : organigramme de la démarche globale du travail

III.5) Etude expérimentale :

III.5.1) Réactifs :

- bitume de grade 40/50

- acide sulfurique H2SO4 à 98 %

- Poudrette caoutchoutée

- Huile d'olive
- polyéthylène
-toluène
- glycérol
-Eau distillé

III.5.2) Matériels :

- agitateur mécanique

- appareille spectroscopie infrarouge

- appareille de pénétrabilité (E.N.ld.h/1)

- appareille de point ramollissement (E.N.ld.h/1)

- appareille de ductilité

- plaque chauffant

- ballon de 250 ml

- thermomètre

- bain marie

- bécher

III.6) Le Protocole opératoires :

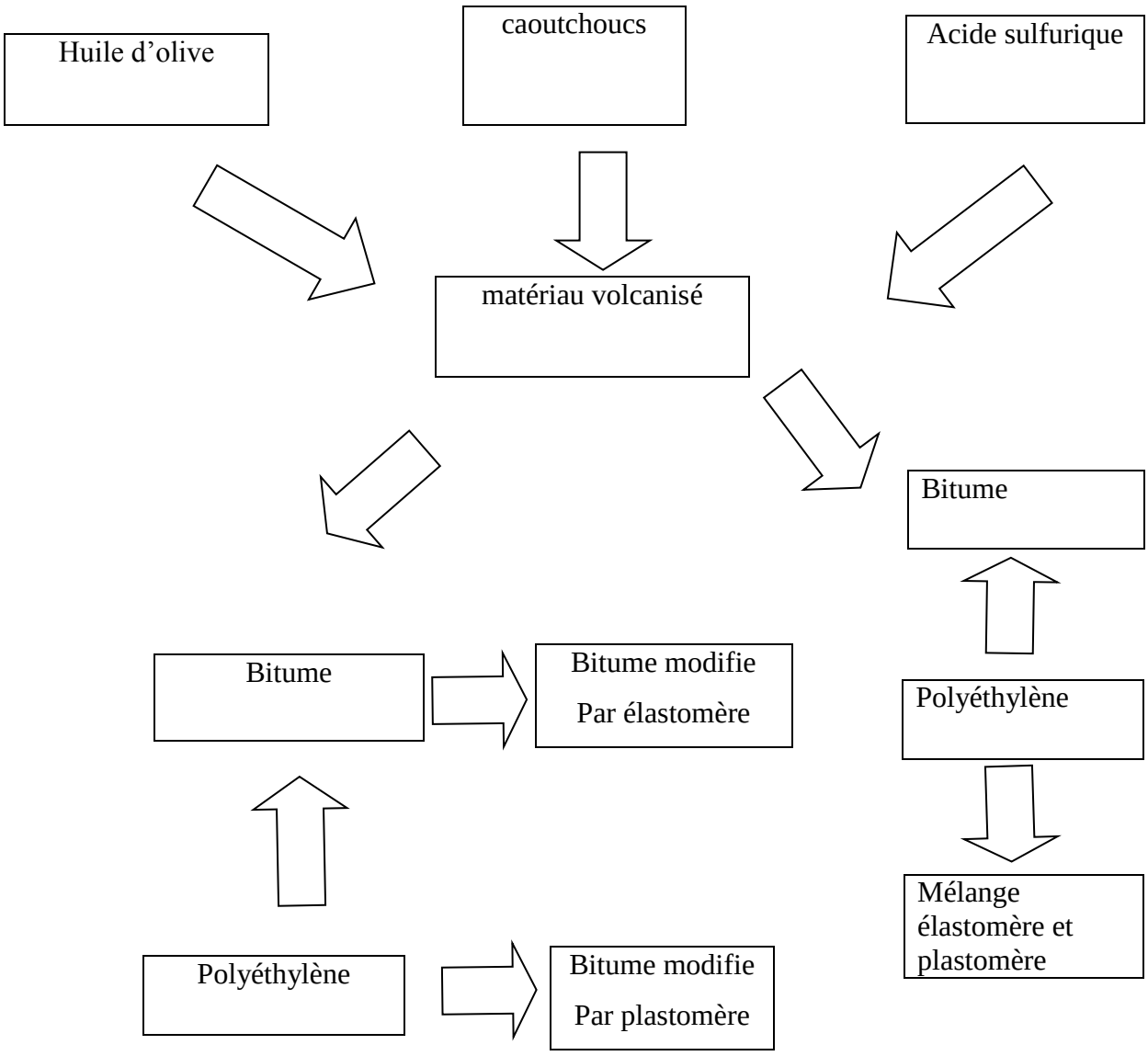


Figure III.3 Démarche globale de l'étude expérimentale

III.6.1) Etude des caractéristiques des liants modifiés par élastomère :

La première partie de la modification concerne le bitume en utilisant mélange caoutchouc.

Préparation de matériau vulcanisé

III.6.1.1) Préparation de matériau vulcanisé

Pour la modification du bitume, on procède tout d'abord à la préparation du matériau vulcanisé

- matériau vulcanisé à partir du caoutchouc (déchet : pneu …)

Figure III.2 : Poudrette caoutchoutée.

Dans une première étape, chauffez sous agitation à une température (vitesse de rotation est de : 1500 rpm) l'huile d'olive avec pourcentage de (60% ,65% 70%) et la poudrette de caoutchouc progressivement avec un taux massique de (15 % ,10% ,5%) et (25 %) acide sulfurique pendant 2.5h, la température est maintenue constante 160 C° . La masse obtenue est appelée matériau volcanisé, on la désigne sous : MV1, MV2, MV3. Les échantillons proposés en fonction de leurs compositions, sont décrits dans le tableau suivant :

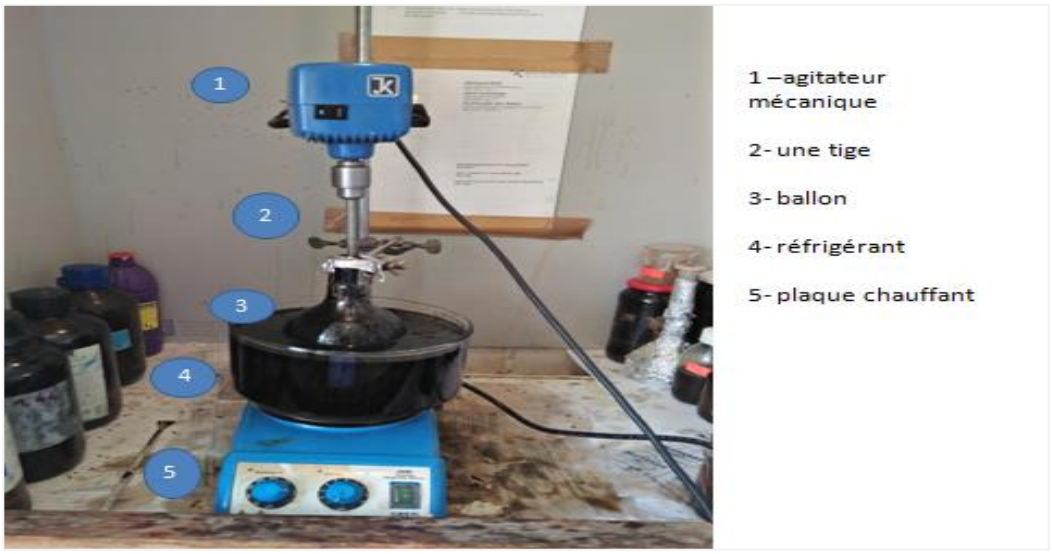


Figure III.4 : montage de préparation de matériau volcanisé

Etape 1

Etape 2

Etape 3

Etape 4

etape 5

Figure III.5 : différentes étapes de préparation du materai vulcanisé

La deuxième partie de la modification concerne le bitume 40/50 en utilisant un polymère le caoutchouc la figure III.5

