

L'offre de liants bitumineux s'est largement diversifiée. Les techniques de modification des bitumes à partir de polymères, mais aussi les procédés de raffinage ont évolué pour conduire à la mise sur le marché de bitumes spéciaux (bitumes de grade dur, de type multigrade) ou de liants de synthèse pigmentables.

Les essais et méthodes utilisés traditionnellement pour la caractérisation usuelle des bitumes classiques de distillation directe sont souvent peu pertinents pour l'identification et l'appréciation des propriétés physiques et mécaniques de ces nouveaux liants.

L'article de V. Wegan et B. Brûlé est le premier d'une série qui sera consacrée aux nouvelles méthodes d'étude des liants bitumineux ainsi qu'à la caractérisation de ces bitumes modifiés, spéciaux ou comportant des additifs.

Jean-François CORTÉ
Directeur technique

Comparaison entre la microstructure des bitumes polymères tels quels et dans les enrobés spéciaux

RÉSUMÉ

On observe la microstructure des bitumes polymères dans les enrobés spéciaux par microscopie optique de fluorescence. La technique peut être appliquée sur des lames minces et/ou sur des surfaces polies.

On montre que, dans la majorité des cas, la structure du liant dans l'enrobé n'est pas la même que celle du bitume polymère avant enrobage. Dans les enrobés, les liants (SBS ou EVA) présentent une microstructure dans laquelle la phase polymère est constituée de globules plus ou moins gros, et plus ou moins réguliers, dispersés dans une phase bitume continue (même s'ils présentent au départ une matrice polymère). Complémentairement, la phase EVA est souvent observée sous forme de film à la surface des granulats, pour lesquels elle semble présenter une certaine affinité, affinité influencée par la teneur en filler.

On en déduit que la mise au point de spécifications performantielles pour les bitumes polymères pourrait poser problème du fait d'interactions spécifiques possibles entre la phase polymère et les granulats.

MOTS CLÉS : Porosité - Enrobé - Éprouvette - Couche de liaison - Fissuration - Granulat - Revêtement (chaussée) - Analyse chimique - Bitume - Polymère - Microtexture - Liant.

Vibeke WEGAN
Ingénieur de recherche
Danish Road Institute (Danemark)

Bernard BRÛLÉ
Docteur-Ingénieur
Jean Lefebvre (France)

Introduction

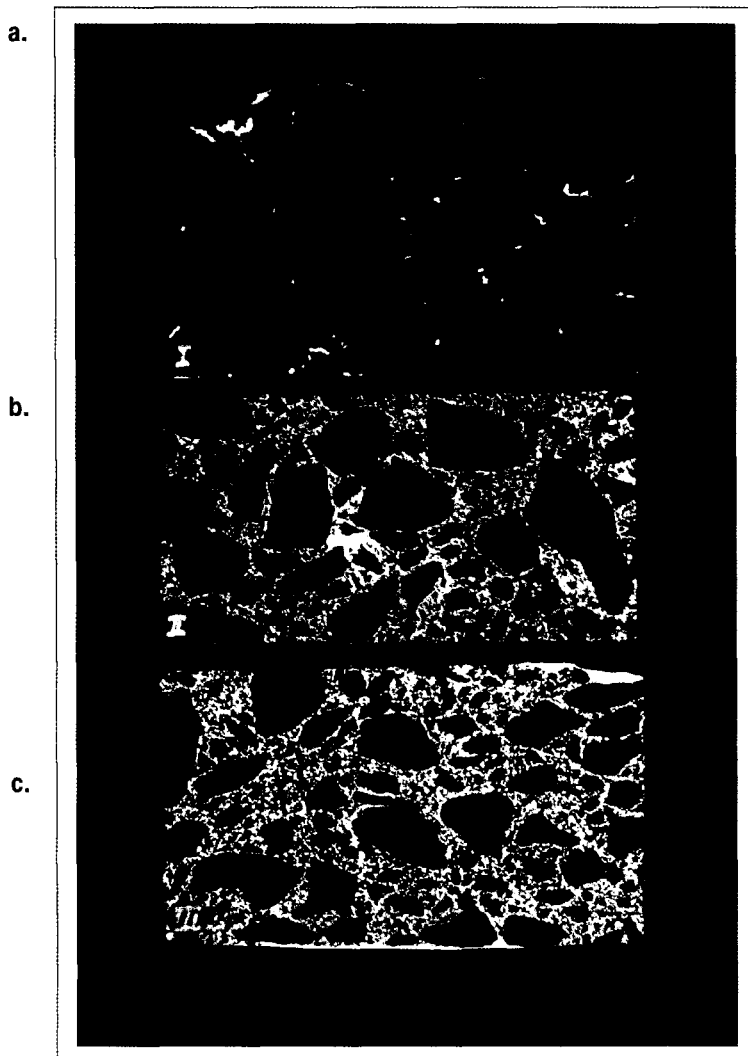
Dans le cadre du SHRP (Strategic Highway Research Program), le « Danish Road Institute » a développé, entre 1989 et 1992, l'utilisation des méthodes optiques pour l'évaluation des bétons bitumineux [1], [2], [3]. Les méthodes appliquées n'étaient pas réellement nouvelles dans la mesure où elles étaient utilisées depuis de nombreuses années pour la caractérisation de la microstructure des bétons de ciment.

Les travaux réalisés dans le cadre du SHRP ont montré la possibilité de préparer des lames minces et des surfaces polies d'enrobés bitumineux pour leur examen par microscopie optique sans endommager leur structure. Pour une telle préparation, l'enrobé est imprégné par une résine d'époxyde comportant un colorant fluorescent, ce qui permet la visualisation des vides et des fissures sous éclairage ultraviolet.

Les sections polies sont utilisées essentiellement pour la caractérisation des vides dans les enrobés compactés en termes de teneur, dimension, forme et distribution à l'aide d'un dispositif automatique d'analyse d'image. Complémentairement, la technique permet l'observation directe et la caractérisation de la formation de fissures dans le mastic, de fissures dans les granulats et/ou des dommages dus à l'eau tels que le désenrobage ou la désintégration du mastic.

La figure 1 rassemble trois exemples de sections polies préparées dans le cadre d'une étude menée par le SHRP sur l'effet du compactage.

Fig. 1 - Surfaces polies de bétons bitumineux compactés



à l'aide :

a. d'un compacteur à roue,

b. d'une presse à cisaillement giratoire,

c. des moyens de chantier.

(La dimension des échantillons est de 50 × 100 mm).

Il s'agit dans les trois cas du même béton bitumineux (basalte et sable avec 1,5 % de filler de chaux et 4,6 % en poids de bitume AC - 20) compacté par trois méthodes différentes : le compacteur américain à roue (EXXON), la presse à cisaillement giratoire américaine et le compactage de chantier. Les vides sont visualisés en jaune sur les figures 1a, 1b, 1c. La figure 1a correspond au compacteur à roue : l'enrobé ne comporte que très peu de vides, rassemblés à la partie supérieure de l'échantillon. L'application de l'analyse d'image [4], [5], conduit à une teneur en vide de 1,3 %. Le deuxième échantillon (fig. 1b) provient de la presse à cisaillement giratoire : les

vides sont petits et répartis de façon homogène dans la matrice de mastic, mis à part une inclusion d'air importante au centre de l'éprouvette. L'analyse d'image conduit, dans ce cas, à 9,8 % de teneur en vides. Le troisième échantillon (fig. 1c) provient d'un carottage effectué sur la chaussée : les vides sont petits et répartis uniformément dans la matrice de mastic. La teneur en vides par analyse d'image est de 8,4 %.

