

THESE

pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Université de Rouen

Discipline : Physique

Spécialité : Energétique, génie des procédés

présentée et soutenue publiquement par

Régis SEBBEN PARANHOS

le 20 février 2007

APPROCHE MULTI-ÉCHELLES DES ÉMISSIONS D'UN PROCÉDÉ D'ÉLABORATION DES ENROBÉS A CHAUD

Composition du jury :

Jean-Michel MOST, Directeur de Recherche, CNRS	Rapporteur, Président
Yves PERRODIN, HDR, Directeur de Recherche, ENTPE	Rapporteur
Agnès JULLIEN, Directrice de Recherche, LCPC	Directrice de thèse
Jean-Charles SAUTET, Professeur des Universités, Université de Rouen	Co-directeur de thèse
Chantal de LA ROCHE, Dr ECP, IDTPE, LCPC	Conseillère d'étude
Bruno SPORTISSE, Directeur du CEREAS, ENPC	Examineur
Bernard LOMBARDI, Directeur Général du Groupement Professionnel des Bitumes	Examineur
M. Thierry DE SARS, Directeur Produits, Département Centrales d'Enrobage, Groupe Fayat	Examineur

Dédicace

A mon beau-père Becklerc Oliveira da Silva,
Ingénieur Agronome et chercheur au Brésil
(*in memoriam*)

Remerciements

Tout d'abord je tiens à remercier les dirigeants du CNPq au Brésil pour le soutien financier (bourse d'études). Je suis conscient du privilège que mon pays m'a accordé. En tant que fonctionnaire au DAER, département responsable des routes de l'État du Rio Grande do Sul, je remercie sa direction, grâce à qui j'ai obtenu la décharge de mes fonctions.

Je tiens à remercier M. Michel Ledoux, Directeur du Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie (CORIA), d'avoir inscrit ma thèse au sein de cet établissement et M. Rémi Pochat, Directeur Scientifique du LCPC, de m'avoir permis d'entreprendre cette thèse au sein du laboratoire de Nantes.

Je remercie chaleureusement Mme Agnès Jullien, directrice de thèse, M. le Professeur Jean-Charles Sautet, codirecteur de thèse et Mme Chantal de La Roche, conseillère d'études, d'avoir accepté de m'accompagner dans ce travail et de m'avoir prodigué un soutien permanent.

Mes remerciements vont aussi à M. Jean Michel MOST, Directeur de Recherche et M. Yves Perrodin, Directeur de Recherche, qui ont accepté de rapporter sur ma thèse, ainsi qu'à Messieurs Bruno Sportisse, Directeur du CEREAS, Thierry De Sars, Directeur Produits du Département Centrales d'Enrobage du Groupe FAYAT, et Bernard Lombardi, Directeur Général du Groupement Professionnel des Bitumes, pour avoir accepté de participer au jury.

Je remercie par ailleurs tous les partenaires pour leur contribution aux travaux de certaines phases de la thèse :

- Michel Schemid, Directeur du Parc Routier de Blois (DDE 41),
- Bernard Lombardi, Directeur Général du Groupement Professionnel des Bitumes
- Thierry De Sars, Directeur Technique Fayat Group (ERMONT),
- François Deygout, Bitumen H&E and Specialities,
- Michel Dunand, Responsable Technique Sud Guintoli,

et en leur nom, l'ensemble des personnes qui ont contribué aux expérimentations.

Je tiens aussi à remercier tous mes collègues au Brésil qui m'ont toujours soutenu, j'ai du mal à tous les nommer. Mais je voudrais en remercier deux spécialement, M. Carlos Hoffmann Sampaio et M. Carlos Otavio Petter, professeurs à l'Université Fédérale du Rio Grande do Sul (UFRGS), collègues de plus de 25 ans, pour leurs précieuses collaborations et motivations. Au nom de MM. Sampaio et Petter, je remercie tous mes collègues brésiliens. Au Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (LCPC), au nom de Mme Jullien et Mme de La Roche, je remercie tous mes collègues du LCPC, français et étrangers.

Je voudrais finir mes remerciements avec Pierre Monéron, de la Section Développement Durable, qui m'a apporté des connaissances indispensables sur les centrales d'enrobage.

Enfin, je ne peux pas oublier ma famille, mon épouse Ana Lucia, ma fille Lívia et mon fils Otávio, qui ont vécu avec moi ces trois années passées en France.

Resume

Approche Multi-échelles des émissions d'un procédé d'élaboration des enrobés à chaud

L'objet principal de la thèse a consisté à élaborer une méthodologie d'analyse multi-échelles du procédé d'enrobage. Une première échelle, celle de l'enrobage en centrale a d'abord été considérée afin d'analyser la production d'enrobé selon une méthodologie appropriée et d'obtenir des plages d'émissions en relation avec la consommation. Il a aussi été mené une étude à l'échelle du laboratoire, pour évaluer le procédé de malaxage, en caractérisant les émissions et le vieillissement de l'enrobé. Les concentrations de O₂, CO₂, CO, SO₂, COT, CH₄ et HAP ont été mesurées sur deux centrales. En laboratoire, des mesures de COT et de HAP ont permis de caractériser les émissions issues de l'enrobé en utilisant un malaxeur. Deux indicateurs ont été proposés: l'un lié à la combustion en centrale, pour repérer des conditions de fabrications stabilisées, et l'autre lié au potentiel d'émission des matériaux en laboratoire, pour permettre les comparaisons des émissions pour des températures, bitumes et formules différentes.

Mots clés : Centrale d'enrobage TSE, Émissions gazeuses, COT, HAP et vieillissement

Abstract

Multi-scales approach of emissions by a Drum Mixer Hot Mix Asphalt Plant

The main objective of the thesis finally consisted in working out a methodology of multi-scales analysis of HMA process. A first scale, that of processing asphalt in a HMA Plant, was initially considered in order to analyze the production of bituminous mix according to a suitable methodology and to obtain a range of emissions in relation to consumption. Besides, it was also carried out a study at the laboratory scale in order to evaluate the process of bituminous mix, by characterizing the emissions and the aging of the bituminous mix produced. The concentrations of O₂, CO₂, CO, SO₂, TOC, CH₄ and PAH were measured on the two HMA Plants. In laboratory tests, specific measurements of TOC and PAH made it possible to characterize the emissions resulting from the bituminous mix by using a thermo-mixer. Two indicators were proposed: one related to the quality of combustion in HMA Plants in order to find stabilized conditions of production, and the other related to the potential of materials emission in laboratory in order to allow emissions comparisons for temperatures, types of binders and different formula.

Key words : Drum Mixer, Hot Mix Asphalt Plant, Gas Emissions, TOC, PAH and ageing

INTRODUCTION GENERALE	13
1 PROBLEMATIQUE INDUSTRIELLE ET CONTEXTE DU TRAVAIL	13
2 OBJECTIFS ET DEROULEMENT DU TRAVAIL.....	15
CHAPITRE 1 - PROBLEMATIQUE DES EMISSIONS LIEES A LA PRODUCTION D'ENROBES A CHAUD EN CENTRALE	17
INTRODUCTION.....	18
1 ENROBES BITUMINEUX : COMPOSITION, PROPRIETES ET USAGES.....	18
1.1 GRANULATS ET AGREGATS.....	18
1.2 BITUMES	19
1.2.1 Composition des bitumes	19
1.2.2 Comportement.....	20
1.2.3 Classes de bitumes et propriétés	20
1.2.4 Vieillessement des bitumes	21
1.3 MELANGES BITUMINEUX	24
1.3.1 Composition.....	24
1.3.2 Propriétés mécaniques des matériaux bitumineux.....	25
2 CENTRALES D'ENROBAGE : LES DIFFERENTS PROCEDES	26
2.1 ELEMENTS DESCRIPTIFS DES SITES DE PRODUCTION	26
2.2 PRODUCTION JOURNALIERE.....	29
2.3 PROCEDES D'ENROBAGE : PRINCIPES ET MATERIELS	30
2.3.1 Centrale d'enrobage discontinue.....	30
2.3.2 La centrale d'enrobage continue équmourant ou co-courant.....	31
2.3.3 La centrale d'enrobage continue à contre courant.....	33
2.4 FONCTIONNEMENT D'UN TSE	34
2.4.1 Paramètres de fonctionnement.....	34
2.4.2 Réglages et écoulement d'air.....	36
2.5 COMBUSTION ET COMBUSTIBLES.....	38
2.5.1 Généralités sur la combustion	38
2.5.2 Généralités sur les combustibles.....	40
2.5.3 Cas particulier du gaz naturel	41
2.5.4 Cas particulier du fuel lourd.....	43
3 ÉMISSIONS A L'ATMOSPHERE.....	44
3.1 CARACTERISATION DES PRINCIPAUX POLLUANTS ETUDIES	44
3.1.1 L'oxygène.....	44
3.1.2 Le monoxyde de carbone.....	45
3.1.3 Le dioxyde de carbone	45
3.1.4 Les oxydes d'azote	45
3.1.5 Les Composés Organiques Volatils	45
3.1.6 Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques	46

3.2	POLLUANTS ATMOSPHERIQUES EMIS PAR LES BITUMES ET LES ENROBES.....	47
3.2.1	<i>Caractérisation d'émissions de résidus pétroliers.....</i>	47
3.2.2	<i>Mesures en laboratoire d'émissions de bitume.....</i>	48
3.2.3	<i>Polluants atmosphériques émis par les enrobés bitumineux.....</i>	52
3.3	POLLUANTS ATMOSPHERIQUES EMIS PAR LA COMBUSTION	56
3.4	POLLUANTS ATMOSPHERIQUES EMIS PAR LES CENTRALES D'ENROBAGE.....	60
3.4.1	<i>Sources d'émission canalisées et obtention de données de sites.....</i>	60
3.4.2	<i>Facteurs d'émission et qualité des données.....</i>	61
3.4.3	<i>Incidence des réglages sur les émissions</i>	63
3.5	REGLEMENTATION DANS DIFFERENTS PAYS DU MONDE RELATIVE AUX CENTRALES D'ENROBAGE ET AUX SOURCES DE POLLUANTS.....	65
3.5.1	<i>Réglementation française et européenne</i>	65
3.5.2	<i>Réglementation aux États Unis</i>	70
3.5.3	<i>Réglementation au Brésil</i>	71
3.5.4	<i>Autres aspects réglementés</i>	72
4	CONCLUSIONS DU CHAPITRE 1.....	73
	CHAPITRE 2 - METHODOLOGIE D'ETUDE DES EMISSIONS DU PROCEDE D'ENROBAGE A DIFFERENTES ECHELLES.....	75
	INTRODUCTION.....	76
1	PRESENTATION DES ETAPES DU TRAVAIL DE THESE	76
1.1	POSITIONNEMENT DU TRAVAIL	76
1.1.1	<i>Présentation des TSE étudiés dans leur contexte industriel.....</i>	76
1.1.2	<i>Production annuelle type du TSE fixe en conditions usuelles.....</i>	78
1.1.3	<i>Productions journalières types des TSE fixe et mobile étudiés.....</i>	81
1.1.4	<i>Bilan des campagnes antérieures du LCPC réalisées en conditions dédiées sur le TSE fixe</i>	82
1.2	DECOMPOSITION DU PROCEDE D'ENROBAGE ETUDIE EN ECHELLES SIGNIFICATIVES D'ETUDE...	85
1.2.1	<i>Description du procédé dans son environnement</i>	85
1.2.2	<i>Objectifs du travail à chaque échelle d'étude.....</i>	89
2	METHODOLOGIE D'ETUDE A CHAQUE ECHELLE	91
2.1	PRINCIPES DE MESURES DES EMISSIONS AUX DIFFERENTES ECHELLES.....	91
2.2	METHODOLOGIE D'ETUDE DES EMISSIONS LORS DE L'ENROBAGE EN CENTRALE	91
2.2.1	<i>Conditions de production étudiées et objectifs</i>	91
2.2.2	<i>Méthodologie de collecte de données centrale.....</i>	92
2.2.3	<i>Méthodologie d'exploitation des résultats</i>	96
2.2.4	<i>Étude d'un indicateur de la qualité de la combustion.....</i>	99
2.3	METHODOLOGIE D'ETUDE DES EMISSIONS LORS DU MALAXAGE EN LABORATOIRE	100
2.3.1	<i>Conditions d'élaboration étudiées et objectifs.....</i>	100
2.3.2	<i>Méthodologie de collecte de données laboratoire</i>	101
2.3.3	<i>Méthodologie d'exploitation des résultats</i>	102
2.3.4	<i>Étude d'un indicateur du potentiel d'émission des matériaux</i>	107

2.4	RETOUR SUR L'ECHELLE DE DEPART	108
3	CONCLUSION DU CHAPITRE 2	108
	CHAPITRE 3 - ÉTUDE DU PROCÉDÉ TSE ET DE SES ÉMISSIONS	111
	INTRODUCTION.....	112
1	PRÉSENTATION DES CAMPAGNES D'ESSAIS SUR SITE	112
1.1	ENROBES PRODUITS LORS DES CAMPAGNES DE MESURES	112
1.1.1	Conditions dédiées de fabrication sur la centrale TSE fixe au gaz naturel	112
1.1.2	Conditions usuelles de fabrication sur les deux centrales	113
1.2	PRÉSENTATION DE L'INSTRUMENTATION ET DÉROULEMENT DES CAMPAGNES D'ESSAI.....	114
1.2.1	Mesures réalisées.....	114
1.2.2	Centrale fixe au gaz naturel.....	116
1.2.3	Centrale mobile au fuel lourd.....	118
2	ÉTUDE EN CONDITIONS DÉDIÉES	120
2.1	REGLAGE PRÉLIMINAIRE DE LA COMBUSTION (BRULEUR)	120
2.1.1	Conditions de réglage sur la centrale TSE fixe de Blois.....	120
2.1.2	Méthodologie de réglage	121
2.1.3	Résultats du réglage effectué	122
2.1.4	Indicateur de combustion après réglage.....	124
2.2	PLAN D'EXPERIMENTATIONS EN CONDITIONS DÉDIÉES.....	125
2.2.1	Plan d'essais – modalités de fabrication	125
2.2.2	Conformité du plan d'expérience.....	126
2.3	RÉSULTATS BRUTS	127
2.3.1	Caractéristiques du flux gazeux.....	127
2.3.2	Comparaison des valeurs moyennes de concentrations entre zones A et B	128
2.3.3	Concentrations de O ₂ , CO ₂ , SO ₂ , CO, NO _x , COT et CH ₄	131
2.3.4	Identification des HAP.....	136
2.3.5	Consommation de gaz naturel.....	138
2.3.6	Discussions sur les fluctuations des émissions	139
2.4	TRAITEMENT DES DONNÉES SELON LA MÉTHODOLOGIE DÉVELOPPÉE.....	140
2.4.1	Synchronisation des acquisitions de données	140
2.4.2	Corrections pour une teneur en oxygène de référence.....	140
2.4.3	Exploitation des données	141
2.4.4	Indicateur de la combustion.....	142
2.5	RÉSULTATS D'ÉMISSIONS APRÈS TRAITEMENT DE DONNÉES.....	144
2.5.1	Concentrations de O ₂ , CO ₂ , SO ₂ , CO, NO _x , COT, CH ₄ en période stabilisée.....	144
2.5.2	Détermination des plages d'émissions moyennes en périodes stabilisées	149
2.5.3	Discussion sur les résultats dédiés TSE gaz naturel.....	154
3	ÉTUDE EN CONDITIONS USUELLES	156
3.1	REGLAGE DU BRULEUR.....	156
3.2	TSE MOBILE AU FUEL LOURD.....	156