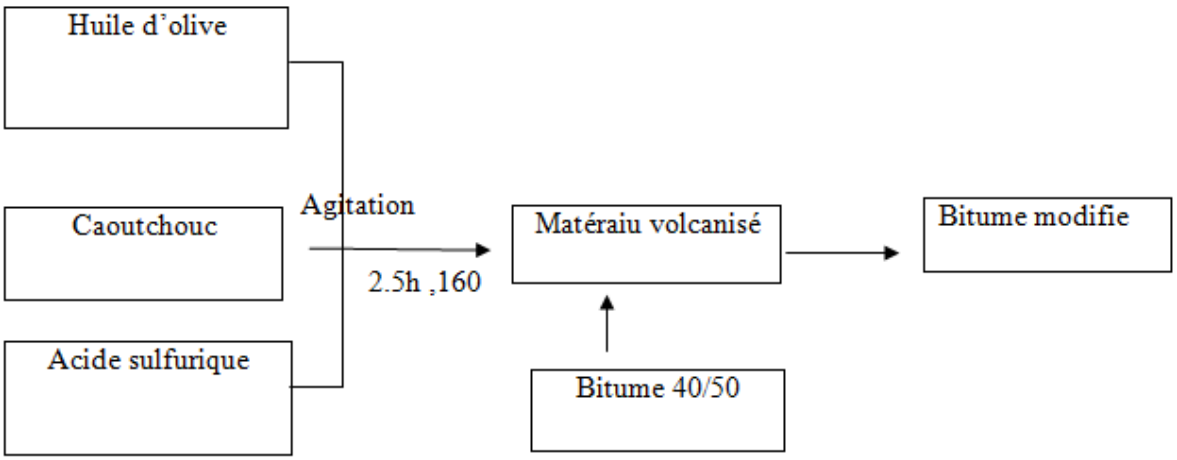


Figure III.6 : schéma de préparation d'un bitume modifie par caoutchouc

III.6.1.2- modification du bitume par plastomère

La deuxième partie de la modification concerne le bitume 40/50 en utilisant un polymère le Polyéthylène. Cette étude consiste à déterminer le temps de malaxage, la température, la Pénétrabilité, la TBA et la ductilité.

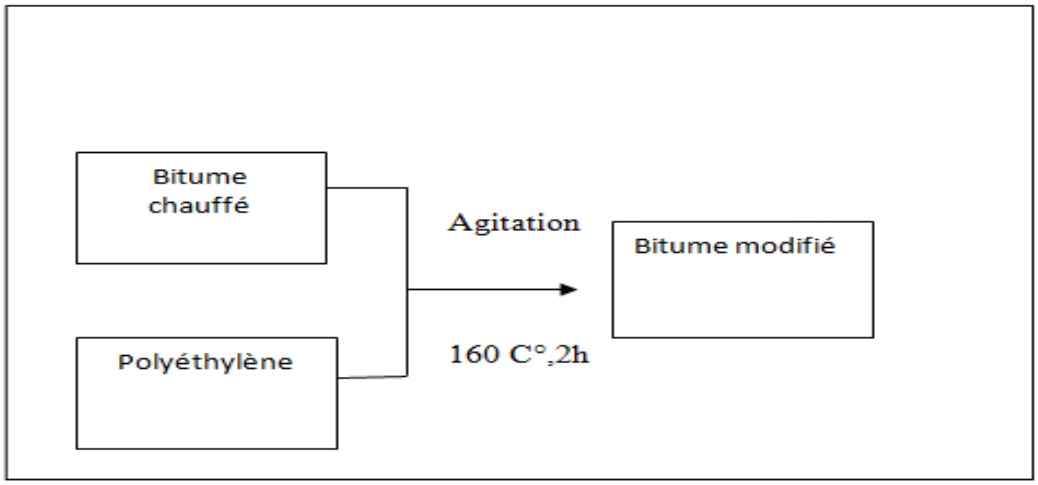


Figure III.7: Schéma de préparation d'un bitume modifié par polyéthylène

Chauffer tout d'abord le bitume (95% masse) jusqu'à 110 C° et sous agitation (15 min), dans un réacteur thermostat fermé, incorporer 5 g le polymère (le polyéthylène PE (sachet) pendant 2h

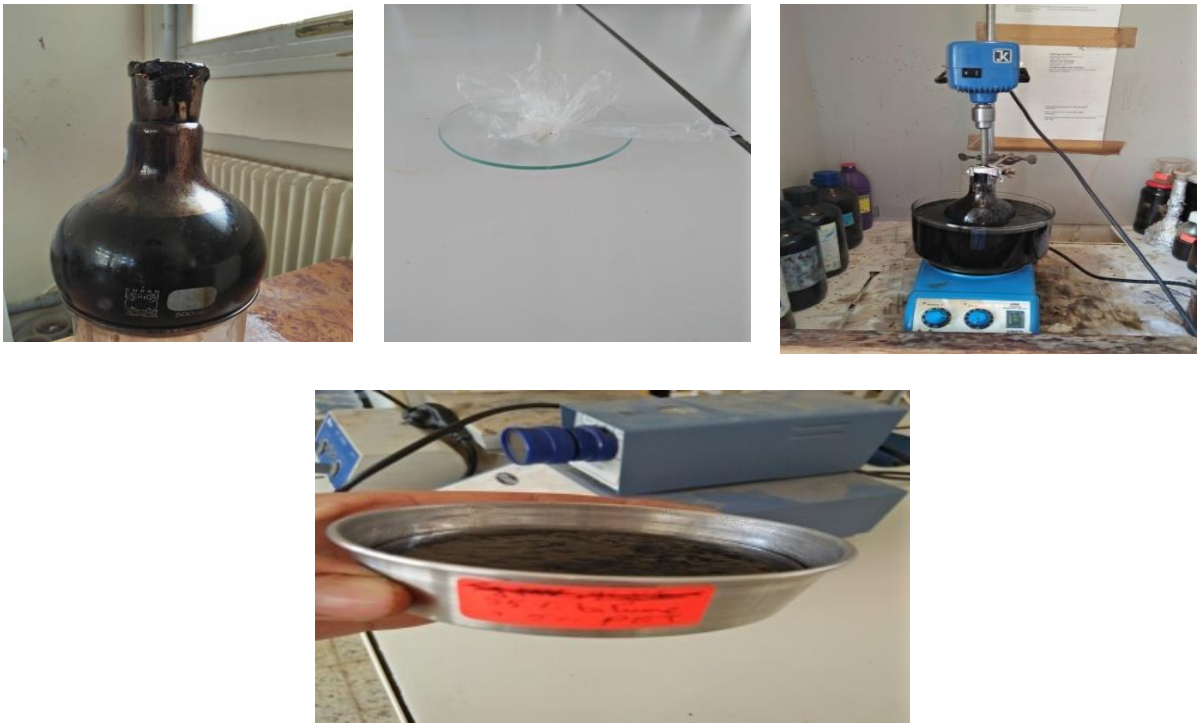


Figure III.8 : différentes étapes de préparation un mélange plastomère

III.6.1.3- mélange élastomère et plastomère

Le bitume peut aussi être modifié par adjonction d'un mélange des polymères (par exemple :

Un élastomère et d'un plastomère). Ces liants fortement modifiés peuvent être utilisés dans divers types d'enrobés de couche de roulement sur des sites fortement sollicités Pour lesquels on attend une amélioration importante des résistances à la fissuration et à L'orniérage. Dans le cas de cette étude, on procède à la préparation d'un mélange bitumineux Modifié par un élastomère (caoutchouc butyle) et une polyoléfine (polyéthylène).

3-a Préparation des échantillons

Dans une première étape on procède à la préparation du matériau vulcanisé comme est précisé Plus haut (Mv1, Mv2, et Mv3). Les liants-MV situent et PE de (0-5 %) sont tout d'abord bien agités afin d'assurer une bonne homogénéité du fluide pendant une durée de temps de minimum 2h.