Une section polie verticale réalisée sur une carotte prélevée dans la chaussée est montrée sur la figure 2. La première figure (fig. 2a) est réalisée en lumière naturelle et la seconde (fig. 2b) sous éclairage UV. La chaussée est constituée de trois couches : une couche de surface d'environ 3 cm, une couche de liaison de 5,5 cm environ et une couche de base de 11,5 cm environ. Sur la figure réalisée sous UV (fig. 2b), tous les vides apparaissent en couleur jaune. Il y a peu de vides dans la couche de surface et dans la couche de liaison. On peut observer une fissure principale traversant la couche de surface et se poursuivant dans la couche de liaison où apparaissent également des fissures « secondaires ». La visualisation des fissures dans les bétons bitumineux a également été étudiée par Shin et al. [6], au moyen de la microscopie électronique à balayage.

La technique des lames minces peut être utilisée pour la caractérisation de la composition des bétons bitumineux en couplant la microscopie de fluorescence et sous lumière polarisée. Il est ainsi possible d'obtenir des informations sur la nature minéralogique des granulats et des fillers, des indices d'altération des granulats, la répartition du filler, l'homogénéité du mastic, la présence de fillers spéciaux tels que les cendres volantes ou les fibres, l'adhésion liant-granat, des indices de désenrobage, la diffusion des maltènes du bitume dans des granulats poreux, la localisation et la dimension des fissures, etc.

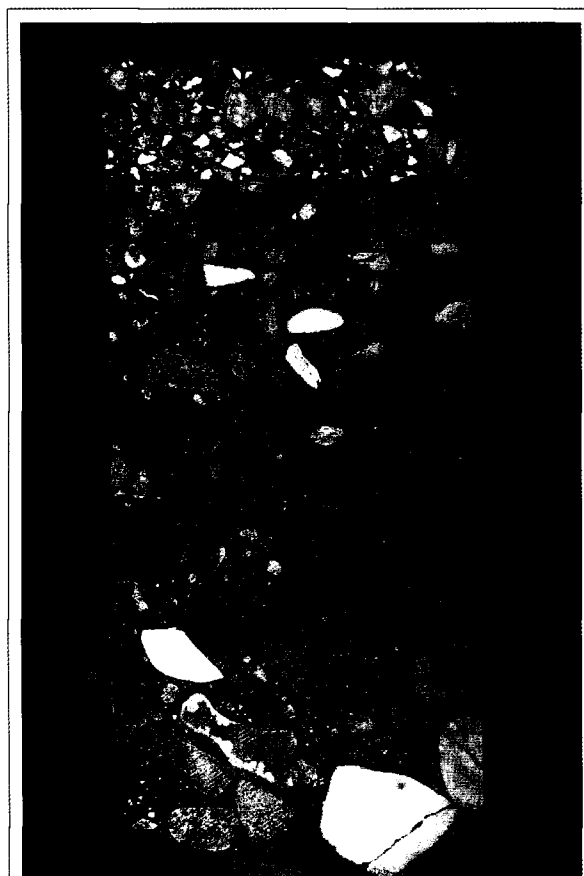
Nouveaux développements

Les méthodes optiques développées pour l'examen de lames minces et de surfaces polies ont été modifiées dans le cadre d'un projet Brite-Euram : « Quality Analysis of Polymer Modified Bitumen's and Bitumen Products by Image Analysis with Fluorescent Light » (MIAF) pour les adapter à la caractérisation de la microstructure des bitumes polymères dans les bétons bitumineux spéciaux. L'observation de la microstructure des bitumes polymères dans les enrobés a déjà donné lieu à communication. F. Durrieu et M. Ballie ont déjà signalé que l'on

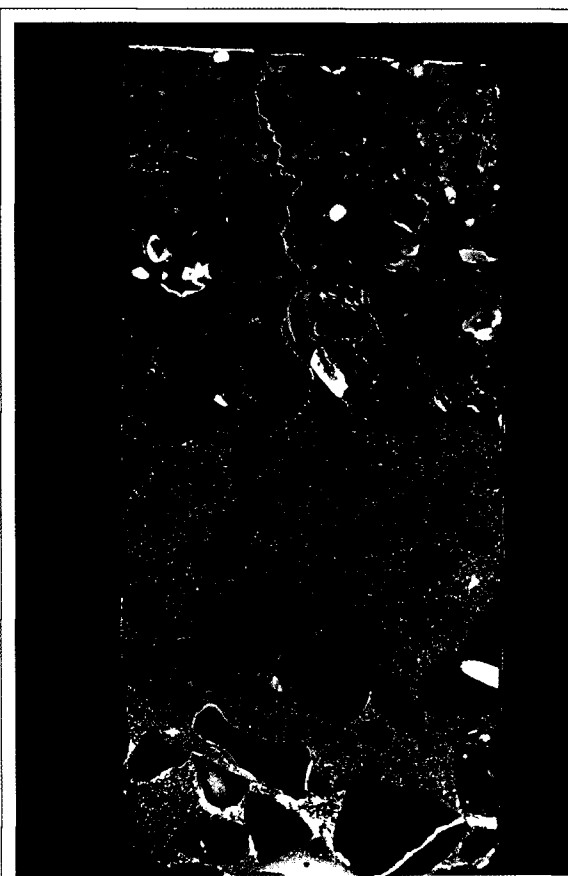
ne retrouve pas, dans les enrobés, les micromorphologies qui sont celles des liants bitumes polymères à leur fabrication [7]. Le « MIAF » reprend l'objectif de mettre au point une méthode optique de caractérisation de la microstructure des liants modifiés par des polymères et d'étudier les corrélations éventuelles entre la microstructure ainsi qualifiée et les propriétés physiques des liants ou les performances des bétons bitumineux [8]. L'adaptation des méthodes déjà développées dans le cadre du SHRP et au LCPC implique la mise au point de nouvelles procédures permettant d'obtenir une image aussi fidèle que possible de la microstructure du liant modifié dans le béton bitumineux. L'observation de la microstructure des bitumes polymères par microscopie optique de fluorescence est une technique bien connue [9], utilisée aujourd'hui dans de nombreux pays aussi bien pour le contrôle de qualité que pour accompagner la recherche sur les liants modifiés [10]. C'est cette expérience qui a été utilisée pour l'adaptation des méthodes d'observation des lames minces et des surfaces polies appliquées jusqu'alors.

L'observation directe et l'expertise de la microstructure des bitumes polymères dans les enrobés spéciaux est particulièrement importante vis-à-vis de l'évaluation de la modification apportée par le polymère dans la mesure où c'est cette microstructure qui peut être corrélée aux caractéristiques performantielles du béton bitumineux ou aux résultats des tests de laboratoire appliqués aux enrobés. En effet il a déjà été démontré que la température de mélange et la vitesse de refroidissement pouvaient avoir un effet déterminant sur la microstructure et les propriétés de certains bitumes polymères [11]. Dans ces conditions, on imagine aisément que la connaissance de la structure du liant modifié avant enrobage peut être tout à fait insuffisante puisque, lors de la fabrication de l'enrobé et de son refroidissement, le bitume polymère subit une histoire thermique particulière, différente de celle du laboratoire, qui le conduit à une structure spécifique. Un autre problème est celui d'interactions éventuelles entre le liant modifié et la fraction minérale, qui ne peuvent être étudiées que par observation directe du mélange.