3.2.1	<i>Plan d'expérimentation</i>	156
3.2.2	<i>Résultats bruts d'émissions de O₂, CO, NO_x et COT</i>	158
3.2.3	<i>Analyse de fluctuations des mesures brutes</i>	162
3.2.4	<i>Traitement de données selon la méthodologie développée</i>	163
3.2.5	<i>Détermination des plages d'émissions en conditions conformes de fabrication</i>	163
3.2.6	<i>Discussions sur les résultats en conditions usuelles du TSE au fuel</i>	167
3.3	TSE FIXE AU GAZ NATUREL	172
3.3.1	<i>Plan d'expérimentation</i>	172
3.3.2	<i>Résultats bruts d'émissions de O₂, CO₂, CO, NO_x et COT</i>	173
3.3.3	<i>Discussions sur les résultats en conditions usuelles du TSE au gaz</i>	175
4	CONCLUSION DU CHAPITRE 3	176
	CHAPITRE 4 - ÉTUDE DES ENROBES ET DU BITUME EN LABORATOIRE	177
	INTRODUCTION	178
1	ÉTUDE DE LA QUALITE DES ENROBES PRODUITS EN CENTRALE EN CONDITIONS DEDIEES	179
1.1	BITUME UTILISE	179
1.2	CONFORMITE DES ENROBES – CONTROLE DE COMPOSITION	179
1.3	RESULTATS DES ESSAIS DE CARACTERISATION	180
1.3.1	<i>Essais physiques</i>	180
1.3.2	<i>Essais chimiques</i>	181
1.3.3	<i>Essais mécaniques</i>	182
1.3.4	<i>Essais physico-chimiques</i>	184
1.4	BILAN SUR LA QUALITE DE L'ENROBE PRODUIT EN CENTRALE	185
2	ÉTUDE EXPERIMENTALE SUR LES EMISSIONS DUES AUX ENROBES	186
2.1	OBJECTIFS ET MISE EN ŒUVRE DE L'ETUDE EXPERIMENTALE	186
2.2	APPAREILLAGE	186
2.2.1	<i>Système de génération d'émissions des enrobés lors du malaxage</i>	186
2.2.2	<i>Protocole de fabrication et prélèvement gazeux</i>	187
2.3	MATERIAUX UTILISES	189
2.3.1	<i>Formules d'enrobés étudiées</i>	189
2.3.2	<i>Type de bitumes étudiés</i>	190
2.4	DEFINITION D'UN PLAN D'EXPERIENCE	191
2.5	REPONSES ET INTERPRETATION DU PLAN D'EXPERIENCE	193
2.5.1	<i>Equations du modèle</i>	193
2.5.2	<i>Résultats sur le vieillissement des enrobés</i>	196
2.5.3	<i>Résultat sur les émissions de l'enrobé</i>	200
2.5.4	<i>Visualisation des effets des facteurs</i>	204
2.6	ÉTUDE DE LA CINETIQUE D'EMISSION EN RELATION AVEC LE VIEILLISSEMENT DE L'ENROBE	208
2.6.1	<i>Essais d'épuisement du mélange</i>	208
2.6.2	<i>Essais séquentiels de mesure des HAP</i>	208

2.6.3	<i>Cinétique de vieillissement en relation avec les émissions</i>	209
2.7	BILAN SUR LES EMISSIONS DES ENROBES	210
3	ÉTUDE EXPERIMENTALE SUR LES EMISSIONS DU BITUME	211
3.1	UTILISATION D'UN BANC D'ESSAI EXISTANT	211
3.1.1	<i>Appareillage</i>	211
3.1.2	<i>Résultats sur les émissions du bitume</i>	212
3.1.3	<i>Bilan sur le banc d'essai existant</i>	215
3.2	MISE AU POINT D'UN BANC D'ESSAI POUR LES FUMÉES DU BITUME	215
3.2.1	<i>Appareillage</i>	215
3.2.2	<i>Résultats sur les émissions du bitume</i>	217
3.3	BILAN SUR LES EMISSIONS DU BITUME	218
4	SYNTHESE DES RESULTATS DES EMISSIONS DU BITUME, DES ENROBES ET DU VIEILLISSEMENT EN LABORATOIRE	219
4.1	COMPARAISON PAR BANC D'ESSAI	219
4.2	COMPARAISON PAR DES CALCULS DE TENDANCES	220
4.3	RELATION VIEILLISSEMENT – EMISSIONS	222
5	CONCLUSION DU CHAPITRE 4	223
	DISCUSSION GENERALE ET CONCLUSIONS	225
1	SYNTHESE DES ESSAIS REALISES ET DES RESULTATS OBTENUS DANS LA THESE	226
2	DISCUSSION SUR L'ETUDE MULTI-ECHELLE DU PROCESSUS D'ENROBAGE	229
2.1	QUALITE DES MESURES	229
2.2	COMPARAISON DES MESURES D'EMISSION ET METHODOLOGIE D'ETUDE	229
2.3	ROBUSTESSE DE L'INDICATEUR ICO/CO2	230
3	CONCLUSIONS	231
3.1	CONSIDERATIONS GENERALES	231
3.2	COMPETENCES ACQUISES SUR LA CARACTERISATION DES PROCEDES D'ELABORATION DES ENROBES	232
	BIBLIOGRAPHIE	233
	LEXIQUE	243
	ANNEXES	248
1	ESSAIS DE CARACTERISATION DU BITUME	249
1.1	EXTRACTION DU LIANT	249
1.2	ESSAIS CHIMIQUES	251
1.2.1	<i>Essai de spectrométrie Infrarouge</i>	251
1.2.2	<i>Essai de distillation simulée</i>	253
1.2.3	<i>Composition chimique du bitume au IATROSCAN</i>	254
1.3	ESSAIS PHYSIQUES	256
1.3.1	<i>Essai de pénétrabilité</i>	256
1.3.2	<i>Essai de Température de Ramollissement Bille et Anneau (TBA)</i>	258
1.4	ESSAIS PHYSICO-CHIMIQUES	260

1.4.1	Essai de vieillissement accéléré (RTFOT)	260
1.5	ESSAIS MECANQUES	261
1.5.1	Essai de module complexe	261
2	TECHNOLOGIES DE BRULEURS ET COMBUSTION	265
2.1	GRANDEURS CARACTERISTIQUES DE LA COMBUSTION STœCHIMETRIQUE	265
2.1.1	Grandeurs relatives au rapport Air/Fuel	265
2.1.2	Grandeurs relatives aux fumées	265
2.1.3	Types de combustion	266
2.1.4	Rendement de combustion	269
2.2	BRULEURS DES FOURS INDUSTRIELS	269
2.2.1	Brûleurs à flamme de prémélange	270
2.2.2	Brûleurs à flamme de diffusion	270
2.2.3	Rôle de l'atmosphère et de la pression	271
3	PROTOCOLES DE MESURES D'EMISSIONS GAZEUSES EFFECTUEES	273
3.1	MESURES DE O ₂ , CO ₂ , CO ET NO _x AVEC L'ANALYSEUR DE COMBUSTION ECOM	273
3.1.1	Présentation de l'appareillage	273
3.1.2	Echantillonnage	274
3.1.3	Calcul de la masse de polluants	274
3.1.4	Exemples de calculs de corrections sur les émissions de données brutes	275
3.2	MESURES DE COT, COVNM ET CH ₄ AVEC L'ANALYSEUR DE COMPOSES ORGANIQUES N.I.R.A.	276
(FID)		
3.2.1	Présentation de l'appareillage	276
3.2.2	Principe de mesures	276
3.2.3	Echantillonnage	279
3.2.4	Calcul de la masse de polluants	280
3.2.5	Exemple de calculs de corrections sur les émissions de données brutes	280
3.3	MESURES DES HAP PAR PRELEVEMENT	281
3.3.1	Echantillonnage et analyse en centrale d'enrobage	281
3.3.2	Echantillonnage et analyse en laboratoire	282
3.3.3	Méthodologie développée pour l'extraction et analyse des filtres et des résines	283
4	RESULTATS BRUTS DE MESURES SUR SITES INDUSTRIELS	286
5	METHODE DE FABRICATION DES ENROBES BITUMINEUX AVEC ANALYSE DES EMISSIONS ENGENDREES	288
6	PLAN D'EXPERIENCE : CALCULS DES EFFETS	289
7	PREVISIONS DU MODELE MATHEMATIQUE UTILISE EN LABORATOIRE	291

INTRODUCTION GENERALE

1 Problématique industrielle et contexte du travail

- Les besoins

La construction d'une chaussée répond principalement aux besoins de la circulation, tout en assurant la sécurité et le confort des usagers. Une chaussée se présente sous forme d'un empilement de couches, qui ont chacune une composition bien définie en fonction de leur rôle dans la structure de la chaussée. Sur une coupe type de chaussée neuve, on distingue trois niveaux de couches principales : la plate-forme support de chaussée constituée d'un sol support, surmontée généralement d'une couche de forme en matériaux granulaires, sableux ou limoneux, traités ou non-traités aux liants hydrauliques, les couches d'assises (fondation et base) et les couches de surface (liaison et roulement). Le domaine d'emploi des enrobés est réparti entre les couches de fondation des chaussées, couches de base, couches de liaison, couches de roulement et reprofilage.

- Les matériels

La plupart des ouvrages routiers qu'ils soient localisés dans les régions urbaines ou dans les régions rurales, utilisent de l'enrobé bitumineux tant pour la construction que pour l'entretien des routes. Les couches de chaussées de surface ou d'assise constituées d'enrobé bitumineux, sont le plus souvent fabriquées en centrale d'enrobage à chaud. Cette prédominance de l'enrobé bitumineux est reflétée par la quantité de centrales d'enrobage en opération. En France, on estime le parc à environ 508 centrales d'enrobages, dont 100 mobiles [USIRF, 2001]. En Europe elles sont environ estimées à 4000 pour 4500 aux États-Unis. Si les contrôles de fabrication sont couramment pratiqués pour juger de la composition et des performances mécaniques de l'enrobé, les émissions à l'atmosphère engendrées lors de la fabrication sont encore peu étudiées et amènent des interrogations dans un contexte réglementaire de plus en plus encadré.

Plusieurs technologies de centrales d'enrobage sont disponibles sur le marché français comme international. A titre indicatif, un panorama de l'implantation [EPA, 2004] des nouvelles usines de production aux Etats Unis en 2000 montre qu'en 1996, 64% des nouvelles centrales mises en service ont été du type discontinu, contre seulement 34 % du type continu TSE (équicourant et contre courant confondus). Cependant, en 2000 cette tendance a été inversée puisqu'en 2000, 90% des nouvelles implantations étaient de type TSE. Les données d'EPA [EPA, 2004] montrent ainsi une prédominance du type de centrale TSE. Cette tendance peut être expliquée par plusieurs raisons. D'abord, pour des questions économiques, comme la recherche d'une centrale plus performante en termes d'entretien, pour sa taille, pour sa simplicité d'utilisation. Mais aussi pour des questions de logistique car les TSE existent aussi en versions mobiles (déplaçables) ce qui les rend plus souples vis-à-vis des besoins de productions pour les chantiers. De plus, dans un contexte d'utilisation de plus en plus répandue d'agrégats d'enrobés (recyclage), les TSE permettent l'utilisation d'un taux de recyclés allant jusqu'à 50%. Enfin, selon de Sars [de Sars, 2006], les mutations actuelles de l'industrie de l'enrobage empruntent les directions suivantes :

- Une quasi-prédominance des TSE et peu de centrales d'enrobage continues ;
- L'apparition, dans le domaine des TSE, de systèmes de séchage à contre courant dans le cas des installations fixes ou mobiles ;
- L'apparition de postes hyper mobiles de faible capacité.

- La réglementation

Par rapport à la législation environnementale, les centrales d'enrobage en France sont régies, au titre des installations classées, par l'arrêté du 2 février 1998, relatif notamment aux émissions de toute nature des installations classées pour la protection de l'environnement soumises à autorisation. Les articles 27 et 30 de cet arrêté fixent les valeurs limites des émissions à l'atmosphère des effluents gazeux pour les centrales d'enrobage. La législation française impose des seuils de concentrations en polluants et de flux horaires à respecter. Son application implique d'effectuer des mesures de concentrations volumiques et des calculs des flux massiques à partir de ces concentrations ; elle est encadrée à l'échelle des régions par des arrêtés Préfectoraux. Par rapport aux différentes législations internationales, la principale différence entre la réglementation française et, par exemple, celle des États Unis et du Brésil repose principalement sur une question conceptuelle. Chacune de ces réglementations considère respectivement la prise en compte d'une part du niveau d'émissions des sources pour les Européens et de la qualité de l'air ambiant pour les États Unis et le Brésil. De plus, aux États-Unis et au Brésil, les réglementations introduisent des échelles différentes pour l'évaluation des émissions. A l'échelle du district industriel (standard primaire) les émissions admises sont plus élevées que celles à l'échelle de la région (standard secondaire). Cette différence dans la manière d'aborder la réglementation est importante à préciser en amont de ce travail de thèse, car elle montre sa complexité. La figure 0 - 1 résume ces différences entre les réglementations et les territoires.

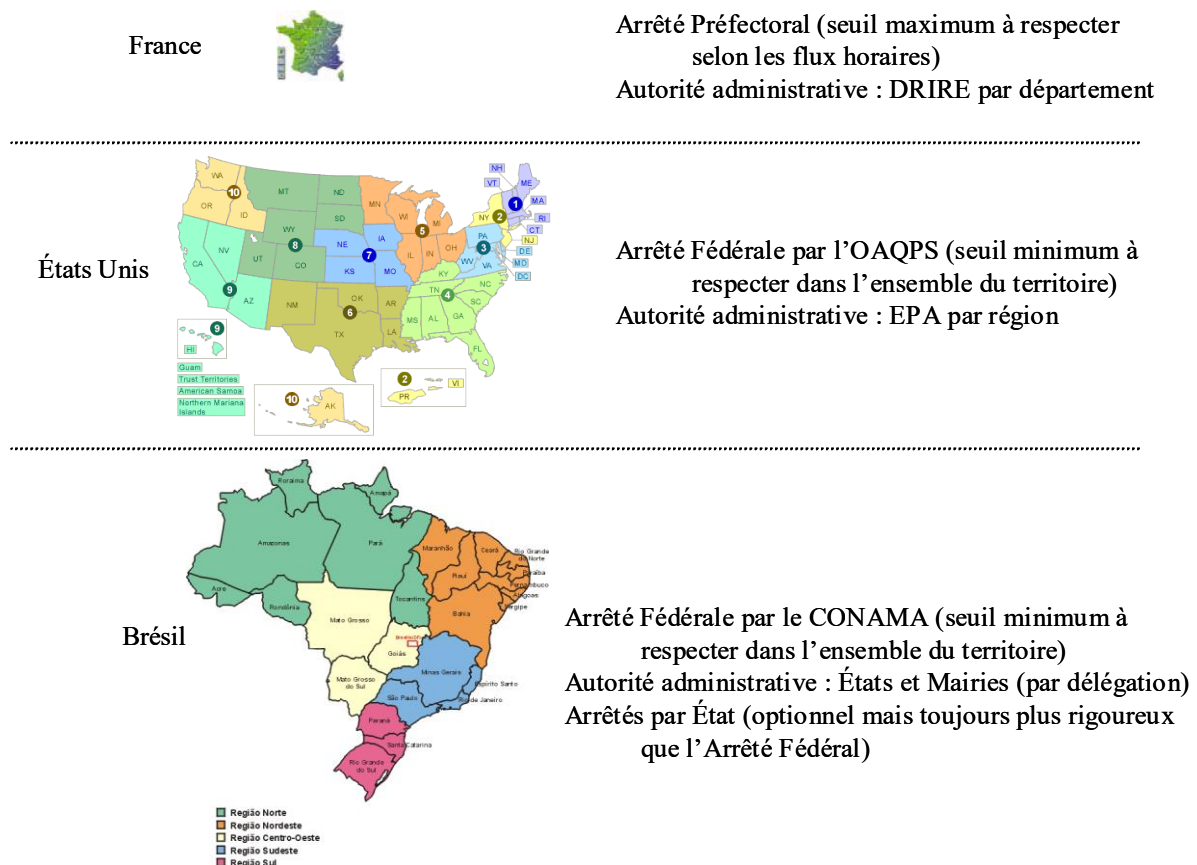


Figure 0 - 1 Principales différences entre les réglementations environnementales de la France, des USA et du Brésil

Ce travail de thèse s'appuie sur deux centrales de type TSE, matériels dont le constat précédent montre qu'ils sont représentatifs de l'activité industrielle dans le secteur routier, y compris au plan international. Il a été financé par le CNPq (Brésil) et s'est déroulé au LCPC en collaboration avec le CORIA.