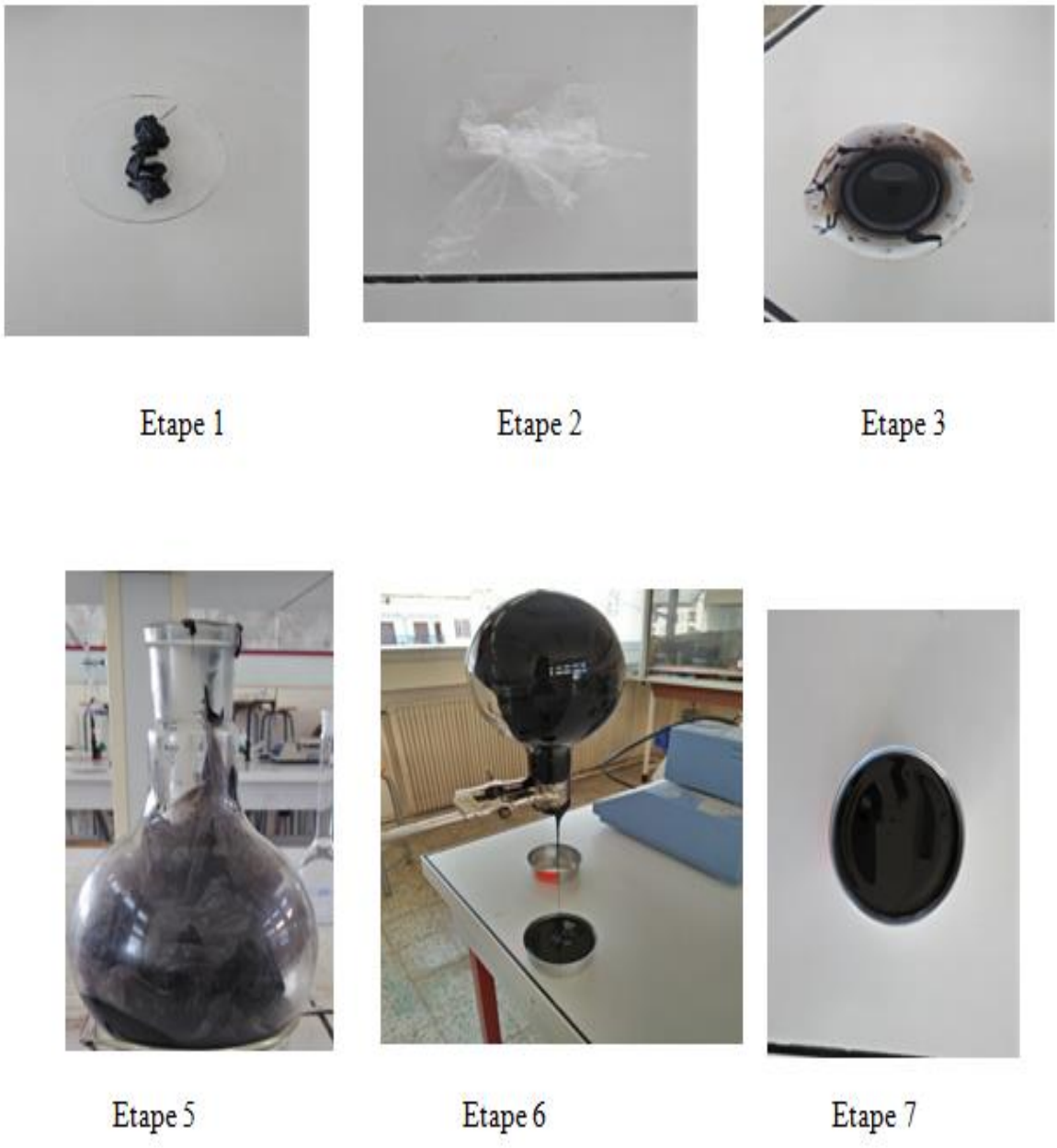


Figure III.9: différentes étapes de préparation un mélange élastomère

III. 7 Méthode d'analyse spectrale

III.7.1 Analyse par spectroscopie infrarouge

Nous avons utilise un appareil dans intervalle 500-4000 cm^{-}, la spectroscopie infrarouge permet de déterminer les vibrations des molécules caractéristiques les fonctions chimiques, lorsque l énergie apportée par le faisceau lumineux correspond à l'énergie de vibration de la molécule, cette dernier absorbe le rayonnement et une diminution de l'intensité réfléchie ou transmise est énergétique, le domaine infrarouge entre 4000 cm^{-} et 400 cm^{-} correspond au domaine d'énergie de vibration des molécules .

Cette technique d'analyse peut aussi permettre d'observer la création de nouvelles liaisons chimique, elle permet précisément de déterminer la présence de groupement fonctionnel dans les molécules organiques et les structure de certaines molécules simples

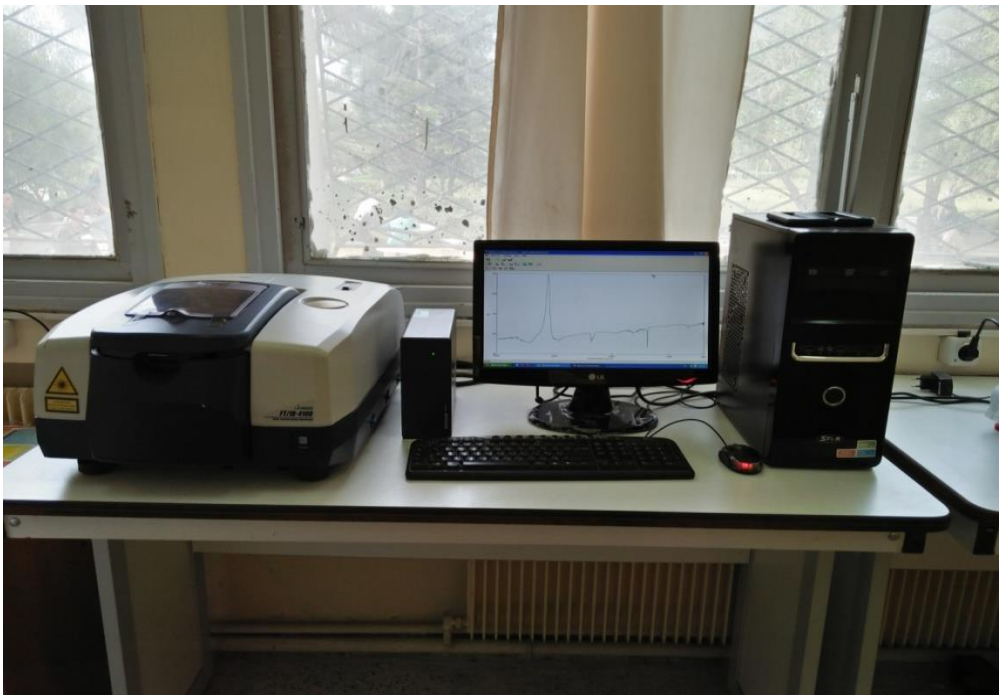


Figure III.10 : spectromètre IFIR de model JASCOIFTR-4100

Figure III.11 : Pesteuse

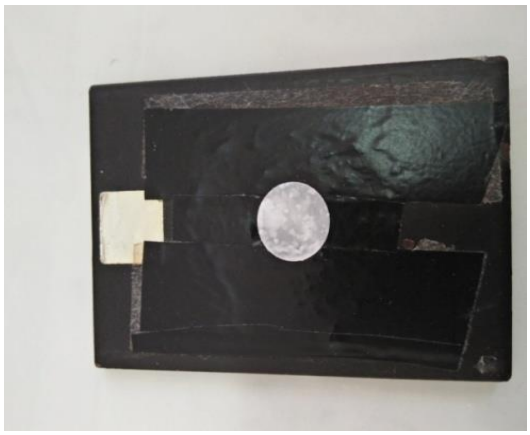


figure III.12 : Pastie de KBr

III.7.2 Détermination de la pénétrabilité à l'aiguille

Principe

La caractéristique présentée sous le nom de pénétrabilité représente, exprimée en dixièmes de Millimètre (0,1 mm), la mesure de la pénétration dans un échantillon de bitume, au bout d'un temps de5 secondes, d'une aiguille dont le poids avec son support est de 100 g. La pénétrabilité la plus couramment utilisée est celle qui est mesurée à 25 °C. A une température donnée, plus le bitume est dur, plus la valeur de sa pénétrabilité est faible. Ce test permet de Déterminer la consistance des bitumes et des liants bitumineux au moyen d'une aiguille de référence Pénétrant verticalement dans un échantillon de liant, suivant des conditions parfaitement définies. La Profondeur de pénétration est exprimée en dixièmes de millimètre.

