

# Méthodes expérimentales et théoriques d'estimation de la performance d'une chaussée bitumineuse à partir de l'analyse de ses bitumes extraits

**Rodrigo Shigueiro SIROMA**

*Université Gustave Eiffel, Département MAST, Allée des Ponts et Chaussées, 44344, Bouguenais, France*

**RESUME** Le vieillissement des bitumes rend les enrobés plus susceptibles aux fissurations. Inscrite dans le projet MOVEDVDC, soutenu par l'ANR, cette thèse vise à proposer des outils pour mieux estimer la performance résiduelle des enrobés à partir des propriétés de ses bitumes extraits. La courbe maîtresse de l'angle de phase des bitumes s'est avérée très sensible au vieillissement et des méthodes statistiques multivariées ont été utilisées pour exploiter son potentiel. En revisitant la  $\delta$ -méthode, les résultats de ces analyses statistiques ont permis de proposer un nouvel indice qui quantifie l'incidence des agglomérations moléculaires à travers la rhéologie des bitumes. De plus, des corrélations satisfaisantes avec la performance des enrobés à basse température sont observées.

**Mots-clefs** vieillissement de bitume, rhéologie, agglomération moléculaire, performance des enrobés

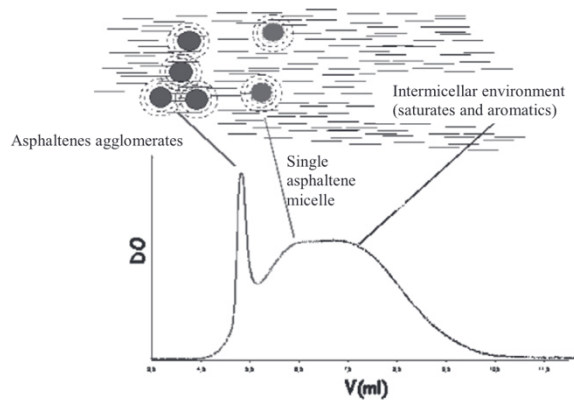
## I. INTRODUCTION ET BIBLIOGRAPHIE

Le bitume est un produit issu du raffinage du pétrole. Il est le principal matériau employé en technique routière pour lier les granulats entre eux et ainsi fabriquer des enrobés bitumineux. Le bitume est majoritairement utilisé dans des techniques dites « à chaud », où aux températures autour de 160°C le bitume est suffisamment fluide, ce qui lui permet d'être pompable, maniable et « d'enrober » les granulats. En refroidissant, le bitume durcit et à très basse température il se comporte comme un solide vitreux élastique. Ce large spectre de comportements est dû à la thermo-viscoélasticité du bitume, où son comportement est fortement dépendant à la fois de la température et de la vitesse de chargement (plus le temps de sollicitation est long, plus le bitume se comporte comme un matériau visqueux et vice versa).

Pour cette raison, la plupart des spécifications rationnelles (Anderson et al., 1994) ainsi que des critères de fin de vie (Groupe National Bitume, 1999; Rowe, 2011) visant à contrôler la qualité des bitumes pour assurer une durabilité optimale des chaussées sont basées sur les propriétés rhéologiques des bitumes. L'altération des propriétés rhéologiques qui peuvent avoir lieu sont généralement indésirables car cela peut engendrer une réduction de la performance des enrobés et, par conséquent, une détérioration plus rapide des chaussées. Ces changements se produisent en raison de la nature organique intrinsèque des bitumes, ce qui les rend très sensible au vieillissement oxydatif. Ces changements sont irréversibles car ils interviennent au niveau de la microstructure chimique des bitumes.