Parmi les questions posées au Brésil avant le début de la thèse, il s'agissait de savoir si les conditions de combustion, relatives au brûleur, existant dans les centrales d'enrobage avaient une influence sur la qualité de l'enrobé fabriqué et si, en étudiant la qualité de l'enrobé bitumineux fabriqué selon différentes conditions industrielles, il était possible de mettre en relation émissions et vieillissement des enrobés. Ce travail de thèse a été abordé dans cette perspective.

Ces questions ont ensuite été élargies dans le cadre des collaborations entre le LCPC et le CORIA, après le début de la thèse. Dans le cadre de l'opération de recherche 11M042 intitulée « approche globale de l'environnement dans le domaine routier », menée par le LCPC dans sa programmation quadriennale (période 2004 – 2007). Il était donc prévu de quantifier les émissions engendrées par les centrales d'enrobage, notamment en s'appuyant sur la Centrale du Parc Routier de Blois (DDE 41), avec laquelle des collaborations pluriannuelles se déroulent depuis 2001 pour aborder cette problématique [Jullien et al, 2006]. Certains d'entre elles avec le Groupement Professionnel des Bitumes (GPB) et la société ERMONT (Fayat Group) en 2004. D'autres, avec l'entreprise Guintoli en 2005. Cette double collaboration a permis de structurer la démarche sur deux types de centrales d'enrobage TSE, en conditions industrielles. Cette opération vise notamment l'étude fine des différents procédés routiers et comprend plusieurs expérimentations en vraie grandeur réalisées sur le site du Parc de Blois, dont la centrale d'enrobage permet depuis plus de 20 ans de conduire des expérimentations à des fins de recherche.

2 Objectifs et déroulement du travail

Il s'agissait de caractériser et si possible dissocier les émissions produites en centrale au cours de la combustion de celles produites par les divers matériaux enrobés fabriqués en centrale, en précisant chaque contribution à l'ensemble. D'un autre côté, il s'agissait de doter les formules d'enrobés courantes, d'une « valeur » environnementale en se plaçant dans une perspective plus globale d'évaluation du cycle de vie des matériaux routiers pour laquelle les données environnementales « procédé » sont quasi inexistantes dans la littérature.

Pour aborder ces questions, l'objet principal de la thèse a consisté à élaborer une méthodologie d'analyse multi-échelles du procédé d'enrobage au regard du phénomène de combustion, du combustible utilisé, de qualité de l'enrobé produit et des émissions engendrées. Une première échelle d'étude, celle de l'enrobage en centrale a d'abord été considérée afin :

- D'analyser, in situ, dans différentes conditions industrielles à différents niveaux de contrôle des fabrications, la production d'enrobé selon une méthodologie appropriée ;
- D'obtenir des plages d'émissions en relation avec la consommation, selon les liants bitumineux utilisés et les formules utilisées en considérant différentes conditions de production ;
- Exploiter les connaissances et données acquises dans le but de les intégrer en tant que données de référence dans des approches environnementales du procédé TSE.

Compte tenu de la complexité des phénomènes à l'origine des émissions de centrale, il a aussi été prévu dès le début de la thèse de mener en parallèle une réflexion à une échelle plus facilement maîtrisable : celle du laboratoire. Ainsi il s'agissait :

- D'évaluer, en laboratoire, le procédé de malaxage de l'enrobé, en caractérisant les émissions et la qualité de l'enrobé produit ;
- Relier autant que possible les émissions caractérisées en centrale et en laboratoire, afin de mettre en évidence séparément les polluants issus du bitume de ceux issus du combustible de la centrale utilisé pour chauffer les matériaux ;

L'ampleur des essais à mettre en œuvre d'une part et la complexité des phénomènes à aborder d'autre part ont nécessité de mener effectivement les études sur sites industriels et en laboratoire en parallèle jusqu'à la fin de la thèse. D'autre part le manque crucial de publications scientifiques dans ce domaine a conduit à avancer tout au long de ce travail en « aveugle ». Enfin, pour relier ce travail à des approches globales des pressions sur l'environnement, un indicateur spécifique a été proposé à chaque échelle principale d'étude (celle de la centrale, celle du laboratoire) pour permettre de dégager les connaissances acquises principales.

Ce mémoire comprend cinq chapitres. Le premier chapitre présente la problématique étudiée. Le deuxième chapitre décrit la méthodologie d'étude développée des émissions du procédé d'enrobage à différentes échelles. Le troisième chapitre détaille le procédé TSE étudié et les émissions produites dans différentes conditions. Dans le quatrième chapitre, outre la caractérisation du vieillissement des enrobés, les émissions des matériaux sont analysées dans le cadre d'essais de laboratoire. En fin le dernier chapitre synthétise l'ensemble des essais réalisés et des résultats acquis, ainsi que des difficultés rencontrées.

CHAPITRE 1 - Problématique des émissions liées à la production d'enrobés à chaud en centrale

Introduction

Pour aborder à la problématique posée, dont le point central concerne la production des enrobés, leur qualité et les émissions des enrobés bitumineux fabriqués, nous avons collecté des éléments bibliographiques sur : la composition des enrobés bitumineux (composition et propriétés) dans la partie I de ce chapitre, sur les centrales d'enrobage (procédé) dans la partie II et sur les émissions à l'atmosphère engendrées lors de la fabrication en centrale d'enrobage dans la partie III de ce chapitre. Une attention particulière est portée aux milieux émetteurs de ces émissions, aux méthodes expérimentales disponibles pour les caractériser ainsi qu'à la réglementation existante. Un bilan des connaissances disponibles dans chaque domaine est réalisé dans chaque partie.

1 Enrobés bitumineux : composition, propriétés et usages

1.1 Granulats et agrégats

Les composés minéraux constituent environ 95% de la masse d'un enrobé bitumineux (80 – 85% du volume). Cette importance quantitative des matériaux granulaires gouverne les caractéristiques mécaniques et les performances du mélange bitumineux [Corté et Di Benedetto, 2005]. Les granulats sont constitués, par définition, d'un ensemble des sables, gravillons ou pierres concassées. D'autres produits, généralement manufacturés, peuvent être utilisés comme granulats de substitution : les argiles expansées, les déchets, les scories, les agrégats d'enrobés. Dans le cas des agrégats (recyclés), ils sont porteurs d'un bitume ancien qui est pris en compte lors du développement d'une nouvelle formulation. Selon sa provenance, le granulat présente un aspect roulé (origine alluvionnaire) ou concassé (origine roche massive). Après sa transformation par criblage, concassage, il sera associé à une classe granulaire spécifique (Tableau 1- 1). L'addition et le mélange de plusieurs classes granulaires homogènes constitue le squelette granulaire d'un mélange bitumineux.

Tableau 1- 1 - Types de composants minéraux selon leur classe granulaire d'après [Corté et Di Benedetto, 2005]

<i>Désignation retenue</i>	<i>Désignation</i>	<i>Classes granulaires élaborées courantes en France pour les routes (en mm)</i>
Granulats	Pierres concassées, ballast	> 22
	Gravillons	2/4 ; 4/8 ; 6/8 ; 8/11 ; 11/16 ; 16/22
	Sables	0/2 ou 0/4
Filler	Filler, fines ou farine de pierre	≤ 0,063

Dans le cas de l'utilisation de recyclés, ceux-ci sont porteurs d'un bitume ancien qui est pris en compte lors du développement d'une nouvelle formulation; le liant ancien peut être extrait à des fins de caractérisation (Annexe 1.1). On appelle les agrégats d'enrobés, les fraisats de produits hydrocarbonés. D'autres produits, généralement manufacturés, peuvent être utilisés comme granulats de substitution : les argiles expansées, les déchets, les scories, les agrégats d'enrobés. (<http://ofrir.lcpc.fr>)

Il n'existe aucun inconvénient technique à réutiliser, dans la limite de 10 %, des agrégats d'enrobés hydrocarbonés (fraisats) dans la fabrication des enrobés pour couches de fondation et pour couches de base, constituant le corps de chaussée, ainsi que dans la fabrication des enrobés pour couche de liaison moyennant une élaboration convenable (concassage, criblage). Dans ces trois cas de figure, il n'est pas nécessaire d'effectuer des études préalables de caractérisation explicite des agrégats. Les formulations correspondant à

ce taux de réutilisation des fraisats sont donc systématiquement admises. L'utilisation de fraisats dans ces couches à des taux supérieurs est possible mais nécessite obligatoirement la réalisation d'études préalables de caractérisation des agrégats et de formulation du mélange.

1.2 Bitumes

1.2.1 Composition des bitumes

Le bitume constitue environ 5% de la masse de l'enrobé. Il est constitué d'un mélange naturel d'hydrocarbures et de leurs dérivés non métalliques. Le terme de bitume s'applique aux hydrocarbures qui se présentent à l'état solide ou semi-solide et, plus largement, il fait référence à tous les hydrocarbures naturels, qui peuvent également se présenter à l'état liquide ou gazeux.

Dans une raffinerie, les diverses installations transforment le pétrole brut en produits finis allant des bitumes et fiouls, aux différents combustibles et carburants, gaz... Ainsi, le bitume routier est issu du raffinage du pétrole. En effet, il est obtenu par traitement de la fraction de distillation la plus lourde de bruts sélectionnés ; on parle d'ailleurs de « bruts à bitume » [Shell bitumes, 1991]. Ce traitement particulier est réalisé dans des unités spécifiques de la raffinerie, afin d'obtenir un produit conforme aux spécifications officielles ou à celles requises par les utilisateurs.

Le bitume est constitué de composés insolubles dans le n-heptane appelés « asphaltènes » (représentant jusqu'à 20% en masse pour les bitumes routiers), et de composés solubles dans le n-heptane appelés « maltènes ». Les « maltènes », regroupent trois espèces chimiques (saturés, aromatiques et résines). Les bitumes sont constitués de quatre familles principales connues sous l'appellation de fractions SARA (Saturés, Aromatiques, Résines et Asphaltènes) [Shell bitumes, 1991] :

- les Saturés, constitués d'hydrocarbures aliphatiques à chaînes linéaires ou ramifiées, comprenant en majeure partie des carbones et des hydrogènes, représentent 5 à 20 % en masse du bitume ;
- les Aromatiques, qui sont des composés naphthéniques aromatiques de faible masse moléculaire (300 à 2000 g/mole), constitués de chaînes carbonées non polaires où dominant les aromatiques mono et bi cycliques, représentent 40 à 65% de la masse;
- Les Résines, qui sont des composés naphthéno-aromatiques de masse moléculaire plus élevée (entre 500 et 50000 g/mole), de nature très polaire avec des propriétés adhésives très fortes, représentent 10% à 20% de sa masse ;
- Les Asphaltènes, qui sont des composés hydrocarbonés avec un rapport molaire C/H proche de 1, caractéristique des cycles aromatiques condensés, et une masse molaire très élevée (1000 à 100 000 g/mole).

Le bitume se présente sous l'aspect d'un système colloïdal dans lequel les « asphaltènes » peptisés par les « résines » constituent les micelles, tandis que les huiles représentent la phase intermicellaire. Les « maltènes » constituent la phase continue, dans laquelle les « asphaltènes » constituent la phase dispersée. La structure colloïdale des bitumes leur confère des propriétés pour la construction routière, telles que l'adhésivité, la cohésion, et la viscoélasticité, notamment. Les asphaltènes sont responsables du comportement du bitume, par leur tendance à s'associer et à constituer ainsi des structures de grande taille (« micelles » de quelques microns) et même, si leur teneur est suffisante, de réseaux tridimensionnels conférant au bitume une microstructure de type « gel », ayant les caractéristiques des liquides non newtoniens. Si les « micelles » se trouvent au contraire très dispersées au sein de la phase

continue (si la concentration des asphaltènes et leur masse moléculaire sont faibles), le bitume, qui a un comportement de type « sol », présente une excellente résistance aux sollicitations rapides et est plus sensible aux sollicitations lentes et aux variations de température que la microstructure dite « gel ». De plus, un bitume de type « sol » sera plus susceptible à la température qu'un bitume « gel » [USIRF, 2001]. La Figure 1- 1 montre un exemple de composition de bitume.

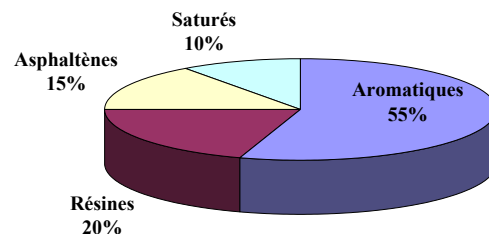


Figure 1- 1 – Exemple de composition chimique d'un bitume d'après [USIRF, 2001]

1.2.2 Comportement

La caractéristique principale du bitume est la très large et progressive plage de variation de sa consistance avec la température, appelée susceptibilité thermique [Corté et Di Benedetto, 2005]. Le bitume se présente comme un liquide newtonien, peu visqueux à haute température (au dessus de 80 °C), et comme un solide vitreux élastique à basse température (au dessous de 80 °C) (Figure 1-2) .Bien qu'il n'existe pas de relations quantitatives entre composition et propriétés rhéologiques, on peut dire qu'un bitume de type « sol » sera plus susceptible à la température qu'un bitume de type « gel ». Les bitumes soufflés, riches en asphaltènes de masses moléculaires élevées ont une faible susceptibilité à la température et, dans certaines plages de température et de temps de charge, un comportement quasi élastique.

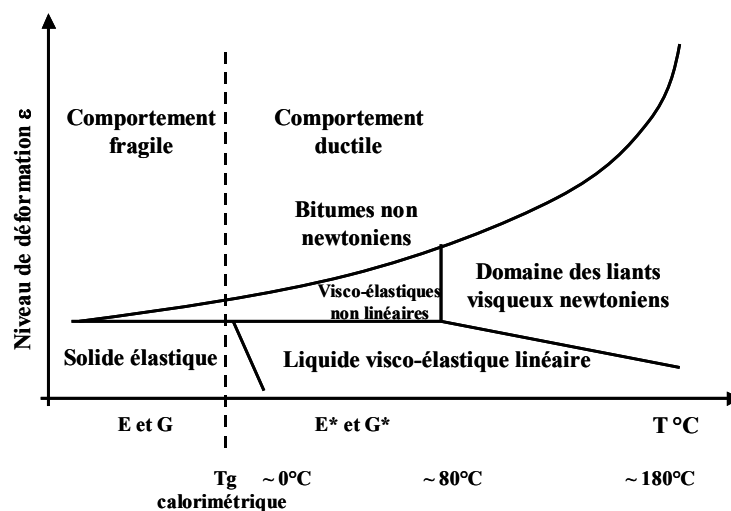


Figure 1- 2 – Comportement du bitume en fonction de $|\epsilon|$ et T d'après [Corté et Di Benedetto, 2005]

1.2.3 Classes de bitumes et propriétés

La classification des liants bitumineux (Tableau 1- 2) repose sur deux essais physiques normalisés qui ont l'avantage d'être simples, largement répandus et de se révéler fiables et reproductibles. Il s'agit de :

- la Pénétrabilité, qui est un indicateur de la consistance aux températures ambiantes [AFNOR, 1999 a] (méthode décrite dans l'annexe 1.3) ;
- la Température de ramollissement Bille et Anneau (TBA), qui donne une température d'équiconsistance (de l'ordre de 40 à 80° C selon les bitumes) [AFNOR, 1999 b] (méthode décrite dans l'annexe 1.3).