Figure III.13 : Appareille de pénétrabilité

III.7.3 La Température de ramollissement Bille et Anneau (TBA)

C'est la température pour laquelle une bille d'acier s'enfonce à travers un disque de bitume contenu dans un anneau de métal dans des conditions définies de fabrication et d'essai. A cette température, le bitume présente une structure interne telle que les contraintes auxquelles il est soumis, par les conditions même de l'essai, sont suffisantes pour permettre une déformation irréversible, elle-même définie.

Pour cela, une bille d'acier est placée sur un anneau de cuivre rempli préalablement de bitume ; l'ensemble est plongé dans un bain dont la température est élevée de 5°C par minute : la température de ramollissement est celle à laquelle la bille, entraînant la membrane de bitume, atteint un repère fixé. De bonnes corrélations s'existent entre la Température de ramollissement Bille et Anneau (TBA).et la résistance à l'orniérage pour les bitumes purs (conventionnels).

Figure III.14 : Appareille de TBA

- **Détermination de la ductilité**

On mesure la ductilité des bitumes au moyen d'un ductilimètre standard à la température de 25°C et à la vitesse d'allongement de 5 cm par minute.

L'essai se fait dans de l'eau pour éliminer en majeure partie l'effet de pesanteur. On Effectue les mesures sur des éprouvettes en forme de 8.

En effet, une éprouvette est moulée dans des conditions et dimensions normalisées. L'éprouvette est ensuite amenée à la température normalisée de l'essai, et étirée selon un Taux de vitesse déterminé jusqu'à ce que le fil reliant les deux bouts se coupe.

L'allongement en centimètres, au moment où le fil du matériau se coupe, est désigné Comme étant la ductilité

Figure III. 15 : Appareille de ductilité

IV.1.Introduction :

Dans ce chapitre, on propose de déterminer dans un premier temps quelques propriétés des matériaux utilisés dans cette étude. La deuxième partie de ce chapitre porte sur la détermination des différentes propriétés du bitume modifié tels que : pénétrabilité, TBA et ductilité. Les propriétés étudiées dans les cette partie fourniront les informations utiles pour l'interprétation des résultats de mesure qui seront exposés juste après et permettent d'optimiser les paramètres opératoires procédé de fabrication du bitume modifié.

IV.2) Propriétés des matériaux utilisés dans cette étude

IV.2.1) Propriétés physiques chimiques du bitume

Les matériaux utilisés ainsi que les essais réalisés sont dans le tableau IV.1 Le bitume utilisé est un bitume de grade 40/50.

Tableau IV.1 : propriétés du bitume 40/50

Caractéristiques	Unité	Normes d'essai algérienne	Bitume pur 40/50
Pénétrabilité À l'aiguille à 25	1 /10mm	NA5192	48
Point de ramollissement	C°	NA2617	53
Densité relative à 25 C°	g/cm^3	NA5224	1.00 à 1.1
Point d'éclair (Vase ouvert)	C°	NA1440	> 250
Ductilité à 25 C°	cm	NA5223	> 60

IV.2.2) Propriétés de polyéthylène

Le polyéthylène utilisé dans cette étude provient des déchets polymériques (sachets) dont les caractéristiques sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau IV. 2 : Propriétés de polyéthylène

Température de fusion	85 à 140 C°
Paramètre de solubilité	**16.2 MPa $^{1/2}$**
Masse volumique	**0.91-0.96 g.cm^{-3}**
Température d'auto inflammation	**330 à 410 C°**
Point d'eclair	**341 C°**
Formule brute	**(C2H4)**

IV.2.3) Propriétés des pneus en caoutchouc

Le caoutchouc utilisé dans cette étude provient du broyage de pneus. Ces caractéristiques sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau IV.3 : Propriétés des pneus en caoutchouc

Excellente résistance a la résistance au déchirement a la chaleur et au vieillissement (O2, O3)
Imperméabilité au gaz
Bonne résistance au déchirement et à l'abrasion
Utilise pour fabrique des chambres à air et le revêtement intérieur des pneumatique sans chambre

IV.2.4 : Caractéristiques d'huile d'olive

L'huile d'olive utilisée est une huile d'olive algérienne récoltée au niveau TIZI-OUZOU. Le tableau suivant illustre les différentes propriétés de cette huile.

Tableau IV.4 : propriété huile d'olive

Température de fusion	**-3 C°**
Point de fumée	Entre 5 et 10 C°
Température d'ébullition	300 C°
Masse volumique	0.914 – 0.918 $g.cm^{-3}$
Point d'écair	225 C°

IV.3) Etude des bitumes modifiés par polymère :

IV.3.1) Bitume modifié par caoutchouc

Le bitume routier pur 40/50 a été modifié par caoutchouc selon le protocole opératoire cité précédemment. Le tableau suivant donne la composition en pourcentage massique des échantillons de matériau vulcanisé (agitation : 1500rpm, température =160 C°, et temps 2.5h).

Tableau IV.5 : Compostions élémentaire des échantillons

Echantillons	Caoutchouc butyle	Huile d'olive	H2SO4
MV1	15 %	60%	25%
MV2	10%	65%	25%
MV3	5%	70%	25%

Les trois matériaux vulcanisés synthétisés précédemment sont incorporés dans le bitume routier pur 40/50 afin d'évaluer leur performances sur la qualité de ce dernier. Le tableau suivant présente le pourcentage massique d'incorporation dans le bitume 40/50 pur

Tableau IV.6 : Compostions élémentaire des liants bitumineux modifiés

Echantillons	bitume	**Matériau vulcanisé**
BMV1	**95%**	**5% MV1**
BMV2	**95%**	**5% MV2**
BMV3	**95%**	**5% MV3**

Après avoir modifié le bitume pur 40/50, les tests conventionnels (pénétrabilité, TBA) ont été effectués. Le tableau suivant présente les résultats obtenus pour chaque modification par le matériau vulcanisé.

Tableau IV.7 : Propriétés du bitume modifié par caoutchouc à différents pourcentage de matériau vulcanisé

Echantillons	**TBA (C°)**	**Pénétrabilité (0.1mm)**	**Ductilité (cm)**
BMV1	59	45	62
BMV2	52	41	47
BMV3	50	35	40

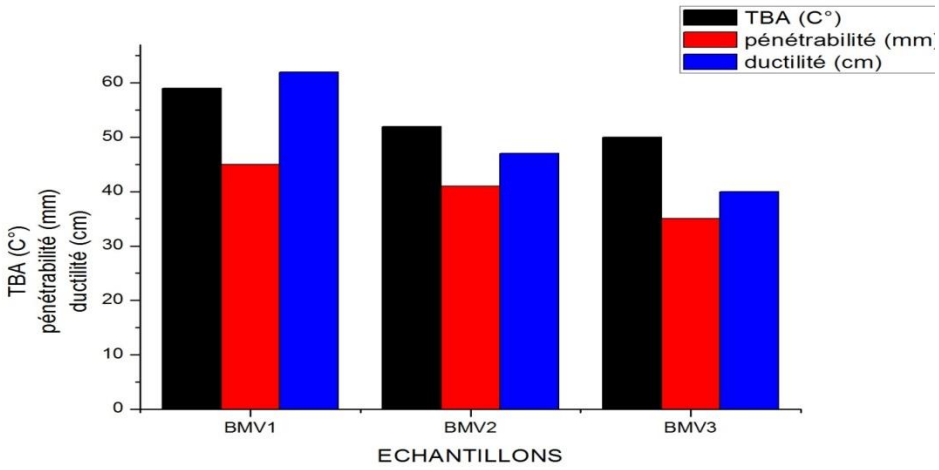


Figure IV.1 : évolution des propriétés des bitumes modifiés par caoutchouc en fonction de taux du matériau vulcanisé (conditions : agitation 1500 rpm ; T =160 C° ; temps 2.5h.)