En raison de sa complexité, le bitume est souvent fractionné en groupes chimiques génériques en fonction de leurs solubilités dans des solvants de différentes polarités : Saturés, Aromatiques, Résines et Asphaltènes. Cependant, le bitume peut être aussi considéré comme un continuum où une augmentation progressive de la masse moléculaire et de la polarité sont observées, des saturés aux asphaltènes. Les saturés, aromatiques et résines forment la partie huileuse du bitume appelée maltène. Les asphaltènes ont un aspect solide friable et représentent la fraction la plus polaire et lourde du bitume, avec une masse moléculaire d'environ 750g/mol (Mullins, 2011).

La structure colloïdale traditionnellement utilisée pour décrire la microstructure du bitume se compose de micelles d'asphaltène (molécules d'asphaltènes couvertes par résines) dispersées dans la phase huileuse malténique (Fig. 1). Le vieillissement oxydatif fait augmenter la polarité de la phase malténique et favorise l'agglomération des micelles d'asphaltène. Cela provoque une réduction de la mobilité entre les molécules qui engendre une augmentation de la viscosité et diminue ainsi la capacité des bitumes à disperser les contraintes mécaniques et thermiques.



**FIGURE 1.** Structure colloïdale du bitume et sa distribution moléculaire (Cheung and Cebon, 1997)

L'un des principaux facteurs de dégradation des chaussées, le vieillissement se produit dès la fabrication des enrobés chauds en usine jusqu'à la fin de vie d'une chaussée. En fonction des conditions sous lesquelles les enrobés sont exposés, le vieillissement est traditionnellement classé en court et long terme. Le premier se passe à températures supérieures à 100°C lors de l'enrobage jusqu'à la mise en œuvre sur le terrain. Lors de cette première phase, une forte oxydation des structures chimiques des bitumes est observée. Dans la deuxième phase, le vieillissement se déroule à température ambiante, et la vitesse d'oxydation est plus lente.

Afin de mieux comprendre le phénomène de vieillissement ainsi que ses impacts sur la performance des enrobés, un projet de recherche soutenu par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) appelé MODélisation du Vieillissement et de l'Endomagement pour l'évaluation de la Durée de Vie Des Chaussées (MOVEDVDC) a été créé. Ce projet réunit 4 établissements académiques (Université Gustave Eiffel, INSA Strasbourg, Université de Limoges et École Supérieure des Travaux Publics – ESTP) et 4 entreprises (TotalEnergies, Eurovia, Eiffage et Spie Batignolles Malet). MOVEDVDC se concentre sur l'évaluation des propriétés mécaniques résiduelles des enrobés présents dans les couches d'assises (usuellement formées par la couche

de base et de fondation qui sont les couches structurantes d'une chaussée) et de leurs évolutions au fil du temps. Cette thèse s'inscrit dans le cadre de la tâche 3 de MOVEDVDC, sur l'analyse des liants, et vise à proposer des outils pour mieux évaluer la performance résiduelle des enrobés en fonction des propriétés de leurs bitumes extraits.

## II. MÉTHODOLOGIE

### A. Matériaux et protocoles de vieillissements

Une campagne multi-échelle a été proposée pour mieux comprendre le vieillissement. Les références des bitumes et des enrobés sont présentées entre parenthèses tout au long des prochains paragraphes. Les éprouvettes d'enrobés ont les mêmes références que celles des bitumes correspondants avec le préfixe « M\_ » pour les distinguer. Au total, 38 bitumes et 8 enrobés ont été caractérisés dans cette étude.

A l'échelle du liant, un bitume pur 35/50 à l'état neuf (bitume A\_Fr) a été vieilli à court terme à travers l'essai *Rolling Thin-Film Oven* (RTFOT) (bitume A\_RT) qui expose le bitume à l'air pulsé à 163°C pendant 75 minutes. Ensuite, le bitume est récupéré pour subir un vieillissement à long terme de façon accélérée via l'essai *Pressure Aging Vessel* (PAV) où le bitume subit 2.1 MPa de pression à 100°C pendant 20 (bitume A\_1P) et 40 (bitume A\_2P) heures pour forcer un niveau d'oxydation que le bitume peut atteindre au cours des années en service dans une chaussée.