Fig. 2 - Surface polie verticale d'une carotte d'enrobé (90 × 295 mm)



a. Sous éclairage naturel.



b. Sous éclairage ultraviolet.

Procédures expérimentales

Préparation des lames minces et des surfaces polies pour l'observation de la microstructure des bitumes polymères

Une lame mince de béton bitumineux a une épaisseur de l'ordre de 20 μm et une surface généralement de 30 \times 45 mm (fig. 3). Un échantillon d'enrobé d'épaisseur initiale de 10 à 20 mm est collé sur une lame de verre puis surfacé à l'aide de rouleaux diamantés. L'échantillon est alors imprégné sous vide par une résine d'époxyde (sans colorant, dans ce cas) qui, après durcissement, stabilise le matériau pour les opérations ultérieures de coupe, meulage et polissage. Ces dernières sont poursuivies jusqu'à ce que l'épaisseur soit réduite à 20 μm . Pendant toutes ces opérations, l'échantillon et les matériels sont maintenus à une température d'approximativement -5°C et de l'eau glacée est utilisée pendant les opérations de meulage et de polissage.

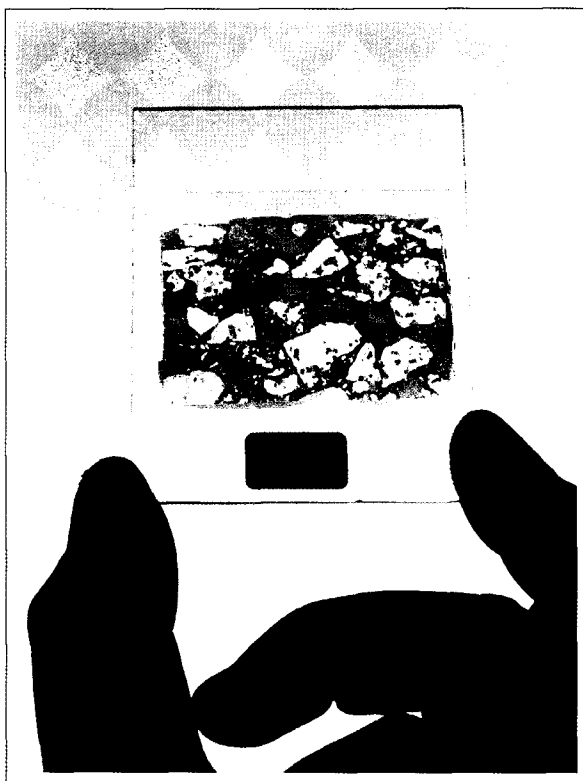


Fig. 3 - Lame mince de béton bitumineux de 30 \times 40 mm.

Les surfaces polies sont préparées de façon identique aux lames minces, mais le meulage est réalisé à l'aide de blocs diamantés. Dans ce cas, on ne procède à l'imprégnation avec la résine d'époxyde que si l'enrobé est très ouvert ou si le liant est très fragile. Une sur-

face polie présente typiquement une épaisseur de 10 mm pour une surface de 10 \times 10 cm environ.

Les procédures détaillées de préparation des lames minces et des surfaces polies sont décrites dans des documents du « Danish Road Institute », qui a également réalisé un film vidéo explicatif [12], [13], [14].

Préparation des échantillons de liants modifiés pour l'observation de leur microstructure

Le liant modifié est réchauffé dans un bain d'huile à 180 $^\circ\text{C}$ environ et réhomogénéisé avec un agitateur mécanique pendant 10 minutes en évitant l'inclusion de bulles d'air. Pendant cette opération, le liant est protégé à l'aide d'un couvercle afin de minimiser l'oxydation. Après homogénéisation, le liant est coulé dans un moule de dimensions 30 \times 30 \times 50 mm, préchauffé à 180 $^\circ\text{C}$. On laisse alors le moule et le liant refroidir à la température ordinaire.

Quand l'échantillon est à la température de la pièce, on réalise une entaille à la partie supérieure, perpendiculairement à la plus grande dimension, à l'aide d'un couteau ou d'un outil équivalent, ce qui permettra d'amorcer la fracture de l'éprouvette en son milieu.

L'échantillon est refroidi à l'aide de neige carbonique jusqu'à fragilisation. On peut alors le casser par flexion au niveau de l'entaille de pré-fissuration.

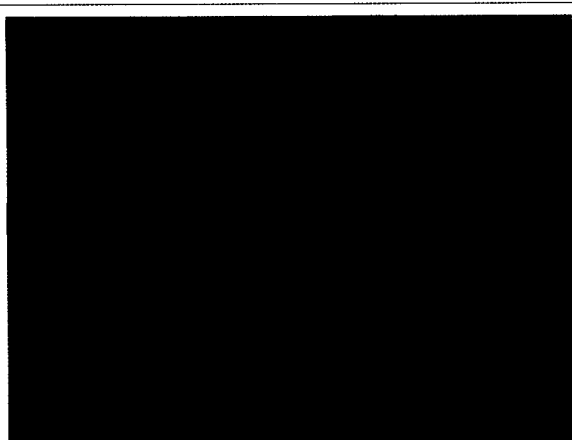
La surface de la fracture ainsi obtenue peut être directement observée au microscope. S'il s'avère nécessaire d'obtenir une surface plus plate, cette dernière peut être améliorée par enlèvement de fines tranches à l'aide d'un microtome après que l'échantillon ait été à nouveau refroidi à l'aide de neige carbonique.

L'observation de la microstructure n'est réalisée que sur la partie centrale de l'éprouvette, de façon à éliminer tout effet de bord (à au moins 10 mm de chaque bord).

Analyse microscopique

La microstructure du bitume polymère des enrobés examinés en lame mince ou en surface polie est observée à l'aide d'un microscope LEITZ MEDILUX sous lumière incidente UV. La source lumineuse est une lampe haute pression au xénon de 75 W. Le microscope est équipé de trois filtres : un filtre d'excitation (BP 420/490), un « séparateur » (RKP 510) et un filtre barrière (LP 515). La lumière incidente traverse le filtre d'excitation, qui laisse passer les longueurs d'onde comprises entre 420 et 490 nm puis

Fig. 4 - Microstructure d'un béton bitumineux



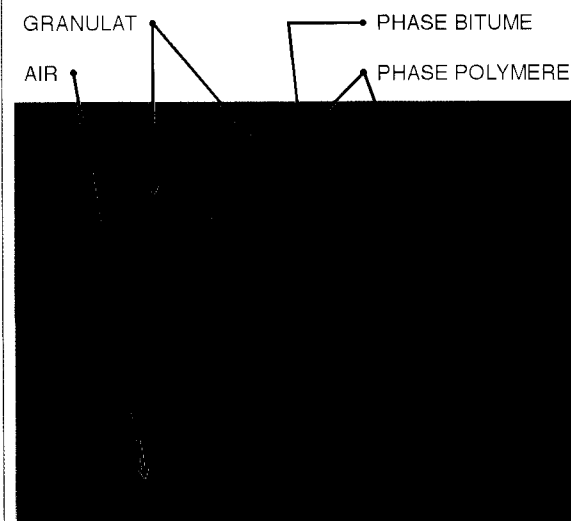
4a. *Lame mince observée sous UV
(plage observée : 0,5 × 0,7 mm).*



4c. *Identique à la figure 4a mais avec nicols croisés
et filtre de gypse.*



4b. *Identique à la figure 4a mais en transmission.*



4d. *Structure d'un enrobé à liant modifié.*

arrive sur l'échantillon. La fraction de lumière non absorbée ainsi que la lumière ré-émise par fluorescence sont envoyées sur le « séparateur », qui réfléchit les longueurs d'onde inférieures à 510 nm et transmet les longueurs d'onde supérieures. En application de la loi de Stokes, la lumière ré-émise par fluorescence a une longueur d'onde supérieure à celle de la lumière d'excitation, ce qui conduit effectivement le « séparateur » à renvoyer la lumière d'excitation et à laisser passer la lumière fluorescente. L'élimination de toute lumière d'excitation parasite résiduelle est assurée par le filtre barrière qui ne laisse passer que les longueurs d'onde supérieures à 515 nm.