Considérons tout d'abord la figure IV.1 qui représente l'évolution du grade (pénétrabilité) et de la TBA des bitumes issus de procédé de modification (Protocole 2, conditions : agitation 1500 rpm, température =160 C°. ; temps =2.5 h.) en fonction des additifs utilisés à 5 %. À l'exception de l'additif MV3 du bitume qui présente des propriétés inférieures à celle du bitume d'origine. L'analyse de la figure IV. 1 montre que ce bitume présente des effets de vieillissement caractérisés par une diminution du grade (pénétrabilité) et une augmentation de la température bille anneau(TBA) par rapport au bitume d'origine. Tous les autres bitumes présentent des grades quasi-identiques au bitume et des températures de ramollissement plus élevées, comparés au bitume d'origine.

IV. 4 Optimisation des paramètres opératoires sur la modification du bitume :

IV.4.1 Influence de taux d'ajout du matériau vulcanisé sur la modification du bitume par élastomère

Le protocole expérimental réalisé pour la modification du bitume par caoutchouc est décrit dans la section modes opératoires du chapitre précédent. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau suivant

Tableau IV. 8: Influence de la quantité MV sur la modification du bitume

Taux du MV	**0**	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**
TBA (C°)	**35**	**39**	**41**	**44**	**53**	**61**

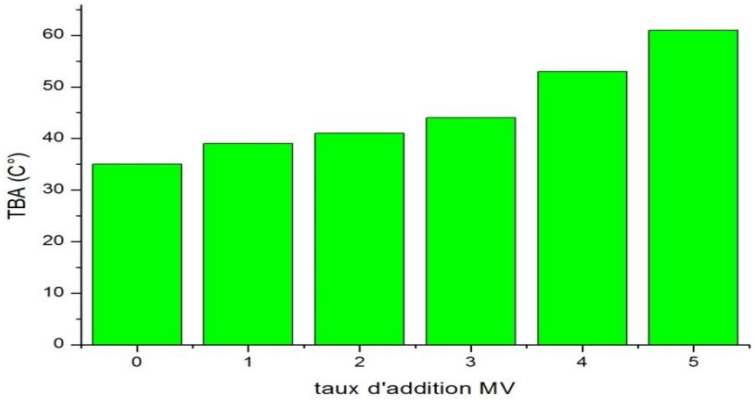


Figure IV. 2 : (Conditions : agitation 1500 rmp T=160 C°. temps = 2.5h)

En général, les mélanges de bitume et caoutchouc sont, à l'échelle de la microstructure, des systèmes à deux phases composés :

• d'une phase riche en polymère qui contient le polymère et une partie des maltènes du bitume absorbée par le polymère ;

• d'une phase riche en asphaltènes contenant tous les constituants du bitume qui n'ont pas été absorbés par le polymère, en particulier les asphaltènes.

Concernant le volume de la phase polymère peut absorber des constituants du bitume jusqu'à environ 9 fois son volume, mais cette capacité d'absorption décroît avec l'augmentation de la concentration. La figure IV.2 montre l'évolution de la TBA en fonction de la teneur en polymère. On observe une augmentation de TBA avec l'accroissement de la teneur en polymère. Cela dépend de la nature chimique du bitume et ces propriétés. En effet, une très faible teneur en polymère conduit, pour le bitume, à un paramètre de solubilité trop faible pour qu'il présente une bonne compatibilité. Si la teneur en caoutchouc est forte, le paramètre de solubilité du bitume est trop grand et la compatibilité n'est pas optimale non plus.

IV.4.2 Influence du temps d'agitions sur la modification du bitume

Le protocole expérimental réalisé pour la modification du bitume par caoutchouc est décrit dans la section modes opératoires du chapitre précédent. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau suivant

Tableau IV.9 : influence du temps d'agitations sur la modification du bitume

Temps (h)	1	1.5	2	2.5	3	3.5	4
TBA (C°)	**47**	**55**	**56**	**59**	**61**	**62**	**62.5**

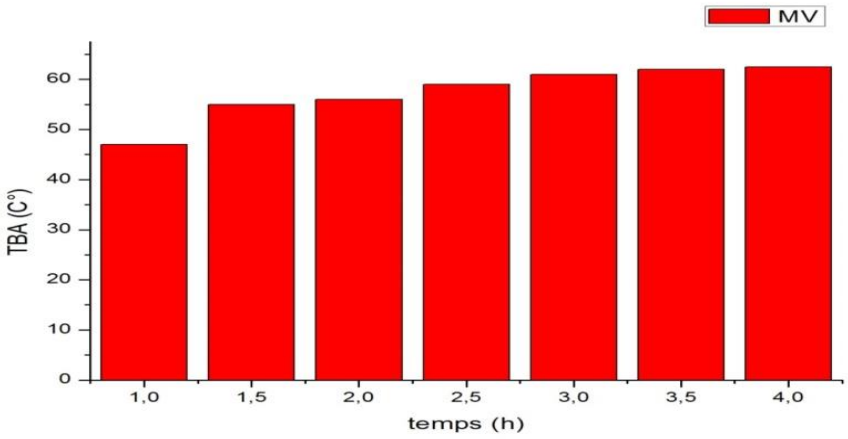


Figure IV. 3 : influence du temps d'agitations sur la modification du bitume
(Conditions : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =2.5h.)

D'après la figure IV.3, on remarque que TBA augmente avec l'augmentation du temps du procédé, puis elle se stabilise à partir du 3h.

Le tableau suivant présente l'évolution de la pénétrabilité en fonction du temps de modification du bitume.

Tableau IV. 10 : L'évolution de la pénétrabilité du bitume modifie en fonction du temps

Temps (h)	**1**	**1.5**	**2**	**2.5**	**3**	**4**
pénétrabilité	**35**	**37**	**40**	**45**	**48**	**49**

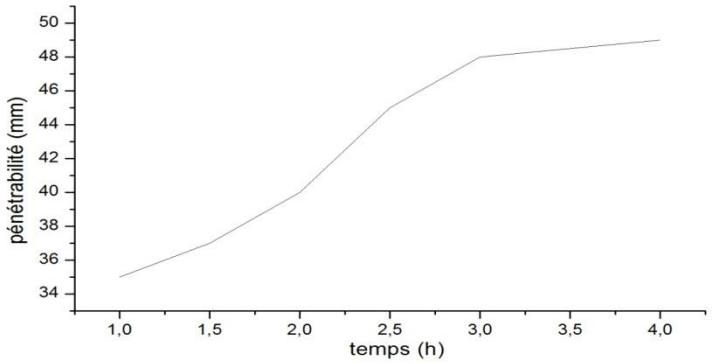


Figure IV.4: (Conditions : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =2.5h.)

La figure IV. 4 suivantes décrivent l'évolution de la pénétrabilité (à 25 °C**)** en fonction du temps de fabrication. À cet effet, on remarque qu'à partir du 3h, la pénétrabilité devient quasiment-constante se qui fait augmenter sensiblement la consistance du liant.

IV. 3.3 Influence de la température du sur le procédé de modification du bitume

Le protocole expérimental réalisé pour la modification du bitume par caoutchouc est décrit dans la section modes opératoires du chapitre précédent. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau suivant : tableau IV.11

Tableau IV.11 : influence de la température sur la modification du bitume

T (C°)	**100**	**120**	**140**	**160**	**180**	**200**	**220**
pénétrabilité	**35**	**38**	**40**	**45**	**48**	**43**	**41**

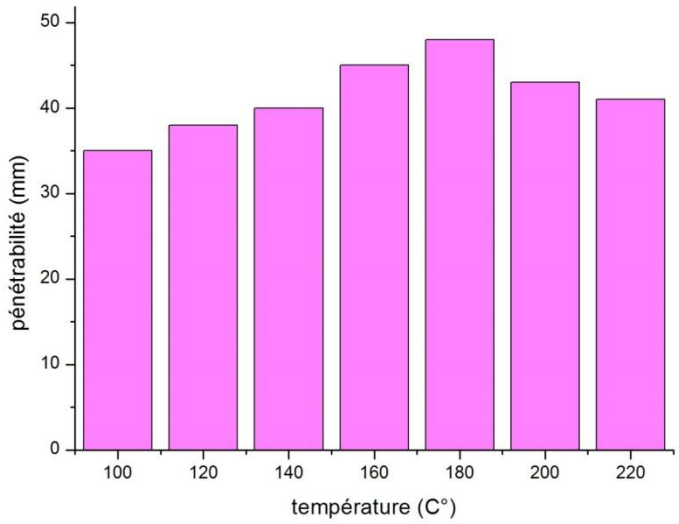


Figure IV.5 : influence de la température sur la modification du bitume

(conditions : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =2.5h.)