A l'échelle de l'enrobé, le bitume A a été utilisé pour fabriquer des Graves Bitumes de classe 3 (GB3), une formule d'enrobé largement employée dans la couche d'assise structurante, avec deux types de granulats : diorite (bitume AD) et calcaire (Bitume AL et mélange bitumineux M\_AL). Ces 2 formules de GB3 ont été vieilles foisonnées en laboratoire à travers la procédure RILEM proposée par (Roche et al., 2009) dont le protocole est illustré dans la Fig. 2.

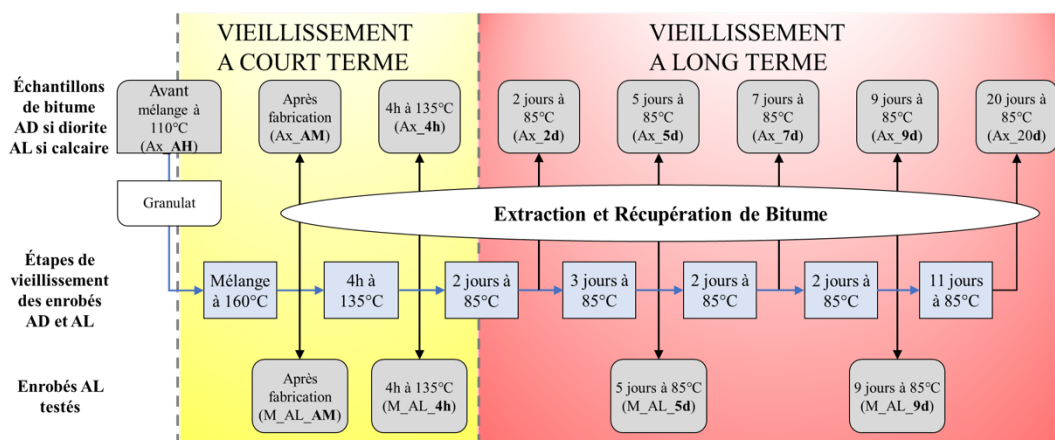


FIGURE 2. Protocole RILEM de vieillissement des enrobés foisonnés

Et enfin, à l'échelle de la structure, 4 sites expérimentaux (Tableau 1) âgés d'environ 20 ans ont rigoureusement été sélectionnés pour prélever des enrobés des couches intégrant la couche d'assise. Les critères utilisés pour sélectionner ces 4 sections sont les suivants : Les couches de

base et de fondation doivent être une GB3 formulée avec un bitume pur 35/50 avec une épaisseur supérieure ou égale à 10cm et le trafic des sections doivent être au moins de classe T2 (soit supérieur à 150 poids lourds par jour). Dans chaque section expérimentale, les enrobés ont été prélevés dans une zone circulée (référéncés avec le suffixe « T ») et dans une zone non circulée (à l’extérieur des bandes de roulements, référéncés avec le suffixe « U »). En plus des bitumes extraits de ces enrobés, les enrobés de la couche de fondation des zones circulée et non circulée de Dijon (échantillons M\_DB2T et M\_DB2U) ainsi que ceux des deux couches de la zone circulée de Nantes (échantillons M\_NB2T et M\_NB3T) ont été également étudiés.

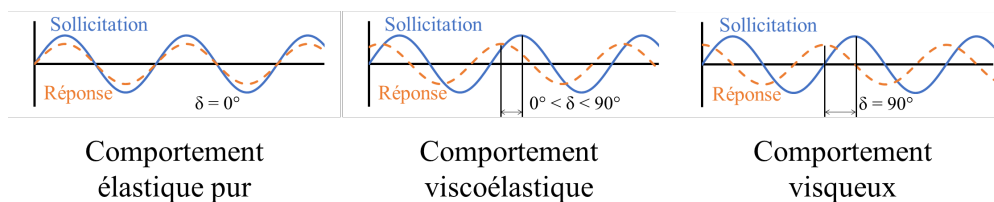
**TABLEAU 1. Sections routières étudiées**