Les observations sont généralement effectuées avec des facteurs de grossissement variant de 25 à 500.

Quand le bitume polymère des lames minces ou des surfaces polies d'enrobés spéciaux est éclairé par une lumière UV, la phase polymère, gonflée par une partie des maltènes du bitume, ré-émet une lumière jaune. Les granulats fins et plus gros apparaissent généralement en vert et la phase bitume en noir ou en brun. L'air et les fissures apparaissent en jaune-vert (fig. 4a). Si la distinction entre les différents constituants s'avère difficile, on peut examiner les lames minces par microscopie en lumière polarisée. La lame mince examinée (fig. 4a) est observée (fig. 4b) à l'aide d'un microscope LEITZ LABORLUX 12 Pol à lumière polarisée en transmission et nicols parallèles. Dans ces conditions, la phase polymère est orange et l'air est blanc. Si l'on utilise des nicols croisés et un filtre de gypse (fig. 4c), la phase polymère est rouge, l'air est rose et les granulats présentent des couleurs différentes en fonction de la rotation de l'échantillon dans le plan horizontal. La figure 4d schématise la structure de cet échantillon. Sur la figure 5, une lame mince d'enrobé au bitume pur est examinée sous lumière UV. Les granulats sont toujours verts, mais le bitume montre une légère fluorescence jaune due aux composés polyaromatiques des maltènes.

Enrobés et liants examinés

Les enrobés examinés dans cette étude ont été préparés à l'aide de bitumes modifiés par des EVA (copolymères Ethylène Vinyle Acétate) et des SBS (copolymères Styrene Butadiène Styrene). Des bitumes Moyen-Orient et vénézuélien modifiés par 7 % d'EVA ont été utilisés pour la préparation de bétons bitumineux (AC) et de « Stone Mastic Asphalt » (SMA). Des enrobés identiques (AC et SMA) ont également été préparés à l'aide de bitumes russe et vénézuélien modifiés par 3, 5 et 7 % de SBS. Tous les enrobés ont été préparés en laboratoire.



Fig. 5 - Lame mince de béton bitumineux pur (plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

Les propriétés physiques des différents liants modifiés sont rassemblées dans les tableaux I et II.

Résultats et interprétation

Comparaison de la microstructure du liant modifié tel quel et dans l'enrobé

On a examiné la microstructure des huit bitumes modifiés (six bitumes SBS et deux bitumes EVA) et celle des mêmes liants modifiés dans dix-sept enrobés spéciaux. Il apparaît que, pour cinq des liants, la structure dans l'enrobé est différente de celle du bitume polymère avant enrobage.

On remarque en effet que, dans le cas des liants présentant une phase continue polymère, cette structure n'est pas reconduite pour l'enrobé. Par exemple, le bitume vénézuélien à 7 % d'EVA présente une phase continue polymère (fig. 6). Si, à partir de ce liant, on prépare un SMA (fig. 7 et fig. 8 ; lames minces) on ne retrouve dans aucun cas une matrice continue polymère. On peut faire la même observation pour le bitume russe modifié par 7 % de SBS, qui présente une phase continue polymère et dont on peut observer la structure (fig. 9) et celle du même liant dans un SMA sur les figures 10 (lame mince) et 11 (surface polie).

TABLEAU I
Propriétés physiques des bitumes EVA

Propriétés	Unités	Liant Moyen-Orient	Liant vénézuélien
		7 %	7 %
Pénétration 25 °C, 100 g, 5 s	dmm	37	58
Température Bille et Anneau	°C	69,4	69,2
Indice de pénétration	—	2	3,1
Point de FRAASS	°C	— 11	— 10
Ductilité 10 °C, 5 cm/min	cm	5	12
Viscosité 135 °C	Pa.s	2,05	1,97
Viscosité 180 °C	Pa.s	0,31	0,30

TABLEAU II
Propriétés physiques des bitumes SBS

Propriétés	Unités	Liant russe			Liant vénézuélien		
		3 %	5 %	7 %	3 %	5 %	7 %
Pénétration 25 °C, 100 g, 5 s	dmm	63	57	50	63	54	49
Température Bille et Anneau	°C	52,4	78	95	52,2	74	88
Indice de pénétration	—	0	4,4	6,1	— 0,1	3,7	5,3
Point de FRAASS	°C	— 16	— 15	— 14	— 18	— 16	— 14
Ductilité 10 °C, 5 cm/min	cm	95	99	101	81	90	80
Retour élastique 10 °C	%	68	76	81	71	78	80
Viscosité 135 °C	Pa.s	0,74	1,10	1,71	0,86	1,39	2,12
Viscosité 180 °C	Pa.s	0,13	0,19	0,30	0,13	0,21	0,30

Quand la phase polymère est dispersée sous forme de globules plus ou moins irréguliers dans une matrice bitume pour le liant avant enrobage, les globules sont souvent plus petits dans l'enrobé. C'est ce que l'on observe pour le bitume Moyen-Orient modifié par 7 % d'EVA (fig. 12) et le SMA préparé à partir de ce liant (fig. 13). Il en est de même pour le bitume vénézuélien

modifié par 5 % de SBS (fig. 14) et le SMA préparé avec ce liant (fig. 15).

La même structure pour le bitume polymère tel quel et le liant dans l'enrobé n'est observée que pour les deux liants modifiés à 3 % de SBS : la structure du bitume vénézuélien à 3% de SBS (fig. 16) est la même que celle du liant dans le SMA (fig. 17).

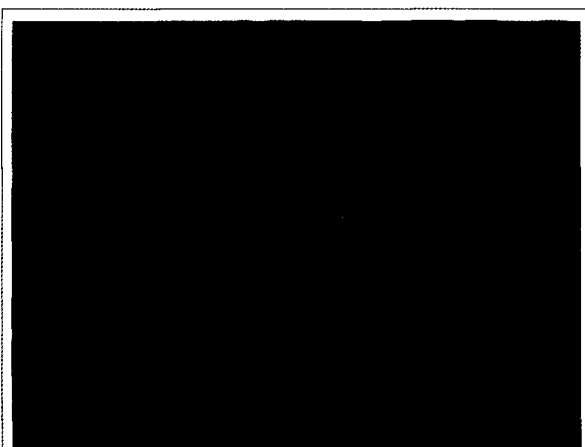


Fig. 6 - Microstructure du bitume vénézuélien modifié par 7 % d'EVA (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

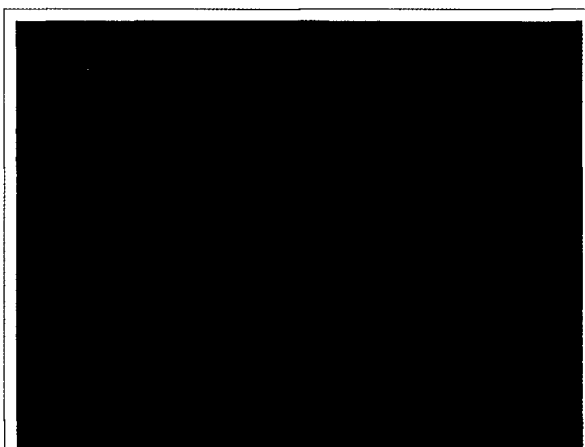


Fig. 9 - Microstructure du bitume russe modifié par 7 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