En France, les bitumes sont classés suivant leur classe de pénétrabilité. Chaque grade correspond, en fait, à un intervalle de mesures de pénétrabilités. Les bitumes « durs » ont des valeurs de pénétrabilité faibles ; les bitumes « mous » ont des valeurs de pénétrabilité relativement élevées. Les types de liants sont choisis normalement en fonction du type d'enrobé à fabriquer. Cependant les températures de stockage, de malaxage et de mise en œuvre sont plus élevées (10 à 15 °C) pour les bitumes « durs » que pour les bitumes « mous ». Le grade des bitumes issus d'un même pétrole brut varie en fonction des teneurs en asphaltènes et en saturés : ainsi, un bitume « dur » est très asphalténique, par rapport au bitume « mou » plus riche en huiles saturées.

Tableau 1- 2 – Classes de bitumes routiers les plus appropriées en France issus de la norme française NF EN 12591, 1999 d'après [Corté et Di Benedetto, 2005]

Spécification des bitumes routiers de classes 20/30 à 160/220	Unité	Méthode	Désignation des classes appropriées				
			20/30	35/50	50/70	70/100	160/220
Pénétrabilité à 25 °C	x0,1mm	EN1426	20 – 30	35 – 50	50 – 70	70 – 100	160 – 220
Point de ramollissement Bille et Anneau (TBA)	°C	EN1427	55 – 63	50 – 58	46 – 54	43 – 51	35 – 43

Dans le cas de bitumes polymères, où des résines sont ajoutées au bitume pur pour améliorer ses propriétés viscoélastiques, il existe un classement à part. L'utilisation d'un bitume polymère est justifié par l'amélioration des propriétés mécaniques. La volatilité est une autre caractéristique importante parce qu'elle est liée aux émissions organiques engendrées par le bitume chaud. Elle est calculée par le biais d'une distillation simulée. Il s'agit de la quantité de masse cumulée distillée quand la température de la colonne chromatographique monte à 450 °C (annexe 1.2) [Brandt et Groot, 1999]. On trouve des bitumes peu volatils ($\approx 2,20\%$) jusqu'à bitumes très volatils (15 – 20%).

1.2.4 Vieillessement des bitumes

Mécanisme : Une caractéristique très importante du bitume est son aptitude au vieillissement. Le bitume évolue dans le sens d'un durcissement depuis sa fabrication jusqu'à son stade ultime d'usage dans les chaussées. Le vieillissement s'opère suivant des mécanismes complexes à la fois *physiques* (évaporation des fractions les plus volatiles, réarrangement du système colloïdal au cours du refroidissement) et *chimiques*. Lors de ce processus, on constate un appauvrissement en éléments cycliques (aromatiques) et un enrichissement en résines puis en asphaltènes selon le schéma :

Cycliques → Résines → Asphaltènes

Evolution chimique : L'oxydation est le facteur principal du durcissement. Le degré d'oxydation est d'autant plus fort et l'oxydation rapide que l'exposition est importante et la température est élevée. Selon Marvillet et al [Marvillet et Verschaeve, 1981], lors de la fabrication des enrobés, le durcissement du bitume est d'autant plus fort que la température de l'enrobage est élevée, que la durée de malaxage est importante et que la teneur en bitume est faible, ce qui se traduit pour une courbe granulaire identique, et par une épaisseur de film plus

mince sur les granulats. Le vieillissement chimique du bitume est caractérisé par une modification des composants du bitume se traduisant par une évolution structurale et rhéologique [Ramond et Such, 1990]. Lors de l'enrobage, l'oxydation chimique est violente, c'est-à-dire qu'il y a rupture des chaînes de carbone qui le constituent, pour créer soit des groupements carbonyles C=O, soit des groupements sulfoxydes S=O. Les mécanismes de formation sont détaillés pour les sulfoxydes dans la Figure 1- 3 et pour les carbonyles dans la Figure 1 – 5 :

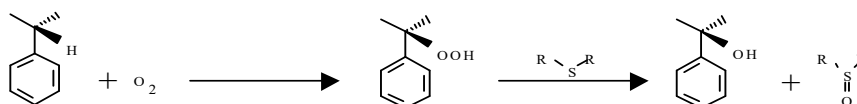


Figure 1- 3 - Mécanisme de formation des sulfoxydes d'après [Ramond et Such, 1990]

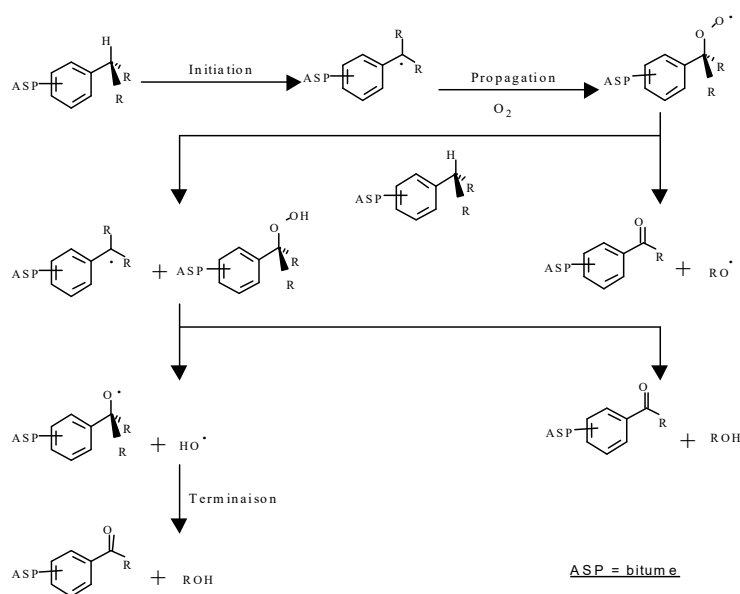


Figure 1- 4 - Mécanisme radicalaire de formation des carbonyles d'après [Ramond et Such, 1990]

Les conséquences des transformations chimiques sur le comportement se traduisent le plus souvent par une augmentation de la consistance et une diminution de la susceptibilité du bitume. On peut retrouver les fonctions chimiques suivantes dans la composition du bitume avant et après vieillissement (Figure 1-6):

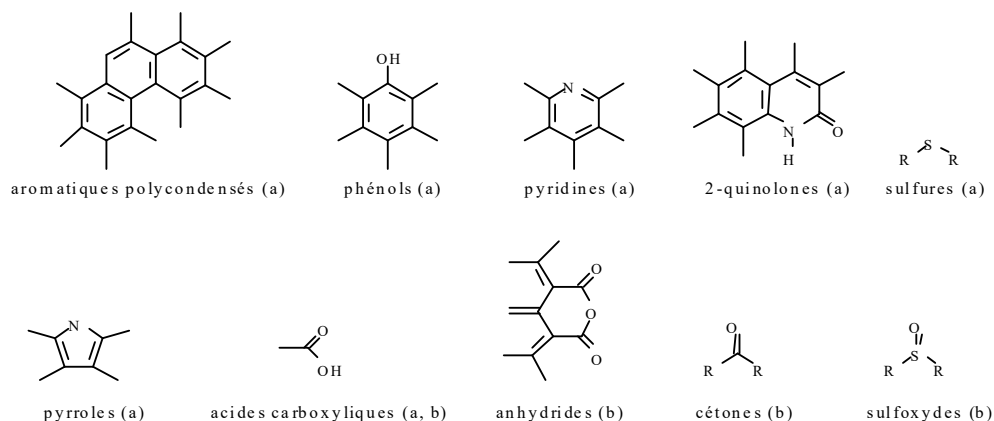


Figure 1- 5 - Exemples de fonctions chimiques présentes dans les molécules de bitumes : (a) à l'origine et (b) après le vieillissement d'après [Lamontagne, 2002]

Evolution physique : Comme précisé précédemment, les bitumes peuvent être considérés comme des systèmes colloïdaux dans lesquels les constituants les plus lourds (asphaltènes) sont peptisés dans un mélange d'hydrocarbures à caractère plutôt aromatique ou polaire. Lors du refroidissement d'un tel système, de la température à laquelle le bitume est appliqué à la température ambiante, on a une augmentation de viscosité. Avec la plupart des bitumes, la viscosité croît d'un facteur inférieur à trois. En raison de la viscosité élevée, l'obtention d'un nouvel équilibre est très lent et peut prendre plusieurs mois. La présence de fractions cristallisables (paraffines) peut conduire également à un durcissement physique du bitume. En général, ce processus est plus rapide que le précédent (quelques heures à quelques jours). Ces deux phénomènes sont réversibles, notamment par réchauffage.

L'évaporation des fractions les plus volatiles du bitume (émissions) peut constituer un type de vieillissement physique, irréversible. La vitesse d'évaporation dépend de la nature, de la quantité de produits volatils et des conditions de traitement. Des études menées par Petersen [Petersen, 1989] sur différents films de bitume, d'épaisseur croissante, ont mis en évidence l'existence d'une relation entre l'épaisseur de liant et les variations de masse (perte de composants volatils) (Figure 1- 6).

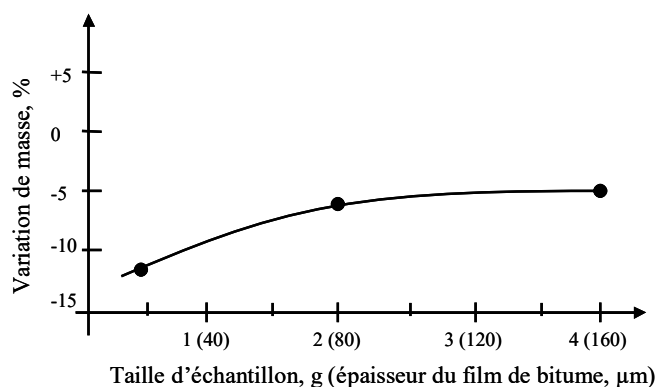


Figure 1- 6 – Évolution de la perte de masse en fonction de l'épaisseur du film de bitume d'après [Petersen, 1989]

Évolution lors de l'enrobage, du compactage et de la vie en service : selon Corté [Corté et Di Benedetto, 2005] on considère de façon générale et schématique que le bitume durcit d'un grade de pénétration après les opérations de malaxage et de mise en œuvre de l'enrobé. Selon les différentes étapes de son utilisation, le bitume durcit progressivement. Ce durcissement est important au cours du malaxage et significatif en surface immédiate du revêtement si le pourcentage de vides de l'enrobé est supérieur à 5%. Sur la chaussée, le bitume durcit plus

fortement en surface qu'en profondeur de l'enrobé si ce dernier est suffisamment fermé, c'est-à-dire qu'il y a moins de 5% de vides de sorte que la pénétration de l'air au sein de l'enrobé est faible. Le vieillissement au cours du temps d'un enrobé a été mis en évidence par Witheoak [Witheoak, 1990] (Figure 1-7). Il est représenté par l'indice de vieillissement qui est défini par le rapport entre viscosités (viscosité du bitume vieilli / viscosité du bitume frais). L'indice de vieillissement met en évidence l'importance de l'enrobage, c'est-à-dire de la centrale d'enrobage dans la vie d'une chaussée. Selon Witheoak [Witheoak, 1990], plus de 50% du vieillissement d'un enrobé, sur une période de 12 ans, se passe en centrale d'enrobage.

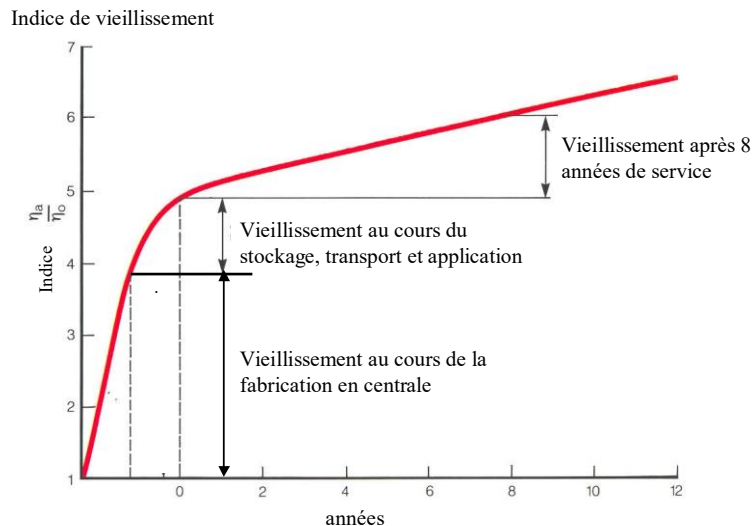


Figure 1- 7 – Vieillissement de l'enrobé bitumineux au cours du temps d'après [Witheoak, 1990]

Caractérisation/simulation : La simulation en laboratoire de cette évolution du bitume lors de la fabrication est usuellement réalisée par l'essai RTFOT (*Rolling Thin Film Oven Test*) [AFNOR, 2000]. A l'enrobage, l'oxydation chimique est importante car l'apport énergétique est intense (température et oxygène de l'air). Il est fréquent qu'à la suite de cet essai on mesure l'évolution de certaines caractéristiques notamment celles de consistance (TBA, pénétrabilité à 25 °C), de structure chimique (par spectrométrie Infrarouge par Transformé de Fourier (IRTF)) et mécaniques (le module complexe de l'enrobé et du bitume). Ces essais sont donc utilisés pour estimer le vieillissement du bitume (annexe 1.4).

1.3 Mélanges bitumineux

1.3.1 Composition

Les enrobés sont constituées à minima de deux constituants principaux : les granulats et le liant. Leur définition, classification, caractéristiques, fabrication et mise en œuvre sont, en tant que produits normalisés, dans les normes européennes [AFNOR, 2007 et AFNOR, 2005]. Le Tableau 1-3 donne des exemples de formulations couramment utilisées en France.

Les enrobés sont classés en catégories, selon leur usage. On parle soit de Bétons Bitumineux (BBTM et BBSG) pour les couches de surface, soit de Grave Bitume (GB) pour les couches d'assise. Leurs formulations et dimensionnements sont réalisées par couche, entre autres, sélectionnées selon le trafic prévu : nombre de cycles de sollicitation.

Tableau 1- 3- Exemples de formules d'enrobés utilisées couramment

<i>Composition</i>	<i>Béton Bitumineux Très Mince</i>	<i>Béton Bitumineux Semi-Grenu</i>	<i>Grave Bitume</i>
	<i>BBTM</i>	<i>BBSG</i>	<i>GB</i>
Granulat 0-2	23,5%	28,5%	33,5%
Granulat 2-6	-	17,0%	18,0%
Granulat 6-10	73,0%	43,0%	18,0%
Granulat 10-14	-	-	29,0%
Filler (calcaire)	3,5%	1,5%	1,5%
Recyclé avec 4,5% de bitume ancien	-	10,0%	-
% total des granulats	100%	100%	100%
Bitume (% sur le poids total des granulats)	5,4%	5,1%	3,75%

Une caractéristique importante d'un enrobé bitumineux, selon Duriez [Duriez, 1950], est le module de richesse K, qui est calculée à partir de la Teneur en Liant (TL), de la surface spécifique conventionnelle Σ et d'un coefficient α correcteur de la masse volumique des granulats pr (exprimée en gramme par centimètre cube), à l'aide de la relation suivante :

$$TL = K \times \alpha \times \sqrt[5]{\Sigma} \quad (I - 1)$$

Avec:

100 Σ = 0,25 G + 2,3 S + 12 s + 150 f et les proportions pondérales suivantes :

G des éléments supérieurs à 6,3 mm,

S des éléments compris entre 6,3 et 0,315 mm

s des éléments compris entre 0,315 et 0,063 mm

f des éléments inférieurs à 0,063 mm

$$\alpha = \frac{2,65}{\rho_r} \quad (I - 2)$$

Le module de richesse, proportionnel à l'épaisseur conventionnelle du film de liant enrobant le granulat, présente ainsi l'intérêt d'être indépendant de la composition de l'enrobé et de la masse volumique des granulats. C'est-à-dire, deux enrobés, porteurs du même module de richesse, ont des épaisseurs de films de liant identiques, quelle que soit la teneur en liant utilisée.