Section	Strasbourg (A35) (Innenheim – Niedernai)	Dijon (RD700) (Arc-sur-Tille – Dijon)	Montpellier (RD14) (Maraussan – Cazouls-lès-Béziers)	Nantes (Manège de Fatigue – anneau B) (Bouguenais)
Âge	16 ans	17 ans	15 ans	22 ans
Structure des sections routières (couches étudiées en rouge)	<p>éch. : <b>SB1U</b> et <b>SB1T</b>  <b>C. FONDATION (B2)</b>                      GB3 (12cm)                      éch. : <b>SB2U</b> et <b>SB2T</b>  <b>C. FORME</b>                      GNT (12cm)</p>	<p>GB3 (9cm (U)/ 11cm (T))                      éch. : <b>DB1U</b> et <b>DB1T</b>  <b>C. FONDATION (B2)</b>                      GB3 (9cm (U)/ 12cm (T))                      éch. : <b>DB2U</b> et <b>DB2T</b>  <b>C. FORME</b>                      Sol traité (35 cm)</p>	<p><b>C. ROULEMENT</b>                      BB (06cm)  <b>C. BASE (B1)</b>                      GB3 (10cm (U)/ 8cm (T))                      éch. : <b>MB1U</b> et <b>MB1T</b>  <b>C. FORME</b>                      GNT (35cm)</p>	<p>éch. : <b>NB2U</b> et <b>NB2T</b>  <b>C. FONDATION (B3)</b>                      GB3 (15cm)                      éch. : <b>NB3U</b> et <b>NB3T</b>  <b>C. FORME</b>                      GNT (40 cm)</p>

*B. Rhéologie des bitumes (essai et modélisation des données expérimentales)*

Le test cyclique sinusoïdal de balayage en fréquence à plusieurs températures a été effectué à l’aide d’un rhéomètre *Métravib Dynamic Mechanical Analysis* (DMA) pour évaluer la rhéologie des bitumes de l’étude. Avec un niveau de déformation contrôlé, le module complexe et l’angle de phase (déphasage entre la sollicitation imposée par rapport à la réponse du matériau comme montre la Fig. 3) ont été mesurés de 1 à 80Hz à des températures allant de -15 à 60°C. Le *Métravib DMA* calcule le module complexe en mode traction-compression ( $E^*$ ) à basse température, de -15 à 20°C, et en mode cisaillement annulaire ( $G^*$ ) à haute température, de 20 à 60°C. La conversion de  $|G^*|$  à  $|E^*|$  est faite en considérant un coefficient de Poisson de 0,5.

Le même jeu de fréquences a été utilisé à chaque température testée résultant ainsi en plusieurs courbes isothermes qui sont utilisées pour construire les courbes maîtresses du module et de l’angle de phase de chaque bitume. La construction des courbes maîtresses consiste à fixer une température de référence ( $T_{ref}$ ) à partir de laquelle les isothermes adjacentes translatent horizontalement, au long de l’axe « fréquence », jusqu’à ce qu’il ait un recouvrement suffisant entre elles. Cette opération est effectuée successivement avec toutes les isothermes afin de générer une courbe lisse centrée autour de la  $T_{ref}$  permettant ainsi d’étudier le module et l’angle de phase dans une plage de fréquence beaucoup plus large que celle utilisée lors des essais. Dans cette étude,  $T_{ref}$  est égale à 0°C. Le modèle 2S2P1D (Olard and Di Benedetto, 2003) a été utilisé pour modéliser les données expérimentales.



**FIGURE 3.** Différents comportements en fonction du déphasage entre la sollicitation imposée et la réponse du matériau testé lors d'un essai cyclique sinusoïdal.

Plusieurs travaux précédents montrent que le comportement rhéologique du bitume est directement lié à sa microstructure. Dans ce cas, (Themeli et al., 2015; Zanzotto et al., 1999) ont proposé la  $\delta$ -méthode qui estime la distribution de masse moléculaire (DMM) d'un bitume donné en fonction de sa courbe maîtresse de l'angle de phase.