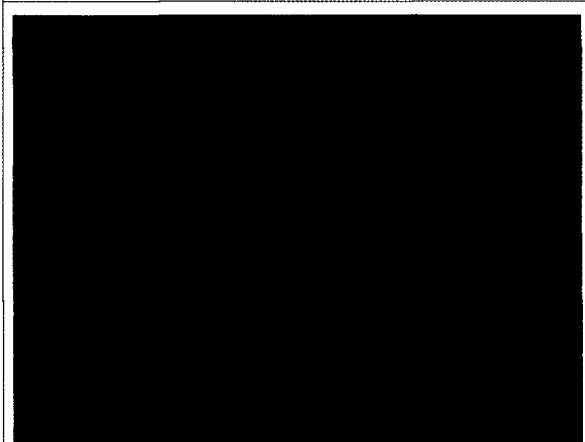


Fig. 7 - Lame mince d'un SMA au bitume vénézuélien à 7 % d'EVA (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

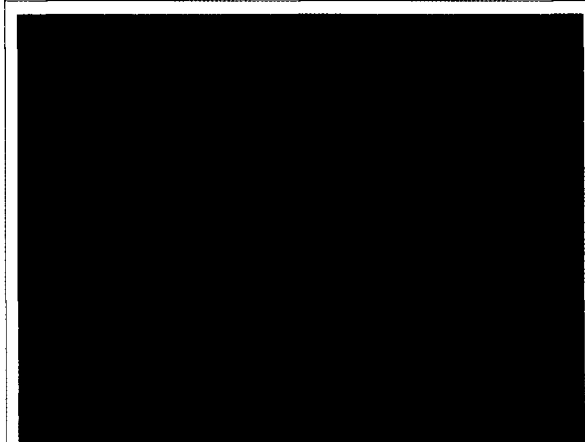


Fig. 10 - Lame mince d'un SMA au bitume russe à 7 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

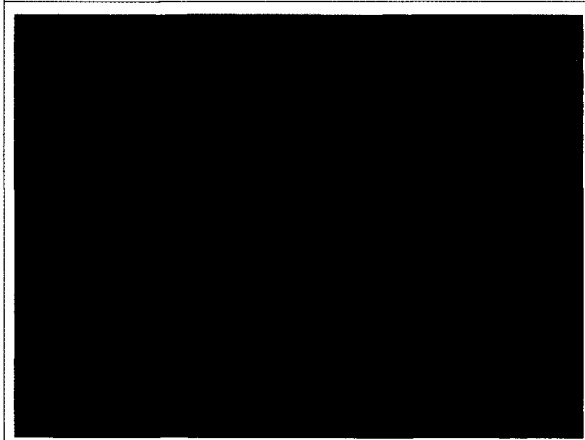


Fig. 8 - Lame mince d'un SMA au bitume vénézuélien à 7 % d'EVA (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

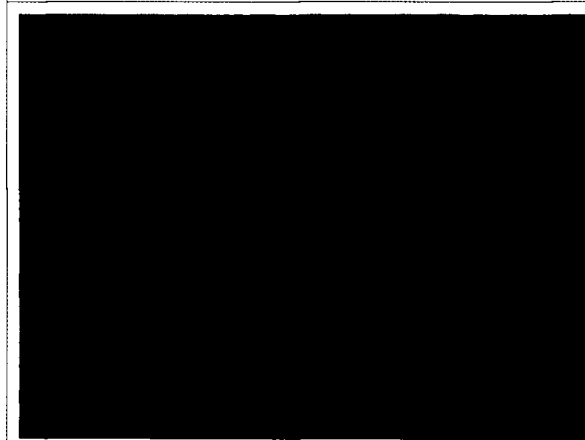


Fig. 11 - Surface polie de SMA au bitume russe à 7 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).



Fig. 12 - Microstructure du bitume Moyen-Orient modifié par 7 % d'EVA (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

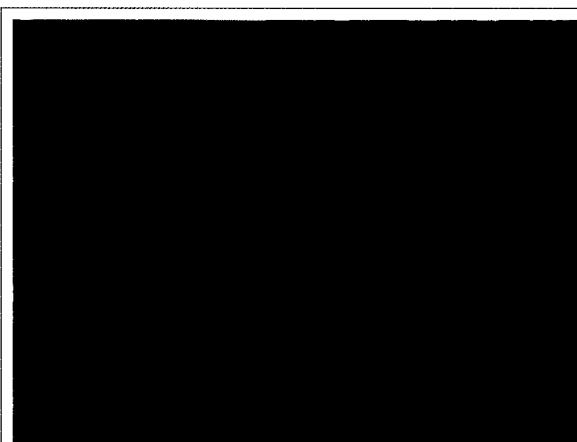


Fig. 15 - Lame mince de SMA au bitume vénézuélien modifié à 5 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

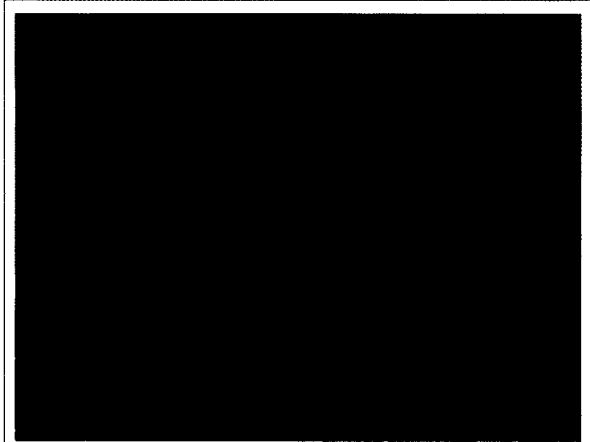


Fig. 13 - Lame mince de SMA au bitume Moyen-Orient à 7 % d'EVA (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

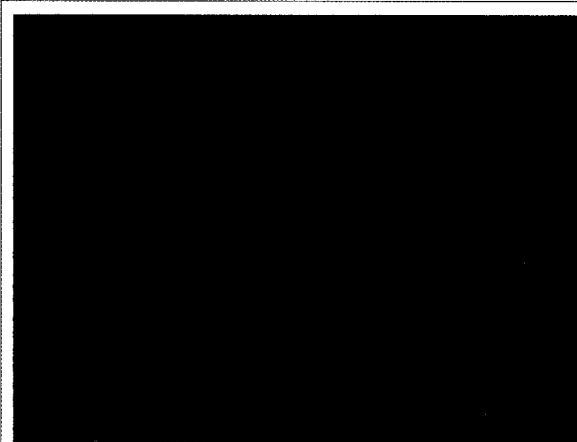


Fig. 16 - Microstructure du bitume vénézuélien modifié par 3 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