1.3.2 Propriétés mécaniques des matériaux bitumineux

Comportement : D'une façon générale, comme pour le bitume, qu'il s'agisse de l'enrobé bitumineux, les essais sous sollicitation sinusoïdale (souvent qualifiés d'essais dynamiques) permettent d'étudier la réponse viscoélastique par détermination du module complexe, caractéristique mécanique qui se prête bien à la modélisation des phénomènes viscoélastiques et à leur interprétation. Ces essais de module complexe sont réalisés soit sur des éprouvettes de bitume, soit sur des éprouvettes trapézoïdales d'enrobé bitumineux (annexe 1.5). Ces dernières sont encastrées à leur base et sollicitées en tête, en flexion sinusoïdale. Dans le cas du module complexe du bitume, l'éprouvette de bitume à tester est soumise à des sollicitations sinusoïdales de fréquences variées.

Caractérisation : La réalisation des essais de module complexe, soit pour l'enrobé bitumineux, soit pour le bitume, passe pour une préparation des échantillons. Dans le cas du

module complexe des enrobés, après le malaxage et la confection d'une plaque d'enrobé, celle-ci est sciée selon la norme française NF P 98-260-2 [AFNOR, 1992]. Dans le cas du bitume, la taille et la géométrie des éprouvettes sont choisies selon le domaine de température et le type de sollicitation appliqué. Les dimensions courantes du corps d'éprouve, pour le bitume à traction, sont $h = 16\text{ mm}$ et $D = 8\text{ mm}$ et pour l'enrobé, sont $h = 250\text{ mm}$, $l = 56\text{ mm}$ et $e = 25\text{ mm}$.

Dans le cadre de la thèse, compte tenu de la difficulté de synthétiser les résultats (données complexes obtenues à plusieurs températures/fréquences et exprimés par des courbes selon la figure 1-8), deux températures ont été considérées prioritaires pour être analysées, selon le niveau de service futur (froid ou chaud): la température pour un angle de phase de 45° (niveau chaud) et la température pour un angle de phase de 27° (niveau froid). D'une façon générale, pour les bitumes purs et sans relaxation, le vieillissement fait durcir le bitume. Dans le cas d'un vieillissement du bitume, les températures sont donc plus élevées. Ces deux températures ont été choisies car elles ressemblent plus les effets de la pénétrabilité et de la TBA liés couramment au vieillissement du bitume.

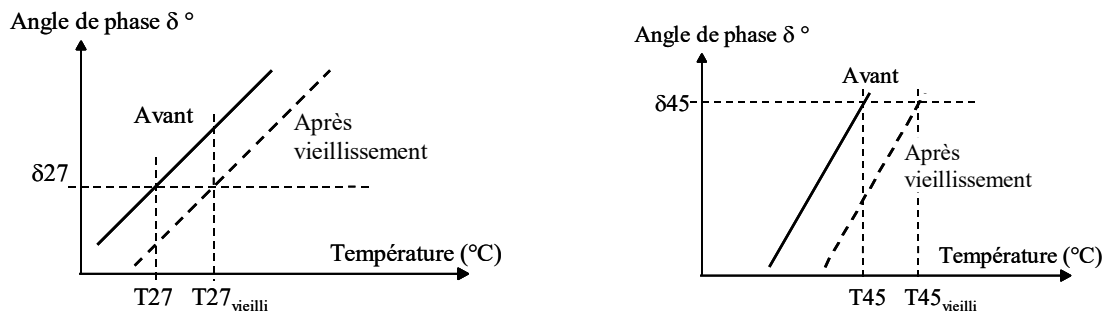


Figure 1- 8 – Variations de température trouvées par l'essai du module complexe avant et après vieillissement du bitume [Ramond et Such, 1990]

2 Centrales d'enrobage : les différents procédés

2.1 Eléments descriptifs des sites de production

Il existe plusieurs types de centrales d'enrobage qui se différencient par leurs unités de dosage, de séchage, de malaxage et d'enrobage. La Figure 1- 9 montre à partir de la vue schématique d'une centrale de type TSE, les différents éléments qui sont implantés sur le site d'une centrale d'enrobage ainsi que la localisation de sources d'émissions qui sont associées à cette activité industrielle.

Une centrale d'enrobage reçoit des matériaux (des granulats, des agrégats d'enrobés, du bitume) pour fabriquer des enrobés bitumineux à chaud et tièdes. D'une façon générale, une centrale d'enrobage à chaud est constituée des principaux éléments suivants :

- *Unités de dosage des granulats* : le dosage des granulats est assuré par des pré-doseurs (trémies), sous lesquels sont installés des tapis extracteurs. Le réglage de la vitesse de ces extracteurs permet le dosage des granulats en volume, pour les sables fillerisés, ou en poids, pour les gravillons ;
- *Unité de séchage* : le séchage est assuré par un tambour rotatif. Il s'agit d'un tambour rotatif en acier, à l'intérieur duquel sont installées des auges. Ce tambour sécheur est équipé d'un brûleur à une extrémité et d'une aspiration des gaz de combustion à l'autre extrémité ;

- *Unité de recyclage*: les matériaux à recycler doivent être introduits dans le tambour de manière à ne pas augmenter le vieillissement du liant ancien. L'introduction peut être effectuée en partie médiane du tambour pour les TSE équi-courant, ou directement avec les granulats chauds pour les centrales discontinues ;
- *Unité de dépoussiérage* : Les produits de la combustion, l'excès d'air et l'eau de séchage sont filtrés par un filtre dépoussiéreur. Les fines de récupération du dépoussiéreur obtenues sont réintroduites dans le processus pour assurer l'intégrité de la formule d'enrobé ;
- *Unité de liant bitumineux* : elle comprend de cuves de stockage de bitume pur ou modifié et, éventuellement, des additifs, maintenus en température ;
- *Unité de malaxage* : le malaxeur assure l'homogénéité du mélange granulats + bitume ;
- *Unité de stockage* : elle inclut des trémies de stockage des enrobés chauds, dont certaines sont équipées pour du stockage longue durée ;
- *Unité de commande* : elle regroupe une cabine avec local de puissance et commande par des automatismes modernes.

Les émissions les plus importantes du site de production sont les émissions canalisées au niveau de la cheminée de la centrale (Figure 1- 9). Toutefois il peut exister d'autres sources : celles dues aux chaudières pour le chauffage du fuel lourd et le bitume, ainsi que les émissions diffuses, présentes en peu partout sur le site d' une centrale d'enrobage : poussières dégagées par la circulation des camions et des chargeurs, poussières libérées par les stocks par le vent ou pendant le chargement des silos de granulats, fumées du bitume présent dans la cuve chauffée et fumées de l'enrobé bitumineux existantes dans le stock et dans les camions.

Les émissions canalisées dans la cheminée du poste d'enrobage seront analysées dans la thèse. Les émissions diffuses ne concernent qu'à l'échelle locale, les riverains proches et les travailleurs directs du site de production.

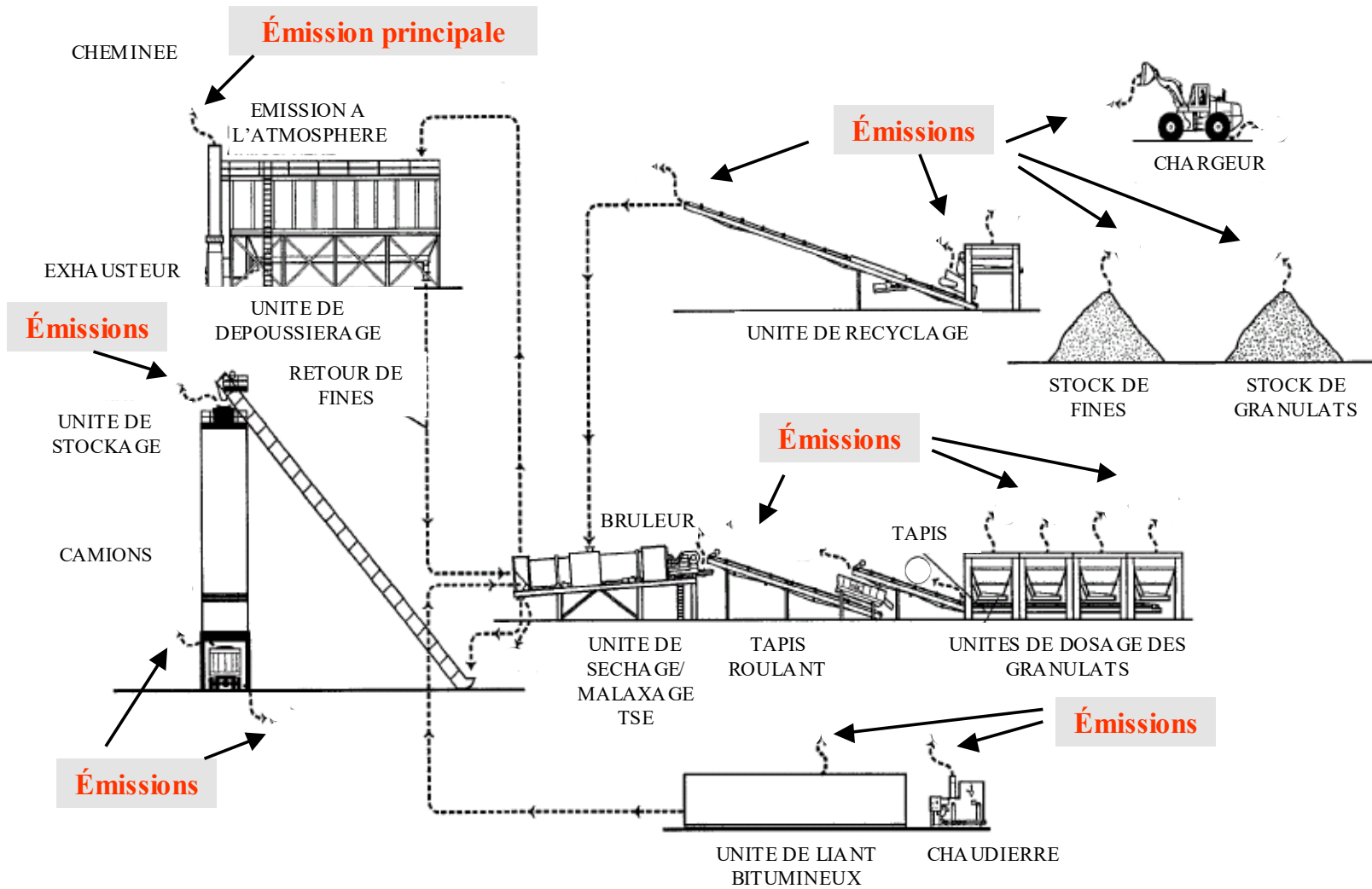


Figure I- 9 – Localisation de sources d'émissions d'une centrale d'enrobage de type TSE d'après [EPA, 2004]

2.2 Production journalière

Les chantiers routiers ont besoin d'enrobés bitumineux selon un carnet de commandes bien établi nécessitant de choisir des formules dans le catalogue de fabrication disponible ou selon les besoins spécifiques des chantiers. La distance et le temps de transport de l'enrobé produit sont des paramètres de chantier à intégrer dans la gestion des commandes d'une centrale d'enrobage. En fonction des besoins, les chantiers sont obligés de suivre un planning détaillé pour répondre aux demandes d'un projet routier. Pour chaque projet sont détaillés tous les matériaux à utiliser sur le chantier, leurs quantités, les distances de transport et prévisions d'utilisation, le type de bitume (liants spéciaux), l'origine des granulats, l'utilisation ou pas d'agrégats et éventuellement les aditifs ajoutés au bitume. Les centrales d'enrobage doivent s'adapter pour répondre à la demande qui est à la fois diverse en termes de matériaux et variable au cours de la journée. Le Tableau 1- 4 montre comment ces besoins sont pris en compte au niveau d'une centrale d'enrobage.

Tableau 1- 4 – Prise en compte des besoins des chantiers routiers au niveau d'une centrale d'enrobage.

<i>Besoins des chantiers</i>	<i>Prise en compte de la demande en centrale d'enrobage</i>
Définition des différentes formules à fabriquer (selon le planning du poste d'enrobage)	Choix de la formule puis Choix du type de liant et choix du type de granulats (naturels ou recyclés)
Définition des tonnages à fabriquer dans un temps donné par journée de production	Réalisation d'une production d'une formule donnée en tenant compte de l'organisation à la mise en œuvre ; Choix de cadences adaptées aux besoins du chantier
Prise en compte des distances de transport à l'échelle de la journée.	Identification de la logistique de transport (nombre et types de camions disponibles, 6 roues ou semi-remorque) ; Choix de la température d'enrobés qui convient à la distance de transport et aux conditions météorologiques.

Le catalogue de formules d'une centrale d'enrobage comprend plusieurs formules différentes. Les différences entre les formules sont liées à leurs constituants : granulométrie, pourcentage de recyclés, teneur et nature du bitume. Deux exemples représentatifs des différences existantes sont (1) la Grave-Bitume (GB), qui est destinée aux couches d'assise, avec une teneur en liant faible, de 3,75 % à 4,5%, et une granulométrie avec des granulats de diamètres de grande taille, d'environ 14 – 20 mm et (2) le Béton Bitumineux (BB), plutôt destiné pour les couches de surface, avec une teneur en liant beaucoup plus forte, d'environ 5,20%, et une granulométrie qui ne dépasse pas les 14 mm. Ces types de formules seront étudiés dans la suite de la thèse.

Les distances de transport des enrobés (de la centrale d'enrobage vers les chantiers) sont très variables selon la localisation des chantiers. Au Brésil, par exemple, et bien que la mobilité des centrales d'enrobage aide à l'optimisation des transports (des granulats et/ou des enrobés), il est possible de trouver des distances de transport allant jusqu'à 200 km. Dans ce cas la température de fabrication des enrobés doit être la plus élevée possible pour permettre sa mise en œuvre sur le chantier. En France, 50 km constitue déjà une distance importante, bien que ce soit plus le temps de trajet que la distance qui soit important.

D'après la norme française sur l'exécution des corps de chaussées [AFNOR, 1992], les enrobés peuvent être fabriqués à une température qui varie entre 130 à 170 °C selon la catégorie de bitume utilisé. Des variations de température peuvent être demandées par les

chantiers en fonction des problèmes de compactage et/ou de logistique de transport. Concernant la température de l'enrobé sur chantier le compactage idéal d'un enrobé n'est possible que pour une température idéale minimum entre 135 °C et 145 °C. Cette flexibilité prévue dans la norme est très importante parce qu'elle permet aux centrales de délivrer des enrobés plus chauds en cas de nécessité : pour les chantiers plus éloignés, pendant l'hiver ou destinés à des couches très fines.

2.3 Procédés d'enrobage : principes et matériels

La production industrielle des enrobés dans une centrale d'enrobage impose le conditionnement (séchage et chauffage) des granulats (et des agrégats dans le cas du recyclage) qui entrent dans leur composition. Ce conditionnement est effectué à l'intérieur d'un tambour sécheur rotatif, chaque constituant étant admis dans le tambour dans des conditions maîtrisées en termes de quantités, mais non maîtrisées en termes de température et de teneur en eau. La fabrication est réalisée de façon discontinue dans les centrales dites « centrales d'enrobage traditionnelles, ou discontinues », ou de façon continue dans les centrales dites Tambour Sécheur Enrobeur (TSE). Les procédés continus (TSE) sont encore divisés en deux types principaux : le TSE équivariant et le TSE à contre-courant [ERMONT, 2003] [CIBER, 2003] [CIFALI, 2003]. Il est intéressant de noter que les aspects environnementaux ont largement contribué à l'évolution des centrales ces dernières années.

2.3.1 Centrale d'enrobage discontinue

Ce procédé existe depuis le début de l'utilisation des enrobés bitumineux à chaud. Les granulats sont séchés et chauffés dans un tambour sécheur à contre-courant. Ensuite, ces granulats chauds sont transportés (élévateur à chaud) vers les zones de criblage, stockage et pesage. L'ensemble des constituants (granulats, fines, bitume) favorisent les émissions de particules, par les fuites d'émissions de particules dans le circuit. Il faut préciser que, ici, l'émission dans la cheminée est due uniquement à la combustion, sachant que les poussières engendrées par le processus de séchage et chauffage sont piégées par le dépoussiéreur. Les tambours rotatifs (sécheurs) ont normalement 2 à 2,5m de diamètre et 7 à 10 m de longueur [Monéron, 1994b]. Un schéma du procédé avec les dimensions courantes est proposé dans la Figure 1- 10.