D'après la figure IV.5, on constate que la pénétrabilité du bitume augmente avec l'augmentation de la température de procédé de fabrication jusqu'à 180°C, puis elle décroit. Cela peut être expliqué par la vitesse de diffusion du bitume dans les particules de polymère qui augmente avec la température et modifie le moment ou le cisaillement devient efficace. Mais à des températures plus élevées, la stabilité thermique du polymère sera affectée.

Conclusion :

Les paramètres opératoires optimisés par la modification du bitume par élastomère sont le temps 3h, MV1 (60% huile d'olive+15%caoutchouc+25% H2SO4) et 5%MV1+95%bitume a T=180C°.

Le tableau suivant présente les caractéristiques du bitume modifié par caoutchouc :

Pénétrabilité (*0.1 mm)	48
TBA (C°)	**61**
ductilité	**62**

IV.4Influence de la température de service sur la modification du bitume par caoutchouc :

Le bitume synthétisé par le procédé précédent (conditions optimisés : 95% bitume+5%MV, Agitation 1500, t=3h, T=180 C°) subira des tests conventionnels de mesure de pénétrabilité à différente température. Le tableau suivant illustre les résultats obtenus.

Tableau IV. 12 : évolution de la pénétrabilité en fonction de température

Température (C°)	**10**	**20**	**30**	**40**	**50**	**60**
Pénétrabilité (*0.1mm)	**8**	**15**	**23**	**37**	**47**	**52**

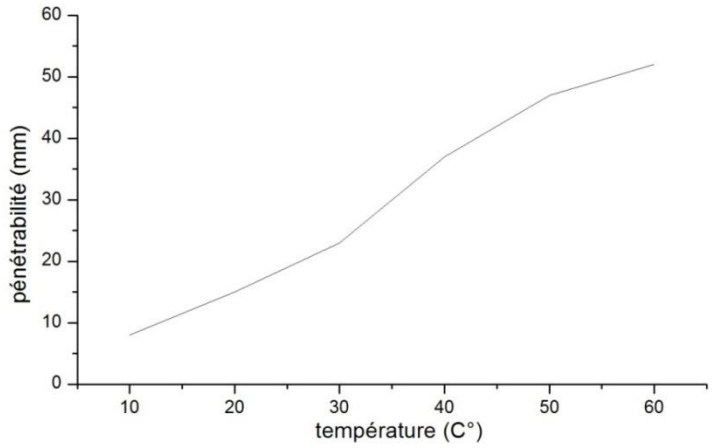


Figure IV. 6 : évolution de la pénétrabilité en fonction de température

Condition : agitations 1500 rpm, T= 160 C° ; temps =3h)

D'après la figure IV.6, la pénétrabilité du bitume modifié augmente avec l'augmentation de la température, cela détermine la consistance à haute température du bitume en plein service.

IV.5 modification du bitume par polyéthylène

La modification du bitume par polyéthylène est effectuée selon le mode opératoire décrit dans le chapitre suivant.

IV.5.1 Influence du taux d'ajout de polyéthylène sur la modification du bitume

Le tableau suivant illustre les résultats obtenus de la modification du bitume par polyéthylène à des différentes quantités.

Tableau IV.13 : influence du taux d'ajout de PE sur la modification du bitume

Taux d'addition PE (%)	1	2	3	4	5	6	7
TBA (C°)	58	60	61	69	73	70	65
pénétrabilité	43	45	50	57	64	60	59

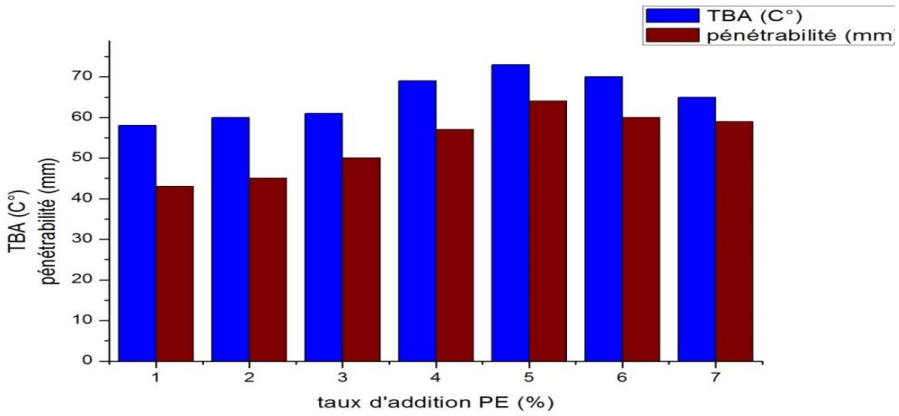


Figure IV.7 : influence du taux d'ajout de PE sur la modification du bitume

(conditions : 1500 rpm T=160 C°, temps = 2 h)

La figure IV.7 montre l'évolution des propriétés physiques des bitumes routiers modifiés, l'addition de polyéthylène entraîne une diminution de la pénétration, une augmentation de la

température de bille et anneau, et une diminution de la susceptibilité thermique. L'amplitude de la modification est fonction de la teneur en polymère comme le montre la figure

précédente. On peut remarquer que la transition qui s'opère autour de5 % de copolymère entre les systèmes à phase continue bitume (moins de 5 % de polymère) et ceux à phase continue polymère (plus de 5 % de polymère) s'accompagne d'une augmentation plus rapide de la température de ramollissement bille et anneau. Cela s'explique par la solubilité de polymère dans le bitume et sa cristallinité.

IV.5.2 Caractéristique du bitume BMPE

Le tableau suivant montre les résultats des tests conventionnels effectués sur le bitume modifié par polyéthylène.

Tableau. IV.14 Le tableau suivant présente les caractéristiques du bitume modifié par polyéthylène

Pénétrabilité	**64**
TBA C°	**73**
Ductilité cm	**65**

Bitume modifié par mélange (MV+PE) :

Conditions : Les paramètres opératoires optimisés par la modification du bitume par plastomère sont le temps 2h, (5 % PE+95 % bitume)