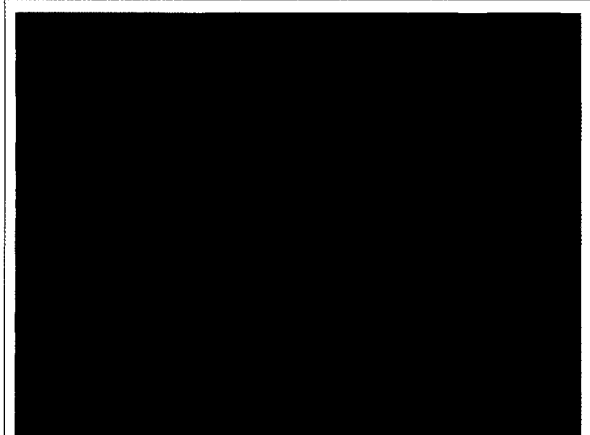


Fig. 14 - Lame mince du bitume vénézuélien modifié par 5 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

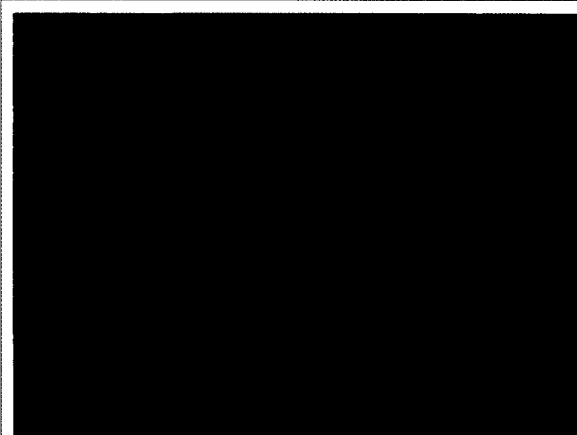


Fig. 17 - Lame mince de SMA au bitume vénézuélien à 3 % de SBS (Plage observée : 0,5 × 0,7 mm).

Comparaison de la microstructure des bitumes SBS et des bitumes EVA dans les enrobés spéciaux

Dans les douze bétons bitumineux préparés à partir des bitumes SBS, la phase polymère apparaît sous forme de particules ou de globules irréguliers plus ou moins importants dans une phase continue de bitume. Les globules sont gonflés par une fraction des maltènes du bitume et on peut observer un réseau de phase SBS à l'intérieur de certains globules.

La figure 11 montre des globules de phase SBS dans le SMA préparé à partir du bitume russe, modifié par 7 % de SBS.

Dans les enrobés préparés à partir des bitumes EVA, la phase EVA peut également être observée sous forme de globules plus ou moins gros et de formes plus ou moins irrégulières, dispersés dans une phase continue de bitume mais, complémentaiement, la phase EVA peut aussi être observée sous forme de film autour des granulats (fig. 8), ou à quelques micromètres de la surface de ces derniers (fig. 7). Il semble donc que la phase EVA présente dans ce cas une certaine affinité pour la fraction minérale de l'enrobé.

Cette affinité de la phase EVA pour la surface des granulats est peut-être expliquée par la polarité des différents constituants du mélange. Si la phase EVA, gonflée par une fraction des maltènes, a un paramètre de solubilité supérieur à celui de la phase bitume, elle peut adhérer, à l'équilibre, aux granulats dont la surface est très polaire. Là où l'on observe un film de quelques micromètres entre le granulat et la phase EVA, il est possible que l'on soit hors équilibre, ou qu'une fraction des asphaltènes, qui ne participent pas au gonflement de l'EVA, soit adsorbée entre la surface du granulat et le film de phase EVA.

Le film de phase EVA dans le cas du SMA préparé à partir du bitume vénézuélien modifié est à quelques micromètres de la surface du minéral et présente une épaisseur de l'ordre de 35 μm (fig. 7). Dans le cas de la figure 8, la phase polymère est au contact du granulat. Ces observations semblent indiquer que le même liant dans le même enrobé peut conduire à des microstructures proches mais non rigoureusement identiques (peut-être en raison du problème de structure à l'équilibre évoqué plus haut).

Dans le cas du SMA, l'épaisseur du film de phase EVA varie de 10 à 70 μm avec une épaisseur moyenne de l'ordre de 20 μm (fig. 7 et 8).

Si l'on observe un enrobé drainant ne comportant que 3 % de filler et préparé avec le même liant, l'épaisseur du film est beaucoup plus importante (fig. 18) que celle du film observé

dans le cas du SMA comportant 10 % de filler, puisqu'elle est de l'ordre de 175 μm .

On peut penser qu'une forte teneur en filler dans le mastic influe sur l'affinité entre le granulat et la phase EVA en raison de sa surface spécifique très importante comparativement à celle du granulat. Pour éclairer ce point, nous avons observé des mélanges de bitume vénézuélien à 7 % d'EVA avec 10, 50 et 70 % de filler calcaire et constaté l'influence de ce dernier sur la microstructure.

Si l'on compare le liant (fig. 6) et le mélange à 10 % de filler calcaire (fig. 19), il n'apparaît pas de différence sensible. Dans le cas des mélanges à 50 % (fig. 20) et 70 % (fig. 21), on constate que ce dernier a effectivement une influence sur la microstructure. Le SMA contenant 10 % de filler et 6 % de liant, la teneur en filler du mastic est de 63%, ce qui est comparable au cas de la figure 21 (mélange à 70 % de filler).

On observe un film de phase EVA adhérent au granulat avec le bitume vénézuélien modifié dans le cas de l'AC, du SMA et de l'enrobé drainant préparés aussi bien à partir de granulats dioritiques que de granulats granitiques. On fait la même observation avec le bitume Moyen-Orient modifié par 7 % d'EVA dans le cas de l'AC et du SMA préparés avec des granulats dioritiques et granitiques, ce qui semble donner un caractère assez général à ce phénomène.

Comparaison de la microstructure des liants modifiés dans les bétons bitumineux et les SMA

Si l'on compare la microstructure des bitumes EVA (vénézuélien ou du Moyen-Orient) dans les AC et les SMA, on n'observe pas de différence sensible. Les AC et SMA préparés à partir des mêmes bitumes SBS conduisent également aux mêmes microstructures des liants modifiés. La formulation de l'enrobé spécial ne semble donc pas influencer sur la structure du liant modifié.

Microstructure du liant dans des enrobés préparés avec des bitumes polymères différents quant à l'origine du bitume

Bien que les microstructures des bitumes EVA base Vénézuéla (fig. 6) et Moyen-Orient (fig. 12) soient très sensiblement différentes, on n'observe pas de différence significative de leur structure dans les bétons bitumineux (fig. 7, 8 et 13). On observe une phase continue EVA pour le liant à base de bitume vénézuélien et une phase continue de bitume pour le liant à base de bitume du Moyen-Orient. Dans tous les enrobés, on observe la phase EVA sous forme de globules plus ou moins irréguliers et de film adhérent aux granulats.

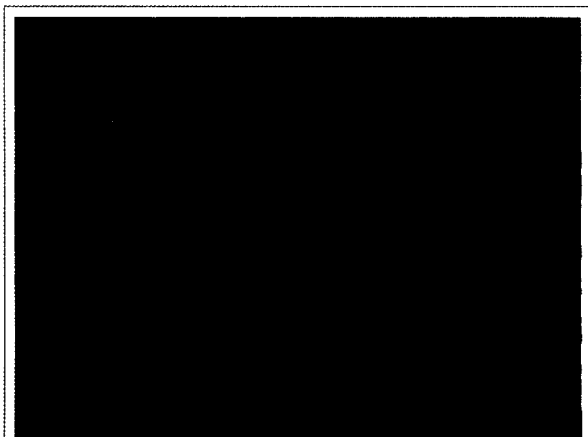


Fig. 18 - Lame mince de béton bitumineux drainant au bitume vénézuélien à 7 % d'EVA (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).