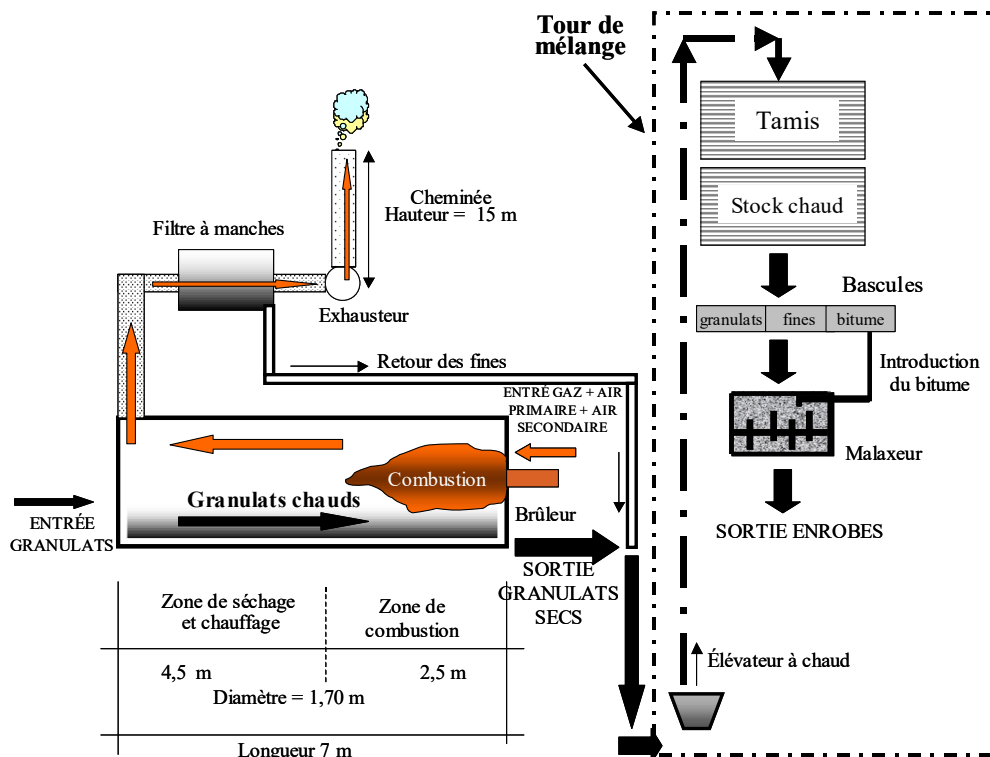


Figure 1- 10 - Centrale d'enrobage discontinue (classique)

La principale caractéristique de ce type de centrale discontinue est que les granulats circulent dans le sens contraire du flux gazeux et que le bitume d'apport n'est pas soumis à l'action du flux gazeux constitué par les gaz de combustion, l'air en excès et les vapeurs d'eau de séchage. Le flux gazeux entre dans le tambour coté flamme ; la température est de l'ordre de 1300 °C et il sort coté entrée des granulats à une température d'environ 120 °C. En revanche, les granulats entrent à température ambiante et sortent à température désirée (≈ 150 °C).

2.3.2 La centrale d'enrobage continue équicourant ou co-courant

Dans les années 1970, afin de gagner en mobilité et baisser les coûts de production, le Tambour Sécheur Enrobeur (TSE) équicourant est apparu. Dans ce procédé, les granulats secs ne sont manipulés qu'à l'intérieur du tambour sécheur enrobeur. L'émission dans la cheminée est due à la combustion et à l'enrobé fabriqué, sachant que les poussières engendrées par le processus de séchage et chauffage sont aussi piégées par le dépoussiéreur.

Avec cette centrale de type TSE, les granulats circulent dans le même sens que le flux gazeux. En cas de recyclage, le conditionnement thermique (séchage et chauffage) concerne aussi les agrégats d'enrobés, qui sont introduits dans la partie médiane du tambour sécheur. Le bitume d'apport est introduit dans la deuxième moitié du sécheur. La sortie des enrobés peut être effectuée de façon continue, via un convoyeur à raclettes, ou discontinue, via un skip de chargement. Lors de l'utilisation de la technique du recyclage, les agrégats d'enrobés sont introduits dans la partie médiane du tambour sécheur à un taux maximal de 30 %. Le bitume d'apport et les fines de récupération sont introduits dans la deuxième moitié du TSE. Les zones caractéristiques sont illustrées dans la Figure 1-11, ainsi que les dimensions pour une centrale du type TSM 21 [ERMONT, 2003]. Les trois zones existantes sont la zone de combustion, la zone de séchage des granulats et la zone d'enrobage. Les longueurs et les diamètres de chaque zone changent en fonction de la capacité nominale de production de la centrale et en fonction du fabricant.

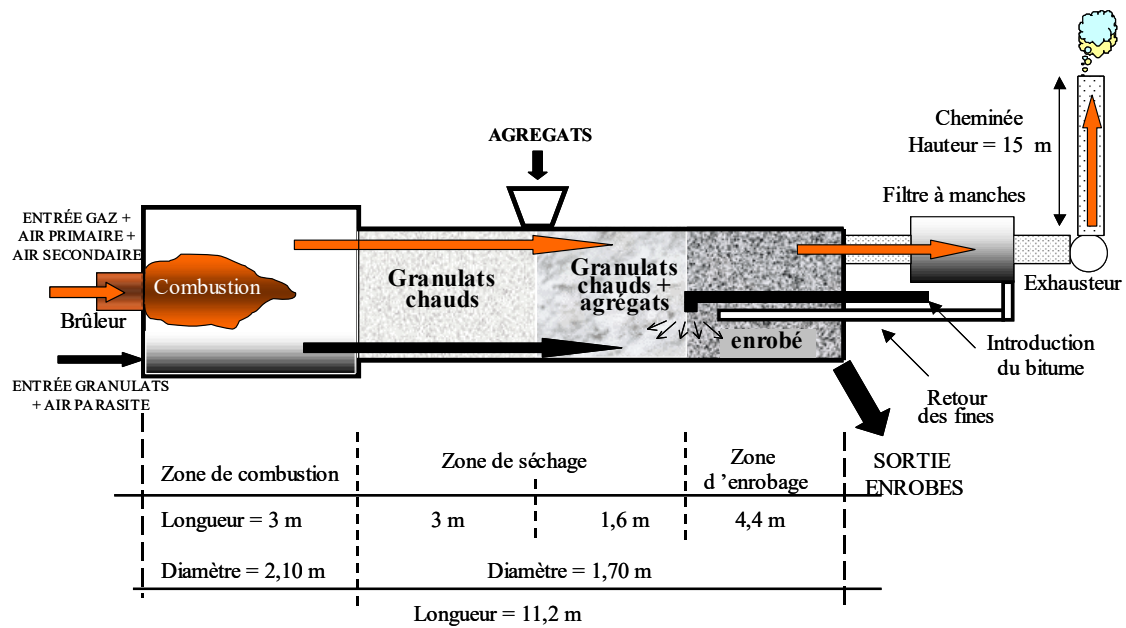


Figure 1- 11 – Exemple de centrale d'enrobage type tambour sécher enrobeur (TSM 21) équicourant d'après [ERMONT, 2003]

La principale caractéristique du TSE équicourant est que les granulats circulent dans le même sens que le flux gazeux. Les granulats, les agrégats et le bitume d'apport sont soumis à l'action du flux gazeux constitué par les gaz de combustion, l'air en excès et la vapeur d'eau de séchage (Figure 1- 12).

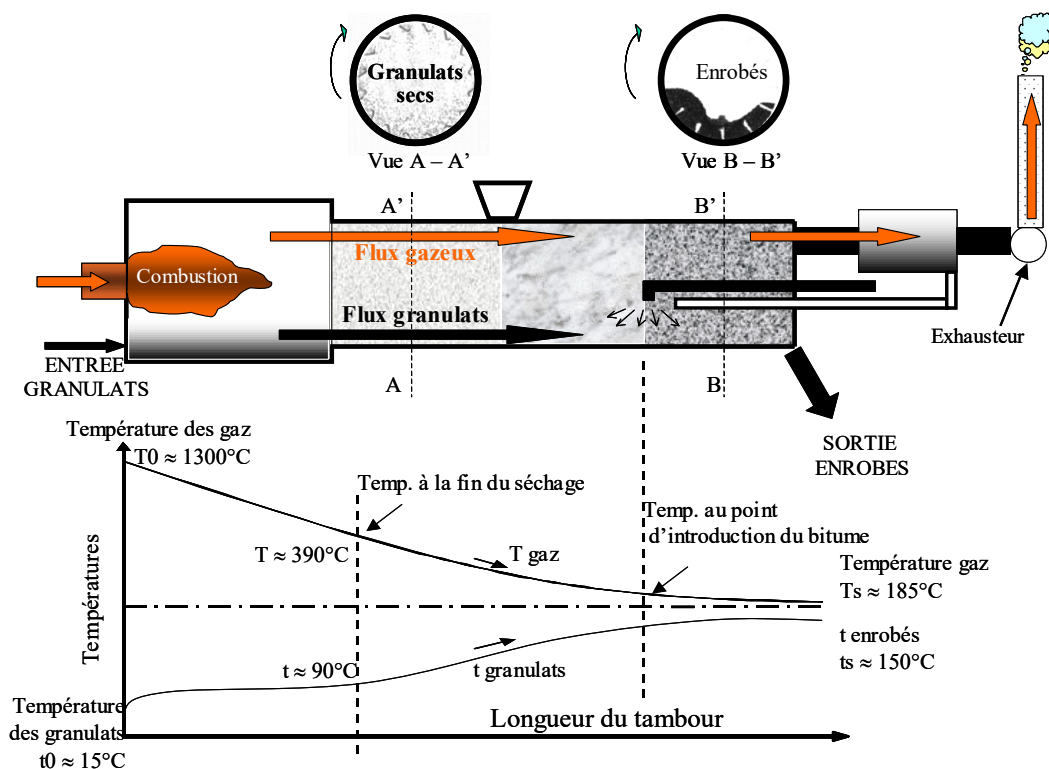


Figure 1- 12 – Les flux gazeux et des granulats à l'intérieur d'un TSE équicourant

Comme il s'agit des matériels utilisés dans la thèse, quelques détails complémentaires sont apportés. Selon le schéma d'échanges thermiques entre les gaz et les granulats, la température finale des enrobés doit être à peu près du même ordre de grandeur de celle des

gaz de combustion, à la sortie du malaxeur. La température des gaz au point d'introduction du bitume est toujours plus élevée que celle de la sortie du tambour vers la cheminée. D'après Monéron [Monéron, 1993a], lors du séchage de matériaux, la température de sortie des gaz est fonction de la température de fabrication des enrobés. L'échange thermique, anti-méthodique [IFE, 1982], est représenté par la Figure 1-13. En sortie du tambour sécheur TSE, les enrobés et les gaz tendent vers une température T_s donnée par la relation :

$$T_s = \frac{t_0 - rT_0}{1 - r} \quad (1 - 3)$$

où

t_0 : température d'entrée des granulats et

T_0 : température des gaz.

Le facteur r est défini par la relation :

$$r = \frac{-M \cdot C}{m \cdot c} \quad (1 - 4)$$

où

M : débit gaz en kg/s ;

C : capacité thermique massique des gaz, J.kg⁻¹. °C⁻¹

m : débit d'enrobé en kg/s et

c : capacité thermique massique de l'enrobé. J.kg⁻¹. °C⁻¹

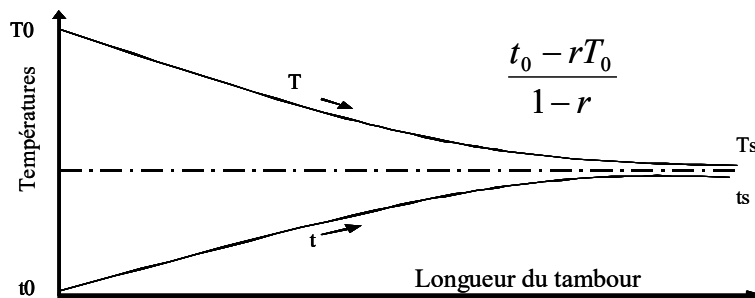


Figure 1- 13 – Echange thermique à l'intérieur d'un TSE courant parallèle d'après [Monéron, 1993a]

2.3.3 La centrale d'enrobage continue à contre courant

Dans les années 1990, tout en gardant les fonctions du TSE équicourant, l'objectif d'augmenter le taux de recyclés dans une formulation et d'éviter le contact direct des gaz de combustion avec l'enrobé bitumineux produit, a contribué au développement du TSE contre-courant. Comme pour le TSE équicourant, la fabrication dans un TSE contre-courant impose le conditionnement (séchage et chauffage) des granulats (et des agrégats dans le cas du recyclage) qui entrent dans la composition des enrobés.

Lorsqu'on recycle au Brésil (Figure 1-14), les agrégats d'enrobés sont introduits à côté de la flamme, isolés par un tambour interne, dans la partie médiane du TSE. Ils sont chauffés d'une part par conduction avec le tambour interne et d'autre part par le contact direct avec les granulats surchauffés. Le bitume d'apport est introduit dans la partie finale du sécheur, derrière le brûleur [CIFALI, 2003]. Dans les cas d'autres fabricants, les recyclés sont introduits directement derrière la flamme, en contact direct avec les granulats surchauffés [ERMONT, 2003] [CIBER, 2003].

En matière d'échange thermique, dans des conditions correctes de fonctionnement, la température finale des fumées, à la sortie du tambour sécheur, est plus basse que dans un TSE équivariant et s'apparente au fonctionnement des sécheurs de centrales discontinues. La principale caractéristique du TSE contre-courant est que les granulats circulent dans un sens contraire au flux gazeux (contre-courant) et les agrégats d'enrobés et le bitume d'apport ne sont pas soumis à l'action du flux gazeux constitué par les gaz de combustion et la vapeur d'eau de séchage. Avec cette dernière configuration de tambour [CIFALI, 2003], le taux de recyclés potentiellement utilisable a augmenté jusqu'à 50%. En revanche, l'incinération par la flamme des rejets gazeux polluants et ainsi l'avantage environnemental théorique par rapport au TSE équivariant n'a pas encore été vérifiée expérimentalement.