IV.6 mélange de bitume élastomère plastomère

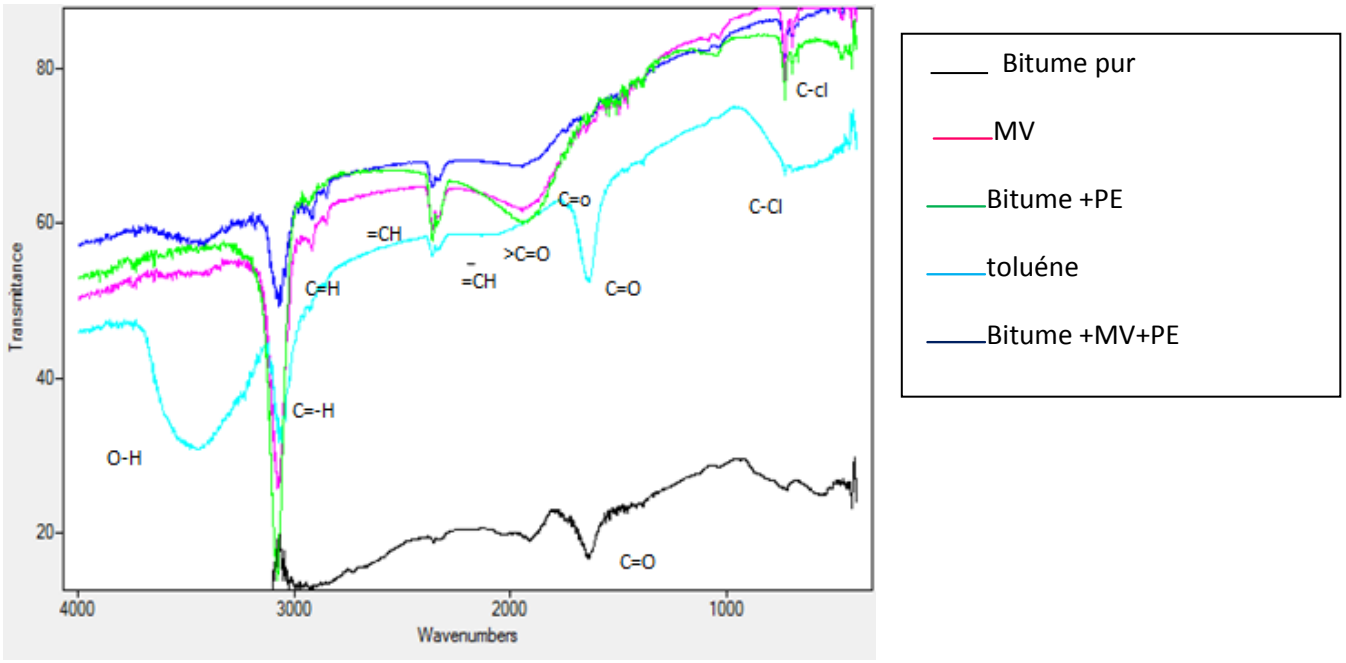


Figure IV .8 Spectre infrarouge

Conclusion générale et Perspectives

L'objectif de ce travail a porté sur l'étude de l'incorporation des déchets polymériques type caoutchouc des pneus et sachet type Polyéthylène dans la formulation des enrobés routières. C'est dans ce but que nous avons optimisé les paramètres opératoires d'un procédé de modification de bitume par polymère.

Les objectifs recherchés par la modification des bitumes par des polymères sont multiples. Il s'agit avant tout de modifier le comportement aux températures extrêmes atteintes par la chaussée : conserver une consistance suffisamment élevée aux hautes températures pour éviter ressuages et déformations permanentes, diminuer la fragilité à basse température pour éviter fissurations et arrachements de gravillons. Ces objectifs dépendent aussi des domaines d'application et des techniques projetés : enduits superficiels, tapis minces, enrobés drainants, couches de roulement pour routes à trafic intense, couche d'assise pour routes à trafic intense, membranes anti-fissures, chapes d'étanchéité d'ouvrages d'art.

L'approche adoptée est la modification par un plastomère (polyéthylène) provenant des sachets et d'un élastomère (caoutchouc) des pneus. En effet, les liants modifiés obtenus par adjonction de ces deux polymères, d'après cette étude, apporte une solution technique satisfaisante à certains problèmes particuliers liés aux chaussées routières. Les déchets polymériques recyclés dans les bitumes peuvent être considérés comme des alternatives valables à partir de points de vue à la fois environnementaux et économiques.

Plusieurs perspectives peuvent être ouvertes au terme de cette étude pour affiner d'avantage la compréhension du comportement des enrobés bitumineux modifiées. Il est nécessaire pour optimiser parfaitement ce liant de mener des études complémentaires :

- une étude du vieillissement de ce mélange bitume/polymère qui permettra d'évaluer le vieillissement de l'enrobé sur la route,
- une étude des propriétés mécaniques des nouveaux enrobés contenant de l'huile végétale,

- de nouvelles études complémentaires concernant le recyclage devraient permettre de finaliser le mode opératoire à utiliser dans le cadre d'un enrobé vieilli afin de remobiliser au mieux le bitume de l'enrobé à recycler, notamment en allongeant la période de mûrissement du nouvel enrobé.

- De Compléter toute étude physico-chimique des bitumes par une étude rhéologique et économique

Références

1- J.F. Corté, H. Di Bendetto, Matériaux routiers bitumineux 1, description et propriétés des constituants, ed. Lavoisier, 2005

2- Norme NF EN 1426 (juin 2007) : Détermination de la pénétrabilité à l'aiguille

3- Norme NF EN 1427 (janvier 2000) : Détermination de la température de ramollissement

4- Shell Bitumes, Bitumes : techniques et utilisations, juin 1991

5- Dron, R., Bestougeff, M., Voinovitch, I.A., Contribution à l'étude des états structuraux des bitumes, Rapport de recherche LPC n°75

6- Lesueur, D., Rhéologie, 2, 1, 2002

7- Sauterey, R. ; Irastorza-Barbet, D. ; Depetrini, A. ; Ossola, M.F. Les enrobés bitumineux, tome 1, Ed RGRA, 2001

8-AJOUR et al., Constitution et propriétés physico-mécaniques des bitumes, Journées d'information Bitumes et enrobés bitumineux, pp 21-139, Paris, 1971.

9- KENNEL M., Morphologie et rôle des asphaltènes dans les bitumes routiers, Bulletin de liaison ponts et chaussées, N° spécial V, pp. 73-78, 1977.

10- HARLIN M., Le bitume : Propriétés, caractéristiques, essais de laboratoire et spécifications, Formation continue E.N.P.C. Session Couche de roulement, Paris, Novembre 1992.

11- DI BENEDETTO H., CORTE J.F., Matériaux routiers bitumineux1 : <u>description et propriétés des constituants</u> , Hermès, 2004.

12- DONY A., Liants bitumes-polymères. De la fabrication à la mise en œuvre en enrobés : influence de la nature du bitume sur leurs propriétés mécaniques, leur micromorphologie et leur stabilité thermique, Etude et recherches des laboratoires des ponts et chaussées Série chaussée CR15,1991.

13- LESUEUR D., La Rhéologie des bitumes: principes et modification, Rhéologie,Vol.2, pp. 1-30, 2002.

14- FARCAS F., PLATRET G., Méthodes physico-chimiques pour la caractérisation de matériaux du génie civil et le suivi de leur vieillissement, Laboratoire des Ponts et Chaussée L.C.P.C., Aout 2007.

15 - Brion, Y., Structure colloïdale des bitumes. Relations entre composition structure-comportement-Rapports des Laboratoires, Série Physique et Chimie, PC-4, juin 1984

16- Lesueur, D., Planche, P., Bull. Liaison. Labo. P et Ch. 229, 3, nov-déc. 2000

17- Brûlé, B., Rev. gén. routes aérodr., 758, 7, 21 janvier 1998

18- Nellenstein, F J. Inst. Pet, 10, p 311, 1924

19- Dickie, J.P., Yen, T.F., Anal Chem., 39, p 1847, 14 décembre 1967

20- Brûlé, B., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 128, pp 107-120, nov.-déc 1983

21- Kennel, M., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., numéro spécial V, p 73, décembre 1977

22- Mastrofini, D., Scarsella, M., Fuel, 79, p 1005, 2000

23- Read, J., Whiteoak, D., The Shell Bitumen Handbook, 5ème edition, Ed Shell Bitumen, 2003

24- Ramond, G., Bononi, A., Pastor, M., Bull. Liaison. Labo. P et Ch,. 168, 47, juillet-août 1990

25- Brion, B., Brûlé, B., Etude des mélanges bitumes-polymères Composition-Structure-Propriétés : Rapport des laboratoires série Physique chimie, PC 6, Juillet 1986

26- Olard, F., Di Benedetto, H., Eckmann, B., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 252-253, 3, septembre 2004

27- Such, C. ; Ramond, G., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 200, 3, 1995

28- Marciano, Y., Bassez, O., Ferraro Maia, A., Le Clerc, S., Rev. gén. routes aérodr., 748, 55, février 1997

29- Van de Poel, C., J. Appl. Chem, 4, 221, 1954

30- Planche, J.P., Chaverot , P., Lesueur, D., Hines, M.L., King, G.N., Glita, S Rev. gén. routes aérodr., 739, 34, avril 1996

31. I. M. El-Gamal, E. A. M. Gad, Colloids Surf. A, 1998, 131, 181.

32. J. Lesage, Brevet d'Invention, Procédé de préparation d'un liant à base de bitume et de polymères, n° d'enregistrement national : 87 04 654, n° de publication : 2 613 375, date de dépôt : 02.04.87.