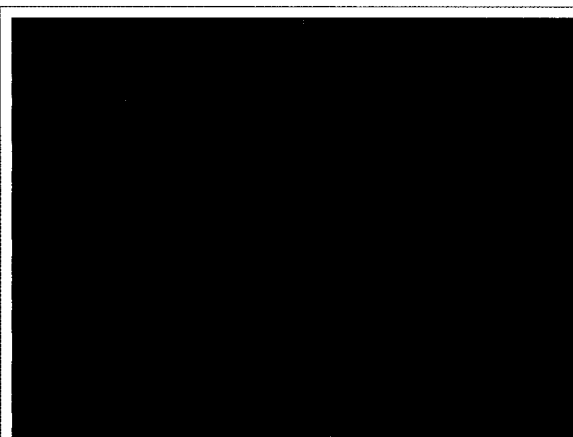


Fig. 21 - Microstructure d'un mélange de bitume vénézuélien à 7 % d'EVA et de 70 % de filler calcaire (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).

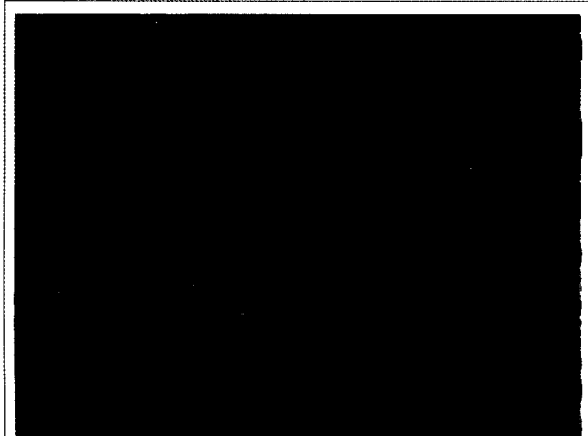


Fig. 19 - Microstructure d'un mélange de bitume vénézuélien à 7 % d'EVA et de 10 % de filler calcaire (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).



Fig. 22 - Microstructure du bitume vénézuélien modifié par 7 % de SBS (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).

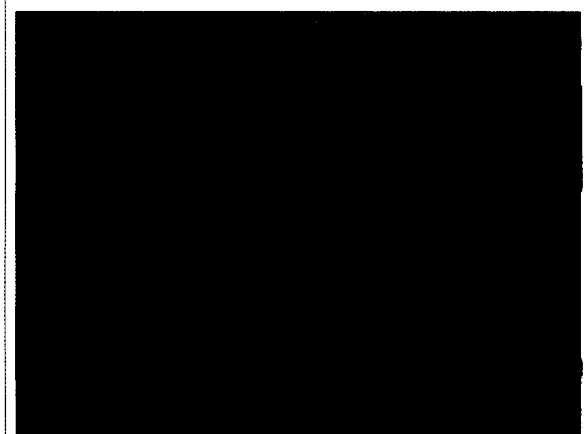


Fig. 20 - Microstructure d'un mélange de bitume vénézuélien à 7 % d'EVA et de 50 % de filler calcaire (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).

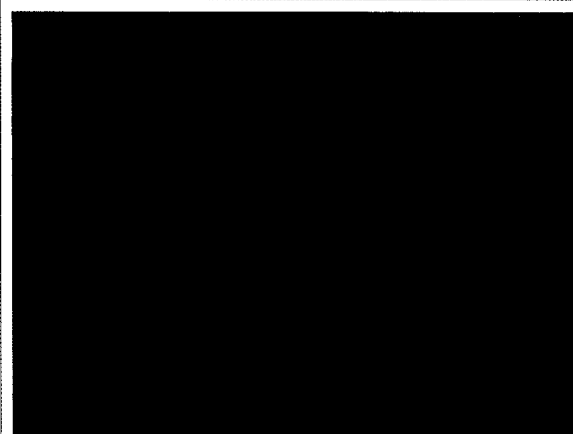


Fig. 23 - Surface polie de SMA au bitume vénézuélien à 7 % de SBS (Plage observée : $0,5 \times 0,7$ mm).

Dans le même esprit, on n'observe pas de différence sensible de microstructure dans les enrobés préparés à partir des bitumes SBS base Vénézuéla ou russe, bien que la phase SBS semble distribuée de façon plus homogène dans le cas du bitume russe. Cette observation est valable également, en dépit du fait que la phase SBS est continue, dans le cas du bitume russe (fig. 9) alors qu'elle est dispersée dans le cas du bitume vénézuélien (fig. 22). Dans tous les enrobés, on observe la phase SBS sous forme de globules plus ou moins gros et de forme plus ou moins irrégulière, dispersés dans une phase continue de bitume.

Influence de l'augmentation de la teneur en polymère sur la microstructure

On a observé la microstructure des liants SBS à 3,5 et 7 % de polymère base russe et base Vénézuéla dans les SMA et les bétons bitumineux. On n'observe de phase continue SBS dans aucun des douze enrobés, bien que l'un des liants à 7 % de SBS présente une phase continue polymère.

L'effet de l'augmentation de la teneur en polymère est toutefois clairement visible dans les SMA préparés avec les bitumes modifiés base Vénézuéla (fig. 17 : 3 %, fig. 15 : 5 %, figure 23 : 7 %) et base russe.

Dans le cas des enrobés préparés à partir du liant à 7 % de SBS, la phase polymère semble très près de former un réseau (fig. 11 et 23). Toutefois, il n'a pas été examiné si la phase polymère peut conduire à un réseau dans les trois dimensions de l'espace (application de la théorie de la percolation). L'hypothèse de la formation d'un réseau pour une teneur supérieure en polymère mérite d'être confirmée. On peut toutefois observer que, dans tous les cas, la phase polymère n'adhère pas au granulat.

Comparaison des techniques d'observations : lames minces et surfaces polies

La préparation d'une section polie d'enrobé bitumineux est rapide et aisée, plus particulièrement si l'imprégnation par la résine d'époxyde n'est pas indispensable (auquel cas elle peut être préparée en deux heures et demie). Compte tenu de l'épaisseur de l'échantillon, il est plus facile de le maintenir à basse température comparative-ment aux lames minces. Cela signifie également qu'il est plus aisé de procéder au meulage et au polissage sans modifier la structure du bitume polymère.

Une lame mince se réchauffe plus vite pendant les opérations de meulage et de polissage, aussi est-il nécessaire de prendre beaucoup de précau-

tions pour ne pas modifier la structure du bitume polymère, ce qui implique des refroidissements très fréquents de l'échantillon.

Habituellement la structure du bitume polymère est clairement observable sur une surface polie, mais il peut être nécessaire de préparer une lame mince s'il s'avère difficile de distinguer la phase polymère du filler ou du granulat. Une lame mince est observable en microscopie optique en transmission avec des nicols parallèles ou croisés et filtre de gypse, ce qui rend possible la distinction entre la phase polymère, le filler ou le granulat, et l'air puisque ces phases apparaissent sous des couleurs différentes.

Les lames minces présentent également l'avantage de pouvoir être observées à des grossissements plus importants, ce qui permet d'obtenir des informations complémentaires sur la structure de l'enrobé telles que la composition minéralogique du granulat ou du filler, sur des indices d'altération du granulat, sur la répartition du filler et l'homogénéité du mastic, sur la présence de fillers spéciaux tels que les cendres volantes ou les fibres, sur l'adhésion liant-granat, y compris les indices de désenrobage, l'absorption d'une fraction du liant par des granulats poreux, la localisation et la dimensions des fissures, etc.