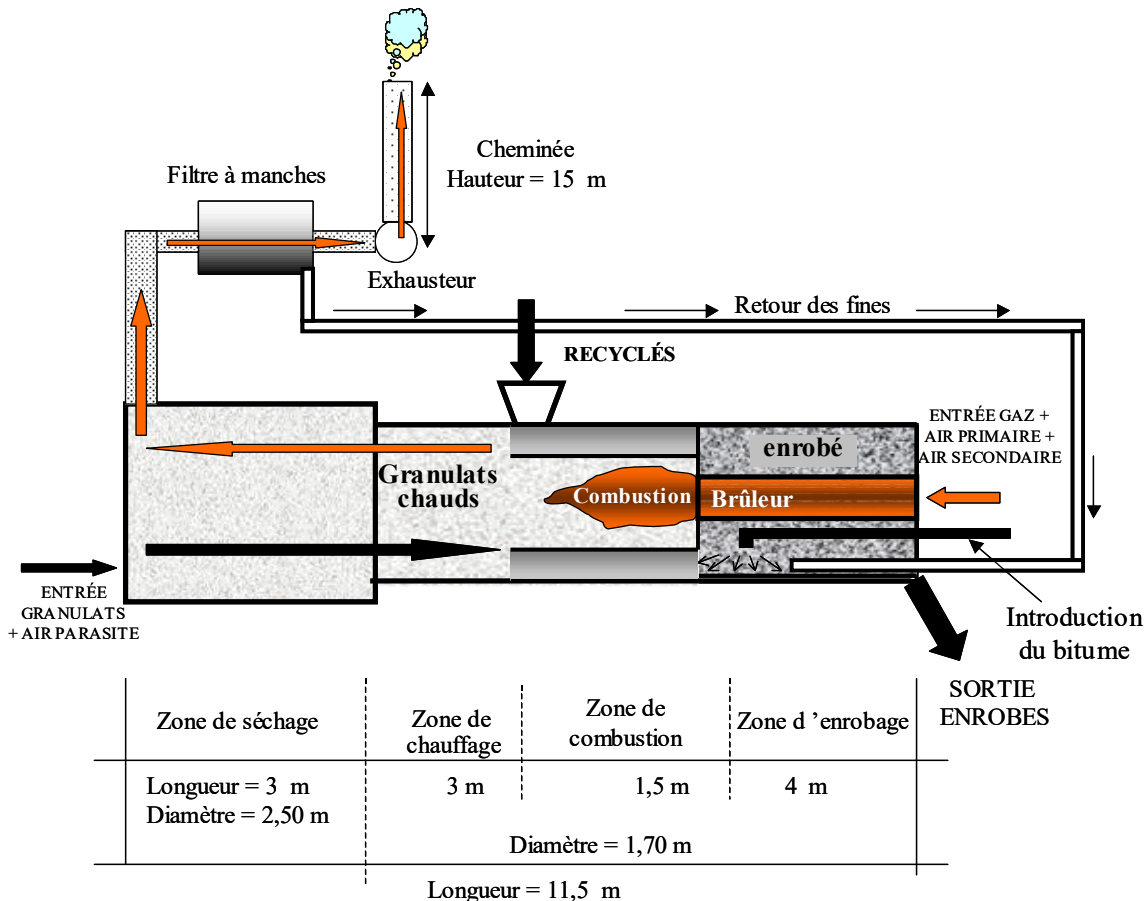


Figure 1- 14 - Centrale d'enrobage type tambour sécheur enrobeur (TSE) contre-courant d'après [CIFALI, 2003]

2.4 Fonctionnement d'un TSE

2.4.1 Paramètres de fonctionnement

Dans le tambour sécheur à chaleur directe, les granulats, les agrégats et le bitume d'apport sont soumis à l'action du flux gazeux constitué par les gaz de combustion, l'air en excès et la vapeur d'eau. Même si le TSE est constitué d'un tambour unique, celui-ci peut être divisé en trois zones (figure 1-14) :

- La zone de combustion : cette zone est consacrée au développement de la flamme « boule » ;

- La zone de séchage et d'élévation de température : cette zone est consacrée au séchage et à élévation de la température des granulats (et des recyclés s'il y en a) par contact direct avec le flux gazeux ;
- La zone d'enrobage : cette zone, en aval de l'introduction du liant d'apport, est consacrée à l'enrobage des granulats.

Le séchage de granulats par contact avec les gaz s'accompagne d'un envol de particules solides qui, récupérées par un système de dépoussiérage, sont réintroduites dans la zone d'enrobage.

Les conditions opératoires inhérentes à la conduite de la centrale, comme la température des enrobés, la cadence horaire de production, le réglage de l'exhausteur (dépression), l'excès d'air dans le circuit et le type de formule fabriquée sont importants à prendre en compte. Des paramètres plus ou moins indépendants de l'action du conducteur de la centrale, comme les teneurs en eau des constituants et la nature du bitume d'apport ont aussi une influence sur les émissions. Les paramètres suivants permettent de contrôler le fonctionnement du TSE :

- *Contrôle de la température des liants* : les bitumes doivent être stockés chauds en permanence. Il y a une plage de température à respecter selon le type (classe) de bitume ;
- *Contrôle des granulats et du liant* : des contrôles permanents par système d'acquisition de données doivent être réalisés pour assurer, en amont du procédé, le respect de la formulation prévue ;
- *Contrôle de l'humidité des granulats* : la teneur en eau moyenne des granulats doit être connue en début de production, pour permettre une régulation précise de la teneur en liant ;
- *Contrôle de la consommation* : en gaz naturel et en électricité ;
- *Contrôle de la température des enrobés* : la température des enrobés est suivie en continu lors d'une journée de fabrication ;
- *Contrôle de la qualité des enrobés fabriqués* : parallèlement au système d'acquisition, des analyses par prélèvement sont nécessaires au cours de la production pour vérifier la qualité du produit ;
- *Contrôle des émissions à l'atmosphère* : installations classées pour la protection de l'environnement soumises à l'autorisation (seuils à respecter dans l'Arrêté du 02/02/1998).

Concernant la combustion, une étude de la rentabilité de production des enrobés bitumineux et de la bonne combustion dans le brûleur du sécheur a été réalisée [Swanson, 2003]. Selon Swanson, il reste des améliorations à faire dans toutes les étapes du procédé d'enrobage. L'occasion d'optimiser la combustion dans le brûleur est souvent négligée à cause du manque général de connaissance de la problématique de la combustion et de la difficulté à identifier des indicateurs appropriés. Cette étude préconise dès lors des recommandations pratiques :

- L'ajustement de l'air primaire du brûleur est important pour régler la quantité d'oxygène qui alimente la flamme. Le réglage approprié pour la dépression au nez du brûleur est habituellement d'environ 50 Pa. Une dépression au-dessous de cette pression tendra à éteindre la flamme par manque d'oxygène occasionnant

l'endommagement des pales et du tambour. Une dépression plus importante refroidira la flamme et surchargera le dispositif d'évacuation de fumées.

- La zone de combustion doit avoir une taille appropriée. Il est important que la zone de combustion du brûleur soit libre et qu'aucun granulat ne chute dans la flamme. Le brûleur doit être réglé. Les niveaux recommandés changeront selon le fabricant d'équipement et un suivi de quelques directives de base pour le réglage du brûleur peut aider à optimiser la combustion. La flamme doit être maintenue courte et intense. L'ajustement de rotation doit empêcher la flamme d'avancer vers les granulats. La pression de combustible, la vanne de commande de combustible et l'excès d'air doivent être ajustés en fonction des analyses de gaz (fumées).
- Il est recommandé par les fabricants que les gaz dans la cheminée, dans la plupart des conditions, restent dans les plages suivantes : oxygène entre 8,5 à 10,5% ; CO entre 100 à 500 mg/kg ; NO_x entre 60 à 80 mg/kg (gaz naturel) ou NO_x > 130 mg/kg (fuel lourd).

D'une façon générale, il est recommandé d'avoir les niveaux d'oxygène et de CO aussi bas que possible. En utilisant le gaz naturel, il est recommandé que la pression du gaz soit constante.

2.4.2 Réglages et écoulement d'air

D'après les études de Monéron [Monéron et al, 2006] sur le taux d'oxygène de référence pour l'expression des concentrations en polluants gazeux, le volume d'oxygène suit le volume total d'air admis à l'intérieur d'un TSE, et n'est pas proportionnel à la consommation en combustible. La conduite de la centrale n'en permet pas la maîtrise totale. Le volume d'air total (V_a) provient d'un mélange d'air constitué par :

- l'air stœchiométrique fourni par le brûleur nécessaire pour une combustion complète (air primaire) ;
- l'air en excès fourni par le brûleur dû au réglage (air secondaire) ;
- l'air en excès dû aux entrées parasites (air parasite), qui sont conditionnées par la dépression du TSE selon les paramètres de fonctionnement de la centrale.

Selon les recommandations des fabricants [Swanson, 2004][De sars, 2006], quel que soit le principe de fonctionnement d'un brûleur, le réglage et le contrôle régulier sont indispensables. Suite au réglage, les quantités d'air primaire et secondaire sont fixées et deviennent indépendantes de la conduite de la centrale. Toutefois, dans un TSE, compte tenu de la nécessité de maintenir une dépression constante sur l'ensemble du dispositif de la centrale, en amont de l'exhausteur, les entrées d'air parasite sont toujours présentes. Cette dépression est assurée par un exhausteur localisé au pied de la cheminée (Figure 1-15).

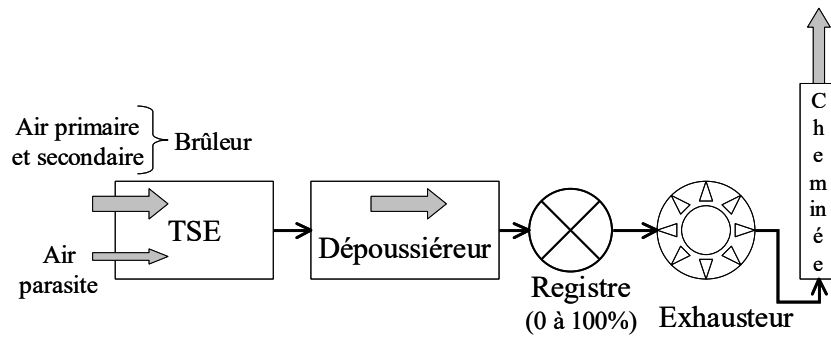


Figure 1- 15 – Système de tirage d'une centrale d'enrobage type TSE

La Figure 1- 16 présente une séquence de photos lors du démarrage de la centrale, où la problématique des entrées d'air parasite est mise en évidence. L'ouverture existante pour l'entrée des granulats étant fixe (dimensions inchangeables), la cadence de production peut influencer à dépression constante la surface libre donc le volume d'air parasite.

A l'intérieur du tambour sécheur, d'après Monéron [Monéron, 1993b], la cadence horaire détermine la section de passage des gaz de combustion et influence donc la perte de charge. En fonctionnement, la courbe caractéristique du circuit de cheminement de gaz sera une courbe de perte de charge, donc une parabole passant par l'origine des coordonnées. Dans tous les cas, le point de fonctionnement du ventilateur sera à l'intersection de la caractéristique débit- pression de celui-ci, avec la caractérisation débit-pression du circuit. Ce point de fonctionnement est unique.

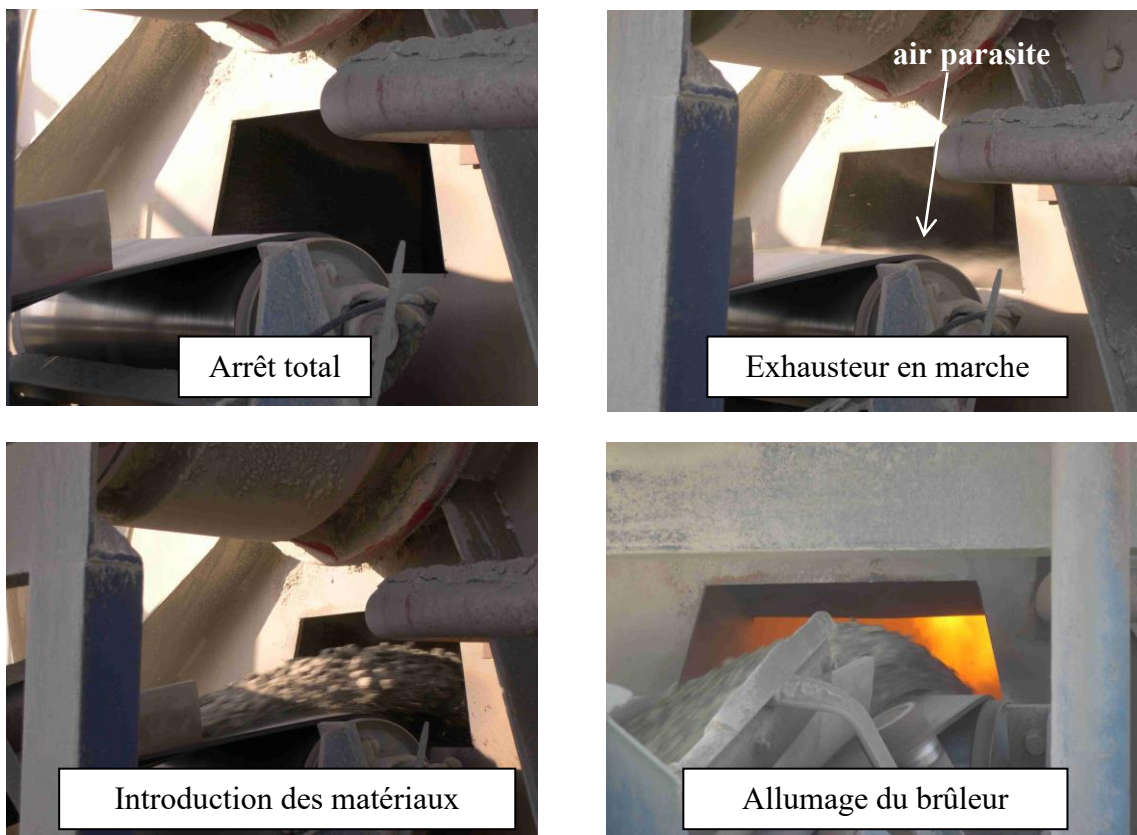


Figure 1- 16 – Séquence du démarrage d'un TSE avec les détails des entrées d'air

Une centrale d'enrobage doit cependant pouvoir travailler avec des régimes variables, conditionnés par la cadence horaire, la teneur en eau des matériaux ou la température des

enrobés. Il en résulte des variations du débit gazeux à évacuer à l'atmosphère. Il est nécessaire de pouvoir faire varier le débit des gaz humides extraits par le ventilateur. Pour cela, il faut disposer d'un dispositif de réglage modifiant soit la caractéristique du circuit, soit la caractéristique du ventilateur. Sur les centrales d'enrobage, il existe donc des registres de commande qui permettent de moduler la perte de charge provoquée et d'obtenir une variation continue du débit. La Figure 1- 17 montre le point de fonctionnement 2 qui correspond à un volume Q_2 de gaz humide, à une pression totale P_2 . Dans le cas d'une diminution de la teneur en eau des matériaux, ou d'une baisse de cadence, à cause d'une évolution de marche de la centrale, le volume de gaz humides à évacuer diminue et devient Q_1 . La perte de charge correspondante dans le circuit, sans modification du registre, devient $P'_2 = \left(\frac{Q_1}{Q_2}\right)^2 P_2$. Sur la courbe caractéristique du ventilateur, qui reste inchangée, la dépression correspondant au débit Q_1 est P_1 . Il faut fermer partiellement le registre pour créer une perte de charge équivalente à $P_1 - P'_2$. La vitesse de rotation étant fixe, le registre est un élément indispensable pour assurer les variations de débit des gaz à évacuer au cours de la production. Son fonctionnement est contrôlé automatiquement par l'automate de la centrale.

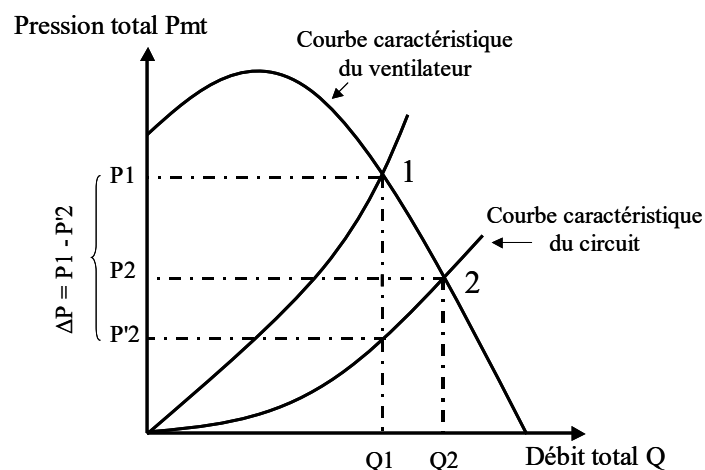


Figure 1- 17 – Fonctionnement du registre de réglage de l'exhausteur d'une centrale d'enrobage

2.5 Combustion et combustibles

2.5.1 Généralités sur la combustion

La combustion est une réaction chimique d'oxydation. Elle ne peut se produire que lorsque l'on réunit trois éléments : un combustible, un comburant, une énergie d'activation. C'est un phénomène exothermique. La combustion apparaît le plus souvent sur forme d'une flamme constituée par le volume gazeux dans lequel s'effectuent les réactions d'oxydation.