33. Magazine Bitume. Info Numéro special 1. Juin 2005. Disponible sur le site: www.bitume.info/rub_magazine_B1.htm

34. Anouar Abdelaziz ZEMMIRI. TRAVAIL DE FIN D'ÉTUDES «Comparaison des formulations d'enrobés à chaud pour couches de roulement des chaussées très circulées utilisées en France et en Algérie du point de vue sécurité (glissance) et orniérage ». 23 juin 2008.

35. SUCH C., RAMOND G., Les spécifications SHRP sur les bitumes et la température de ramollissement bille et anneau, Bulletin de liaison ponts et chaussées, N°200, pp. 3-12, 1995.

36. PROGRAMME C-SHRP, Bitumes : questions de l'heure et besoins en recherches, Bulletin de recherche n° F1 du millénaire, Octobre 2000.

37. RAMOND G., LARADI N., PASTOR M., Caractéristiques de bitumes utilisés en Algérie, Bulletin de liaison ponts et chaussées, N°225, pp 3-11, 2000.

38. SAOULA SAMIA. « Approche Modéliste et Valorisation des Enrobés Modifiés par Ajout de Polymères - Impact sur l'Environnement ». UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE « HOUARI BOUMEDIENE », Le 28/02/2010. Algérie.

39. A. Pina1, P. Mougin1 and E. Béhar , Oil Gas Sci. Technol.;2006, 61(3), 319.

40. SAOULA S., AIT MOKHTAR A., HADDADI S., Valorisation des enrobés modifiés à base d'additifs polymères, XI Journées Maghrébines des Sciences des Matériaux, Mahdia-Tunisie, 2008.

41. ZOOROB S.E., SUPARMA L.B., Laboratory design and investigation of the properties of continuously graded Asphaltic concrete containing recycled plastics aggregate replacement (Plastiphalt), Cement & Concrete Composites, Vol.22, pp. 233-242, 2000.

42. TAYFUR S., ÖZEN H., AKSOY A., Investigation of rutting performance of asphalt mixtures containing polymer modifiers, Construction and Building Materials, Vol.21, pp. 328-337, 2007.

43. YILDIRIM Y., Polymer modified asphalt binders, Construction and Building Materials, Vol.21, pp. 66-72, 2007.

44. PIARC, Use of modified bituminous binders, special bitumens with additives in road pavements, Laboratoire Central des ponts et chaussée, 1999.

45. SOLOMATNIKOVA O., Comportement rhéologique et propriétés cohésives et adhésives des liants bitumineux, Mémoire de maîtrise ès des sciences appliquées Université de Laval, Canada, 1998.

46. SERFASS J-P., SAMANOS J., Bétons bitumineux avec fibres, Revue générale routes et aérodromes, N°725, pp. 52-60, 1995.

47- Brulé, B., Liants modifiés par les polymères pour les enduits et enrobés spéciaux, Rapport des Laboratoires, PC 6, 8, Fev 1986

48- Brûlé, B., Rev. gén. routes aérodr., 711, 18, octobre 1993

49- Donny, A., Liants bitume-polymères de la fabrication à la mise en oeuvre, Etudes et Recherches des LCPC série Chaussée, CR15, décembre 1991

50- Donny, A., Durrieu, F., Bull. Liaison. Labo. P et Ch. 168, 57, juillet août 1990

51- Brûlé, B., Rev. gén. routes aérodr., 763, 46, juin 1998

52- Eckmann, B., Mazé, M., Rev. gén. routes aérodr., 814, 67, fev. 2003

53- Lesage, J. brevet n° FR 2 613 375, 07 octobre 1988

54- Wegan, V., Brûlé, B., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 221, 3, janvier-février 1999

55- Chappat, M., Durand, G., Rev. gén. routes aérodr., 767, 48, octobre 1998

56- Brûlé, B., Rev. gén. routes aérodr., 758, 71, janvier 1998

57- Brûlé, B., Druon, M Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 79, p 11, septembre-octobre 1975

58- Brûlé, B., Largeaud, S., Mazé, M., Rev. gén. routes aérodr., 761, 36, avril 1998

59- Orange, G., Martin, J.V., Such, C., Rev. gén. routes aérodr., 833, 75, novembre 2004

60- Puls, C.K., Schlame, K. brevet n° GB 2 384 240, 20 novembre 2002

61- Planche, J.P.,Germanaud, L., Nicol, P., Travers, F., brevet n°FR 2 688 795, 24 septembre 1993

62- Brule, B., Maze, M., Soliman, S., Sibaud, C., brevet n°EP 0 953 607, 03 novembre 1999

63- Ernst, B., Martin, L., Flat, J.J., Bonnet, E., brevet n° FR 2 819 818, 26 juillet 2002

64- Dempsey, S.P., Bellomy, R.C., brevet n°WO 00/73378, 7 décembre 2000

65- Shuey, M.W., Custer, R.S., brevet n°US 5578118, 26 novembre 1996

66- Sainton, A., Puiatti, D., Walter, D., Rev. gén. routes aérodr., 770, 61, février 1999

67-Brion, B., Brûlé, B., Etude des mélanges bitumes-polymères Composition-Structure-Propriétés : Rapport des laboratoires série Physique chimie, PC 6, Juillet 1986

68- Olard, F., Di Benedetto, H., Eckmann, B., Bull. Liaison. Labo. P et Ch., 252-253, 3, septembre 2004

69- Such, C., Ramond, G., Rev. gén. routes aérodr., 730, 57, juin 1995

70- OLARD F., Comportement thermomécanique des Enrobés bitumineux à basses températures, Relations entre les propriétés du liant et de l'enrobé, Thèse de doctorat INSA de Lyon, France, 2003.

Résumé

Les exigences sur la qualité des chaussées ne cessent de s'accroître répondant à des charges et à des vitesses de roulement de plus en plus sévères. Il a fallu donc se pencher de façon sérieuse sur l'étude des structures de chaussées aussi bien au niveau de la formulation des matériaux qu'au niveau du dimensionnement.L'objectif de ce mémoire de fin d'étude est de formuler un liant bitumineux par des déchets polymériques. Le degré de la modification dépend des caractéristiques du bitume, la nature de polymère et sa composition, ainsi que le procédé de préparation des bitumes modifiés.

En optimisant le taux de polymère, nous avons mis au point une formulation de liant adaptée chaussées routières par l'ajout d'un élastomère et plastomère qui permet d'améliorer les caractéristiques du bitume conventionnel. Une étude analytique poussée du bitume et du bitume modifié par IFTIR a également été réalisée.

Mots clés : bitume modifié, polymère, caoutchouc, pénétrabilité, TBA, rhéologie.

Abstract

The demands on the quality of pavements are constantly increasing in response to increasing loads and rolling speeds. It was therefore necessary to consider seriously the study of pavement structures both in terms of the formulation of materials and dimensioning.

The objective of this thesis is to formulate a bituminous binder by polymeric remains. The degree of modification depends on the characteristics of the bitumen, polymer and composition, as well as the process for preparing the modified bitumens.

By optimizing the polymer rate, we have developed a suitable binder formulation for road pavements by adding an elastomer and plastomer that can improve the characteristics of conventional bitumen. A thorough analytical study of bitumen and modified bitumen by IFTIR was also carried out.

Keywords: modified bitumen, polymer, rubber, penetrability, TBA, rheology.

ملخص

المطالب على نوعية الأرصفة تتزايد باستمرار استجابة لزيادة الأحمال والسرعات المتداولة. ولذلك كان من الضروري النظر بجدية في دراسة هياكل الرصف سواء من حيث صياغة المواد أو بعدها.والهدف من هذه البحث هو صياغة الموثق الزفت من قبل البقايا البوليميرية. حيث درجة التعديل يعتمد على خصائص الزفت، البوليمر والتكوين، فضلا عن عملية لإعداد الزفت المعدل.

من خلال تحسين معدل البوليمر، قمنا بتطوير صياغة الموثق مناسبة لأرصفة الطريق بإضافة المطاط الصناعي وبلاس- تومر التي يمكن أن تحسن من خصائص الزفت التقليدي. وأجريت أيضا دراسة تحليلية شاملة من الزفت والزفت المعدل بواسطة الأشعة تحت الحمراء.

المفتاح: الزفت المعدل، البوليمير، المطاط،الاختراقية،درجة حرارة الكرة حلقة،الريولجيا.