### C. Résistance des enrobés aux basses températures (Thermal Stress Restrained Specimen Test – TSRST)

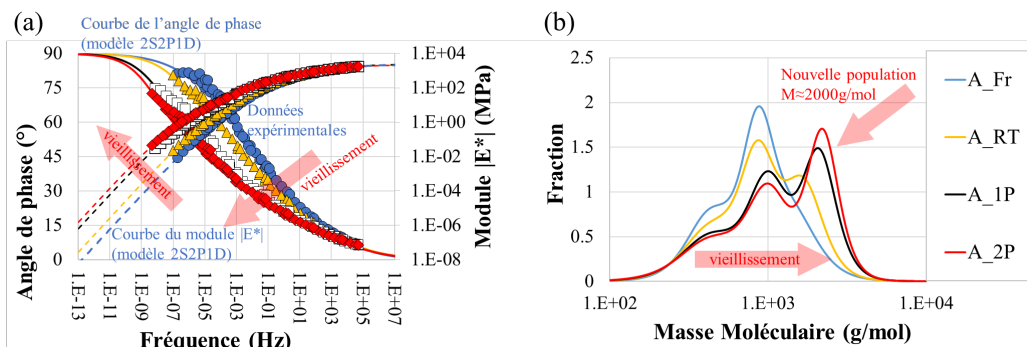
L'essai de retrait thermique empêché (TSRST) est un essai destructif largement utilisé pour évaluer la résistance au retrait thermique des enrobés à basse température. Ses éprouvettes sont cylindriques et son axe longitudinal est dans le même sens que la direction du compactage. Sur une presse hydraulique avec une enceinte climatique intégrée, l'éprouvette est d'abord collée entre deux pistons fixes pour empêcher sa contraction thermique lorsque la température diminue à une vitesse de 10°C/heure. La contrainte cryogénique augmente dans l'échantillon lorsque la température diminue jusqu'à la fracture, où la contrainte ( $\sigma_{fra}$ ) et la température ( $T_{fra}$ ) sont enregistrées. Cinq répétitions ont été faites pour chaque enrobé.

## III. RÉSULTATS

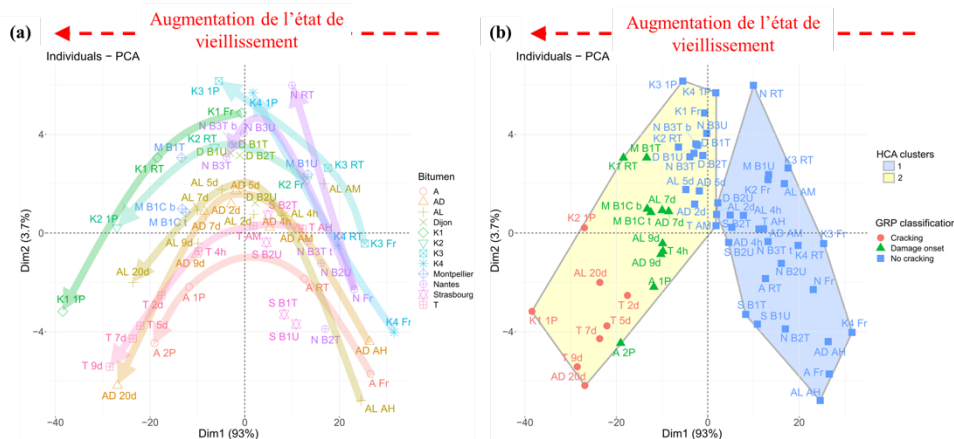
En ce qui concerne la rhéologie de bitume, la Fig. 4 (a) illustre avec les 4 niveaux de vieillissement du bitume A la tendance observée pour tous les bitumes étudiés : le vieillissement entraîne une augmentation du module et une diminution de l'angle de phase. Dans ce cas, le bitume est de plus en plus durci au détriment de sa capacité de résister aux sollicitations thermiques et mécaniques sans fissurer. Les courbes maîtresses de l'angle de phase sont plus éloignées les unes des autres par rapport aux courbes du module, mettant ainsi plus en évidence la différence entre chaque état de vieillissement. Avec la  $\delta$ -méthode, le vieillissement se manifeste par une augmentation de l'incidence des molécules plus grandes en détriment de celles plus petites avec l'apparition d'une nouvelle population moléculaire d'environ 2000 g/mol (Fig. 4 (b)).