On recommande l'observation de la structure des bitumes polymères sur des sections polies pour des contrôles de qualité. Dans le cas de travaux ou recherches scientifiques, d'expertise ou de développement, on peut examiner des surfaces polies et/ou des lames minces pour l'observation de la structure des bitumes polymères dans les bétons bitumineux spéciaux.

Conclusion

Cette étude montre qu'il est possible de préparer des lames minces ou des surfaces polies à partir de bétons bitumineux spéciaux pour l'observation microscopique de la structure des bitumes polymères sans modifier cette dernière. C'est une technique très efficace pour l'évaluation de l'intérêt de la modification des bitumes par des polymères et une excellente méthode pour l'expertise directe des interactions polymère-granat ou filler.

L'étude, limitée à des bitumes plastomères ou élastomères obtenus par simple mélange physique, confirme et complète une étude antérieure de F. Durrieu et M. Ballie [7] : dans la majorité des cas étudiés (bitumes EVA et SBS), la structure du liant modifié observé dans l'enrobé spécial n'est pas toujours comparable à celle du bitume polymère avant enrobage. On n'observe pas de phase continue polymère dans l'enrobé quand bien même elle existe sur le liant avant enrobage.

Là où la phase polymère est visible sous forme de globules de dimensions plus ou moins importantes dispersés dans une phase continue de bitume, dans le cas du liant tel quel, ces globules sont généralement sensiblement plus petits dans l'enrobé. Seuls les liants à faibles teneur en polymère (3 % environ) conduisent à observer une structure identique du liant tel quel et du liant dans l'enrobé.

Dans les enrobés spéciaux à base de bitume SBS, la phase polymère est observée sous forme de globules irréguliers plus ou moins importants dispersés dans une phase continue bitume. Dans le cas des EVA, une partie de la phase polymère semble se concentrer au contact des granulats dans l'enrobé, ou très près de ces derniers, l'autre partie pouvant être observée sous forme de globules plus ou moins importants dispersés dans une phase continue bitume.

Des investigations complémentaires sont donc nécessaires qui permettront d'évaluer l'influence du temps de malaxage, d'une part, et de la température de malaxage, d'autre part, sur la microstructure des bitumes polymères dans les enrobés spéciaux.

Les observations réalisées dans le cadre de cette étude soulèvent le problème des relations entre les caractéristiques des bitumes polymères et les performances des enrobés spéciaux puis, ultérieurement, celui de spécifications performantielles pour les bitumes polymères. En effet, celles-ci impliquent que les relations liant-enrobé soient simples, ce qui signifie l'absence d'interactions bitume polymère-granat spécifique du type de polymère. Cette hypothèse paraît mise en cause par cette étude, qui montre qu'avec l'un des polymères mis en œuvre (EVA) il pourrait, dans certains cas, exister des interactions.

Remerciements

Cette recherche a été conduite dans le cadre d'un projet « Brite Euram » : Analyse de la qualité des bitumes polymères et des enrobés spéciaux au moyen de l'analyse d'images obtenues par microscopie optique de fluorescence en réflexion (Quality Analysis of Polymer Modified Bitumen's Products by Image Analysis with Fluorescent Light : « MIAF » projet n° P-7426/BRE 2 - 0951, financé par la Communauté Européenne).

Les auteurs tiennent à remercier leurs partenaires pour leur aimable collaboration dans la préparation de cet article :

- Ramboll, Dansk Vejteknologi : H.C. Korsgaard, J. Sundhl, J. Blumensen,
- Ramboll, G.M. Idorn Consult : N. Thaulow, L. Palbol,
- Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB) : J.-C. Maréchal,
- Jean Lefebvre : M. Mazé,
- Ooms Avenhorn : A. Srivastava, R.v. Rooijen,
- Université de Nottingham : S. Brown, G. Airey,
- Danish Road Institute : H.J. Ertman Larsen.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] ERIKSEN K., NEIDEL A. (1990), *Thin sections of asphalt concrete preparation techniques*, Strategic Highway Research Program, Contract n° SHRP-88-AIIR-13, Phase 1, Subtask 1.1-1, p. 15.
- [2] ERIKSEN K., WEGAN V., KRARUP J. (1992), *Air void content and other air characteristics of asphalt concrete by image analysis*, Strategic Highway Research Program, Contract n° SHRP-88-AIIR-13, Phase 2, p. 35.
- [3] ERIKSEN K. (1992), *Air void characteristics in asphalt concrete samples from the compaction study*, Strategic Highway Research Program, Contract n° SHRP-88-AIIR-13, Phase 3a, p. 20.
- [4] ERIKSEN K., WEGAN V. (1993), *Optical methods for the evaluation of asphalt concrete and polymer-modified bituminous binders*, 5th Eurobitume Congress, pp. 705-708, Stockholm.
- [5] ERIKSEN K. (1993), *Microscopical analysis of asphalt-aggregate mixtures related to pavement performance*, Danish Road Institute, Note 245, p. 17.
- [6] SHIN E. et al. (1996), *Microstructure, morphology, and failure modes of polymer-modified asphalt*, Transportation Research Record, n° 1535, Materials and Construction, pp. 61-73.
- [7] DURRIEU F., BALLIE M. (1993), *Observation microscopique d'enrobés à base de bitumes-polymères*, 5th Eurobitume Congress, pp. 86-90, Stockholm.
- [8] KORGAARD H.C., SUNDAHL J. (1997), *Quality analysis with fluorescent light*, European asphalt magazine, 1, pp. 22-25.
- [9] BRÛLÉ B., DRUON M. (1975), *La microscopie de fluorescence appliquée à l'observation de*

- bitumes thermoplastiques, *Bulletin de liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, **79**, pp. 11-14.
- [10] BRÛLÉ B., BRION Y., TANGUY A. (1988), *Paving asphalt polymer blends : Relationships between composition, structure and properties*, Proceedings of the Association of Asphalt Paving Technologists, pp. 41-64, Williamsburg, Virginia.
- [11] DONY A., DURRIEU F. (1990), Influence de la nature du bitume sur les propriétés et la stabilité des liants bitumes-polymères, *Bulletin de liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, **168**, pp. 57-63.
- [12] *Microscopic analysis of asphalt concrete mixtures. Preparation techniques for thin plane sections*, Danish Road Institute, Information Guide, p. 13.
- [13] Video, *Thin section of asphalt concrete. Preparation techniques*, Danish Road Institute.
- [14] Video, *Plane sections of asphalt concrete. Preparation techniques*, Danish Road Institute.
-

ABSTRACT

Comparison between the microstructure of polymer- modified bitumen in pure form and in bituminous mixes

V. WEGAN, B. BRÛLÉ

Optical fluorescence microscopy has been applied to observe the microstructure of polymer-modified bitumen. This technique can be used on either thin sections or polished surfaces.

The study shows that in most cases the structure of the binder in the bituminous mixture differs from that of the polymer-modified bitumen prior to coating. In coated materials, Styrene-Butadiene-Styrene (SBS) or Ethylene-Vinyl-Acetate (EVA) binders have a microstructure in which the polymer phase consists of globules of varying size and regularity which are dispersed in a continuous bitumen phase (even when there is a polymer matrix at the outset). In addition, the EVA phase often takes the form of a film on the surfaces of aggregate particles with which it appears to have a certain affinity. This affinity seems to be affected by the filler content.

In view of these factors, we consider that there may be problems in the development of performance-based specifications for polymer-modified bitumens as a result of specific interactions between the polymer phase and the aggregate.