La courbe maîtresse de l'angle de phase est très pertinente pour suivre le vieillissement car elle allie une très bonne sensibilité aux changements chimiques et microstructurale, à l'intérêt d'extrapoler le comportement au-delà des limites des conditions d'essais. Afin d'exploiter son potentiel, des analyses statistiques multivariées telles que l'Analyse en Composantes Principales (ACP) et l'Analyse de Cluster Hiérarchique (ACH) ont été employées. En plus des bitumes caractérisés, 19 bitumes purs supplémentaires issus de la bibliographie (Krolkral et al., 2018; Themeli et al., 2016) ont été utilisés. Etant donné que la courbe maîtresse de l'angle de phase déterminée par le modèle 2S2P1D est relativement lisse, les valeurs à 8 fréquences, également

distribuées ( $10^{-11}$ ,  $10^{-9}$ ,  $10^{-7}$ ,  $10^{-5}$ ,  $10^{-3}$ ,  $10^{-1}$ ,  $10^1$  et  $10^3$  Hz), ont été choisies. L'ACP s'est avérée efficace en classant les bitumes horizontalement en fonction de leurs niveaux de vieillissement (Fig. 5(a)). Les bitumes non vieillis sont situés à droite et avec le vieillissement ils se déplacent vers la gauche avec une inflexion de ses trajectoires en passant par l'axe vertical. Avec l'ACH, les bitumes ont été classés en deux clusters qui correspondent de manière satisfaisante non seulement au point d'inflexion mais également au risque de dommage (imminence de fissuration) proposé par le paramètre Glover-Rowe (GRP) (Rowe, 2011) comme montre la Fig. 5(b).



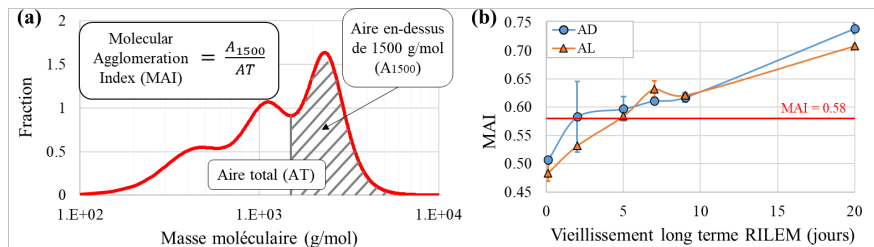
**FIGURE 4.** L'évolution du vieillissement du bitume A avec (a) les courbes maîtresses du module et de l'angle de phase et (b) la  $\delta$ -méthode



**FIGURE 5.** (a) ACP et les parcours de chaque bitume avec le vieillissement et (b) ACH et les 2 clusters en accord avec le risque de fissuration proposé par le paramètre GRP

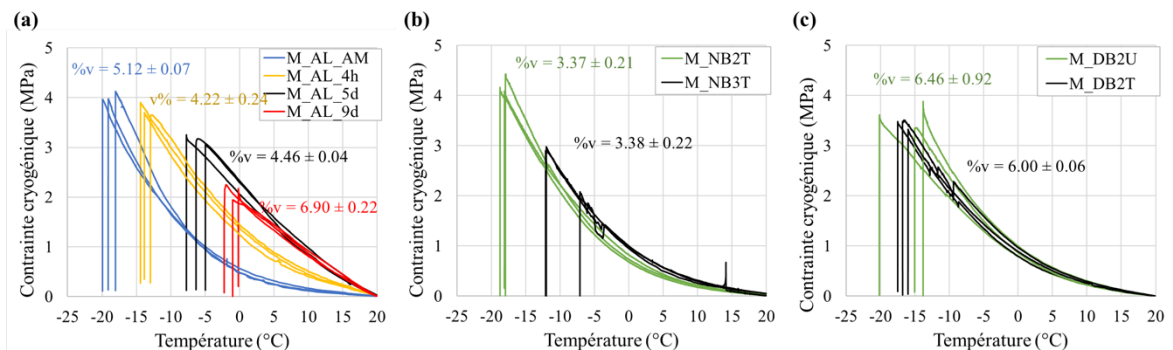
A partir de ces résultats, il est possible de constater qu'il existe une fréquence « pivot », liée au point d'inflexion observé par l'analyse ACP, qui est représentative de la variation la plus pertinente de la courbe maîtresse de l'angle de phase avec le vieillissement. Cette fréquence, à  $T_{ref} = 0^{\circ}C$ , est égale à  $f \approx 8,5 \cdot 10^{-6} Hz$ . En revisitant la  $\delta$ -méthode, cette fréquence correspond à environ 1500g/mol – valeur correspondante à l'association de deux ou trois molécules d'asphaltènes. Par conséquence, un indice simple pour quantifier l'incidence de l'agglomération des asphaltènes nommé « Molecular Agglomeration Index (MAI) » a été proposé. MAI est le ratio entre l'aire au-

dessus de 1500g/mol et l'aire total sous la courbe représentant la DMM via la  $\delta$ -méthode (Fig. 6(a)). La bonne corrélation du MAI avec d'autres critères de fin de vie répandus dans la littérature a permis la proposition d'une valeur seuil (MAI = 0,58) au-dessus de laquelle un bitume présente une susceptibilité accrue aux fissurations. La Fig. 6(b) montre l'augmentation du MAI pour les bitumes AD et AL durant le vieillissement RILEM à long terme à 85°C.



**FIGURE 6.** Indice MAI pour quantifier l'incidence d'agglomération moléculaire à partir de la rhéologie

Concernant la résistance des enrobés au retrait thermique à basse température, les enrobés ont tendance à se fracturer à des plus hautes températures après vieillissement. Aussi, les contraintes de fracture sont moins importantes après vieillissement comme montre la Fig. 7(a). En général, aux températures relativement hautes, l'éprouvette a une capacité de relaxation qui réduit quand la température diminue jusqu'au moment où des contraintes s'accumulent jusqu'à la rupture, comme observé dans la Fig. 7(b) et (c). Contrairement aux enrobés de Nantes et Dijon (vieillis naturellement), l'accumulation de la contrainte cryogénique des enrobés M\_AL\_5d et M\_AL\_5d vieillis en laboratoire est linéaire dès le début d'essai (Fig. 7(a)).



**FIGURE 7.** Résultats TSRST avec les teneurs en vide moyennes (%v) des éprouvettes : (a) enrobés AL vieillis en laboratoire, (b) enrobés de la couche de base et fondation de la zone circulée de Nantes et (c) enrobés de la couche de fondation de Dijon de la zone circulée et non circulée

L'analyse des relations entre les propriétés du bitume et de l'enrobé montre que le MAI présente une relation satisfaisante avec la température de rupture de l'essai TSRST (Fig. 8). Le critère MAI=0.58 correspond à une « accélération » de la  $T_{fra}$  ce qui montre bien qu'il est pertinent pour décrire globalement la capacité du matériau à relaxer les contraintes.

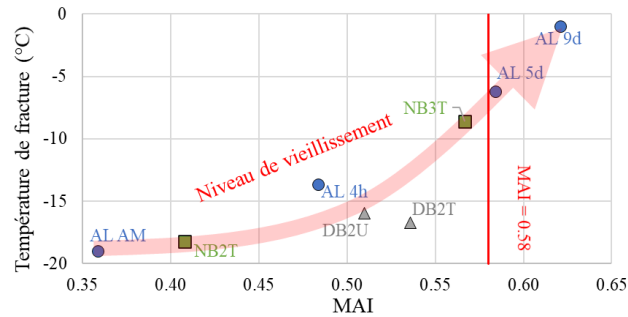


FIGURE 8. Température de fracture de l'essai TSRST versus MAI

#### IV. CONCLUSIONS

Une large gamme de matériaux, extraits sur site et vieillis en laboratoire, a été employé pour définir un nouveau critère lié au risque de fissuration et donc à la durabilité des chaussées. L'analyse statistique multivariée a permis de mettre en exergue la fréquence la plus pertinente de la courbe maîtresse de l'angle de phase des bitumes qui s'est avérée être un outil puissant pour suivre le vieillissement. De ces analyses, la  $\delta$ -méthode, qui permet d'estimer la DMM des bitumes, a été revisitée et un nouveau paramètre nommée MAI pour quantifier l'incidence de l'agglomération moléculaire sur le risque de fissuration est proposé. Le MAI présente des relations satisfaisantes avec la  $T_{fra}$  et ainsi avec la capacité de relaxation des enrobés étudiés.

#### REFERENCES

- Anderson, D.A., Christensen, D.W., Bahia, H.U., Dongre, R., Sharma, M.G., Antle, C.E., Button, J., 1994. Binder Characterization and Evaluation Volume 3: Physical Characterization.
- Cheung, C.Y., Cebon, D., 1997. Deformation Mechanisms of Pure Bitumen. *J. Mater. Civ. Eng.* 9.
- Groupe National Bitume, 1999. Étude de la fissuration par le haut des bétons bitumineux: suite de l'expérimentation "R.T.F.O.T." Laboratoire central des ponts et chaussées, Paris, France.
- Krolkral, K., Haddadi, S., Chailleux, E., 2018. Quantification of asphalt binder ageing from apparent molecular weight distributions using a new approximated analytical approach of the phase angle. *RMPD* 21, 1045–1060.
- Mullins, O.C., 2011. The Asphaltenes. *Annu. Rev. Anal. Chem.* 4, 393–418.
- Olard, F., Di Benedetto, H., 2003. General "2S2P1D" Model and Relation Between the Linear Viscoelastic Behaviours of Bituminous Binders and Mixes. *Road Mater. Pavement Des.* 4, 185–224.
- Roche, C. de la, Ven, M.V. de, Bergh, W.V. den, Gabet, T., Dubois, V., Porot, J.G. & L., 2009. Development of a laboratory bituminous mixtures ageing protocol, in: *Advanced Testing and Characterization of Bituminous Materials, Two Volume Set*.
- Rowe, G.M., 2011. Prepared discussion for the AAPT paper by Anderson et al.: Evaluation of the relationship between asphalt binder properties and non-load related cracking., in: *Journal of the AAPT 80*. Presented at the Asphalt Paving Technology, pp. 649–662.
- Themeli, A., Chailleux, E., Farcas, F., Chazallon, C., Migault, B., 2015. Molecular weight distribution of asphaltic paving binders from phase-angle measurements. *RMPD* 16, 228–244.
- Themeli, A., Marsac, P., Perez-Martinez, M., Krolkral, K., Chailleux, E., 2016. A new method to quantify and evaluate ageing state of asphalt from viscoelastic measurement, in: *Proceedings of the International ISAP Symposium*. Presented at the ISAP Symposium, International Society for Asphalt Pavement (ISAP), Jackson, Wyoming, USA, p. 14.
- Zanzotto, L., Stastna, J., Ho, S., 1999. Molecular weight distribution of regular asphalts from dynamic material functions. *Mater. Struct.* 32, 224–229.