Les combustibles gazeux sont composés des gaz suivants :

- Hydrogène (H_2) ;
- Dioxyde de carbone (CO_2) ou monoxyde de carbone (CO) ;
- Des hydrocarbures saturés : méthane (CH_4), éthane (C_2H_6), propane (C_3H_8), butane et isobutane (C_4H_{10}), pentane (C_5H_{12}) et exceptionnellement vapeur d'hexane (C_6H_{14}) ;

- Des hydrocarbures non saturés : éthylène (C_2H_4), propène ou propylène (C_3H_6), butène ou butylène (C_4H_8) ;
- Des hydrocarbures non saturés non identifiés à l'analyse, présents dans les gaz manufacturés (C_nH_m).

Le comburant est l'autre réactant de la réaction chimique. La plupart du temps, il s'agit de l'air ambiant, et plus particulièrement de l'un de ses composants principaux, le dioxygène (O_2). La réaction est déclenchée par une énergie d'activation. La production de chaleur permet à cette réaction de s'auto-entretenir dans la plupart des cas.

Pour amorcer et propager la réaction de combustion, il faut à la fois :

- que le combustible et le comburant soient intimement mélangés ;
- que le combustible et le comburant soient en proportions telles que le mélange soit inflammable;
- qu'un point de ce mélange soit porté à une température supérieure à la température d'inflammation.

Pour permettre la poursuite de la combustion, il faut en outre, à la fois évacuer les produits de combustion au fur et à mesure de leur formation et assurer l'alimentation en combustible et en comburant de façon à satisfaire les trois conditions précédentes.

La température d'inflammation (température d'ignition ou température d'auto inflammation) est la température minimale à laquelle doit être porté un point d'un mélange inflammable d'air et de gaz combustible pour que la combustion puisse s'amorcer et se propager. La combustion d'un combustible gazeux nécessite la présence d'air comburant. Si l'on considère tous les mélanges possibles repérés par exemple, par la teneur en combustible gazeux dans un mélange homogène depuis 0% (air pur) jusqu'à 100% (gaz pur), il apparaît que la combustion ne peut s'amorcer et se propager que pour une plage de valeurs appelée plage d'inflammabilité et dont les limites sont :

- La limite inférieure d'inflammabilité ; en deçà de cette valeur il y a trop d'air (ou exprimé autrement : le mélange n'est pas assez riche en gaz) pour que la combustion puisse se développer ;
- La limite supérieure d'inflammabilité, au-delà de cette valeur il n'y a plus assez d'air (ou exprimé autrement : le mélange est trop riche en gaz) pour que la combustion puisse se développer.

Les limites d'inflammabilité sont données en rapport volumétrique :

$$\frac{\text{Volume}_{\text{combustible gazeux}}}{\text{Volume}_{\text{mélange}}} \quad \text{en \%} \quad (1-1)$$

La plage d'inflammabilité dépend de la température et de la pression. En particulier la plage d'inflammabilité s'agrandit quand la température augmente. Par exemple, pour le méthane pur (gaz naturel) la variation des limites d'inflammabilité est la suivante (Tableau 1-5) en fonction de la température du mélange avant ignition. Les limites d'inflammabilité par les gaz naturels sont données dans le Tableau 1-6.

Tableau I- 5 - Limites d'inflammabilité du méthane d'après [Gaz de France, 1984]

Température du mélange °C	Limite inférieure	Limite supérieure
	% du mélange	
0	5,2	13,4
100	4,7	13,7
200	4,2	14,7
300	3,7	15,9
400	3,1	17,3

La notion de taux d'aération étant plus courante que celle de richesse en gaz du mélange en %, il est intéressant de l'utiliser pour exprimer les limites inférieure et supérieure d'inflammabilité. On voit par exemple que le gaz de cokerie peut s'enflammer avec un facteur d'air de $\sim 4,5$ (350 % d'excès d'air) alors qu'avec $n = 1,90$ (90 % d'excès d'air) un mélange d'air et de gaz de Mer du Nord ne peut brûler (annexe 2.1).

Tableau I- 6 - Limites d'inflammabilité par les gaz naturels d'après [Gaz de France, 1984]

Nature du Gaz		Limites d'inflammabilité des mélanges Air – Gaz froids			
		En proportion volumétrique de gaz dans le mélange		En fonction du taux d'aération	
		Inférieure	Supérieure	Inférieure	Supérieure
		L_i (vol)	L_s (vol)	$n=1,9$	$n=1,9$
		% du mélange	% du mélange	-	-
Gaz naturels	Lacq	5,1	14,0	1,92	0,63
	Algérie (Le Havre)	4,7	13,8	1,88	0,59
	Mer du Nord	5,2	14,5	1,90	0,61
Gaz de pétrole	Propane commercial	2,4	9,3	1,75	0,43
	Butane commercial	1,8	8,8	1,67	0,42
Gaz manufacturé	cokerie	4,6	32,0	4,77	0,49

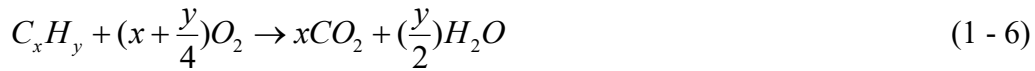
La température théorique de combustion est la température à laquelle seraient portés les produits de la combustion si toute la chaleur dégagée par la réaction était utilisée à les échauffer. Ainsi, on considère la réaction de combustion à l'intérieur d'une bombe calorimétrique (adiabatique + volume constant). Toute l'énergie dégagée par la réaction sert à chauffer les produits. Cette température est seulement accessible par le calcul. A partir de 1700 °C les produits de la combustion complète CO_2 et H_2O se dissocient partiellement, avec l'apparition de CO , H_2 et O_2 . Le taux de dissociation dépend de la température et de la teneur en inertes.

2.5.2 Généralités sur les combustibles

D'après la bibliographie existante sur les fours, les chaudières et les centrales d'enrobage [Farias et Ngendakumana, 1997] [Pickenäcker et al, 2000] [Korstanje et al, 1997] [Swanson, 2003], le paramètre le plus important à maîtriser lors d'une combustion est le rapport air/combustible à cause de son influence décisive sur les réactions de combustion. Les besoins d'air sec nécessaires pour la combustion complète d'une mole de gaz, l'air stœchiométrique, peuvent être simplifiés pour le gaz méthane de la façon suivante :



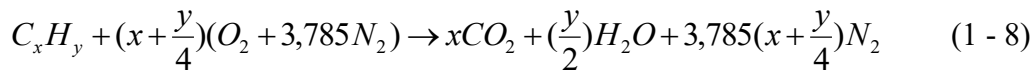
Cette équation peut être réécrite d'une façon générique pour les hydrocarbures C_xH_y de la façon suivante :



Donc les besoins stœchiométriques pour l'oxygène, α_s , peuvent être définis par :

$$\alpha_s = (x + \frac{y}{4}) \quad (1 - 7)$$

Cependant cette équation représente les besoins pour la combustion de l'oxygène pur. Ce n'est pas le cas dans la situation que nous étudions car c'est bien de l'air qui est consommé pendant la combustion. Dans ce contexte, l'utilisation de l'air comme source d'oxygène change l'équation de réaction :



L'hypothèse utilisée prend en compte une composition de l'air de 20,9% de O_2 et 79,1% de N_2 . Sur la base de ces pourcentages, pour chaque mole de O_2 dans l'air nous avons 3,785 moles de N_2 ($79,1/20,9 = 3,785$). Pour oxyder une mole de C_xH_y , il faut $s \times 4,785$ moles d'air avec $s = (x + y/4)$. Le Tableau 1- 7 rappelle le rapport air/combustible pour plusieurs alcanes.

Tableau 1- 7 – Rapport air/combustible pour la combustion d'alcanes

<i>Component</i>	<i>Formule</i>	<i>C (x)</i>	<i>H (y)</i>	<i>s</i>	<i>Rapport Air/combustible</i>
Méthane	CH ₄	1	4	2,0	9,570
Ethane	C ₂ H ₆	2	6	3,5	16,748
Propane	C ₃ H ₈	3	8	5,0	23,925
n-Butane	C ₄ H ₁₀	4	10	6,5	31,103
Pentane	C ₅ H ₁₂	5	12	8,0	38,280
Hexane	C ₆ H ₁₄	6	14	9,5	45,458
Heptane	C ₇ H ₁₆	7	16	11,0	52,635
Octane	C ₈ H ₁₈	8	18	12,5	59,813

2.5.3 Cas particulier du gaz naturel

Le gaz naturel est un mélange d'hydrocarbures saturés composé essentiellement de méthane (70 à 95 %, en volume, selon le gisement). Il est associé à d'autres alcanes (éthane, propane, butane), à du diazote N_2 , à du dioxyde de carbone CO_2 et à du sulfure d'hydrogène H_2S . Les Tableaux 1 – 8 et 1 – 9 ci-après montrent les caractéristiques de gisements en Europe et en Amérique du Sud. Après épuration, les gaz distribués ont une teneur en méthane comprise entre 81 et 97 %. Les différentes définitions de pouvoir calorifique d'un combustible se trouvent dans le lexique en fin de texte.

Tableau 1- 8 - Caractéristiques de quelques gisements de gaz naturel en Europe (les compositions sont données en % en volume)

	<i>Frigg (Mer du Nord)</i>	<i>Lacq (France)</i>	<i>Urengoi (Russie)</i>	<i>Hassi R'Mel (Algérie)</i>	<i>Groningue (Pays Bas)</i>
Profondeur minimale (m)	110	3 300	1 100	2 200	3 000
Méthane (%)	95,7	69,2	98	83,5	81,3
Éthane (%)	3,6	3,3-3,6		7,9	2,9
Propane (%)	0,04	1,0-1,2		2,1	0,4
Butane (%)	0,01	0,6-0,9		1,0	0,2
Diazote (%)	0,4	0,6	1,2	5,3	14,3
Dioxyde de carbone (%)	0,3	9,3	0,3	0,2	0,9
Sulfure d'hydrogène (%)	-	15,3	-	-	-
Réserves initiales récupérables de gaz naturel en Europe (en 10 ⁹ m ³)	230	240	6 200	2 000	2 000
Pouvoir calorifique (PCI) du gaz commercialisé (kWh/m ³)	11,6	11,2	≈ 10,8	≈ 11,3	≈ 9,2

La teneur totale en soufre est la masse de l'élément soufre des composés minéraux (H₂S) et organiques (thiols) de ce corps par unité de quantité de combustible gazeux, en mg/Nm³. La teneur en soufre dépend de la nature du gaz, cependant elle est particulièrement faible. Pour le gaz de Lacq épuré livré à la consommation, la teneur pratique en soufre est de l'ordre de 10 mg/Nm³.

Tableau 1- 9 - Caractéristiques de quelques gisements de gaz naturel disponibles en Amérique du Sud (les compositions sont données en % en volume)

	<i>Campos (Brésil)</i>	<i>Santos (Brésil)</i>	<i>Bolivie</i>
Méthane (%)	89,3	88,3	91,8
Éthane (%)	8,0	6,1	5,6
Propane (%)	0,8	3,0	1,0
Butane (%)	0,03	0,704	0,02
Diazote (%)	1,28	0,69	1,4
Dioxyde de carbone (%)	0,48	0,15	0,8

Dans le cas des combustibles gazeux, on calcule le pouvoir comburivore et le pouvoir fumigène à partir de la composition volumétrique du combustible. Nous avons les teneurs en :

- combustibles : oxyde de carbone $\frac{CO\%}{100}$, hydrogène $\frac{H_2\%}{100}$ et hydrocarbures $\sum\% \frac{C_nH_m}{100}$
- inertes : $\frac{CO_2\%}{100}$, $\frac{N_2\%}{100}$ et $\frac{H_2O\%}{100}$
- oxygène : $\frac{O_2\%}{100}$

Les équations de combustion deviennent :

$$[aC_nH_m + bH_2 + cCO + dCO_2 + eN_2] + \frac{g(1+\alpha)}{0,21}(0,21O_2 + 0,79N_2) =$$

$$= (an + d)CO_2 + \left(\frac{am + 2b}{2}\right)H_2O + g\alpha O_2 + \left[\frac{0,79}{0,21}g(1+\alpha) + e\right]N_2 \quad (1 - 9)$$

Avec les coefficients : $a + b + c + d + e = 1$

Et les volumes :

$$Va = \frac{g(1+\alpha)}{0,21} \quad (\text{volume d'air dans l'installation = supérieur à l'air théorique}) \quad (1 - 10)$$

$$VCO_2 = an + d \quad (\text{volume de } CO_2 \text{ dans les fumées pour } 1m^3 \text{ de gaz}) \quad (1 - 11)$$

$$Vf_0 = an + d + g\alpha + \frac{0,79}{0,21}g(1+\alpha) + e \quad (\text{volume de fumées sèches}) \quad (1 - 12)$$

$$Vf'_0 = an + d + \left(\frac{am + 2b}{2}\right) + g\alpha + \frac{0,79}{0,21}g(1+\alpha) + e \quad (\text{volume de fumées humide}) \quad (1 - 13)$$

$$\text{Et le coefficient } CO_2 \text{ max} = \frac{VCO_2}{Vf_0} \quad (1 - 14)$$

Les gaz naturels utilisés en centrales d'enrobage sont essentiellement constitués de méthane. Ils proviennent des gisements naturels souterrains ou sous-marins et, après traitements éventuels, sont transportés sur des grandes distances jusqu'aux régions de distribution et aux points d'utilisation. Aujourd'hui les provenances des gaz sont diverses car il y a une interconnexion des réseaux des transports et une même région peut recevoir des gaz d'origines différentes, purs ou un mélange. Si l'on prend un gaz naturel pur d'origine algérienne (Fos), il présente 91,2% de CH_4 , 6,5% de C_2H_6 , 1,1% de C_3H_8 , 0,2% de C_4H_{10} et 1 % de N_2 .

2.5.4 Cas particulier du fuel lourd

Dans le cas des combustibles liquides, la combustion s'opère toujours en phase vapeur. Il faut augmenter la surface spécifique du liquide (pulvérisation), accélérer sa vaporisation et le mélanger intimement avec le comburant. Toutes ces opérations sont effectuées par le brûleur, constitué d'un distributeur d'air de combustion et d'un injecteur de combustible. En pratique dans une centrale d'enrobage, selon Monéron [Monéron, 1986], nous avons toujours une combustion oxydante, avec excès d'air et présence d'oxygène dans les fumées. L'air comburant et l'excès d'air possèdent une certaine quantité d'eau.

Soit ϕ le degré hygrométrique ambiant, et T_1 la température. Par définition, on a :

$$\phi = \frac{100 \cdot \text{pression}_\text{partielle}}{\text{pression}_\text{saturation}_{T_1}} \quad (1 - 15)$$

Et le rapport d'eau en volume est :

$$b = \frac{100 \cdot \text{pression}_\text{partielle}}{\text{pression}_\text{totale}_\text{des}_\text{fumées}} \quad (1 - 16)$$

Comme la pression des gaz en sortie est sensiblement égale à la pression atmosphérique, nous avons :

$$b = \frac{\phi \cdot \text{pression}_{\text{saturation}}}{P_{\text{atmosphérique}}} \quad (1 - 17)$$

L'air comburant et l'excès d'air contiennent b (%) d'eau sous forme de vapeur. Pour les calculs on prend, pour l'air, la composition de 21% du volume en oxygène et 79% du volume en azote. Les spécifications administratives sont dans le Tableau 1- 10.

Tableau 1- 10 – Masses volumiques et chaleurs spécifiques à pression constante des gaz
[Monéron, 1986]

Gaz	Masse volumique (kg/Nm ³)	Chaleur Spécifique (CP) (kcal/kg°K) moyenne entre 0 °C et 200 °C
CO ₂	1,9768	0,2174
N ₂	1,2505	0,2492
Air	1,2928	0,2416
H ₂ O	0,805	0,474
SO ₂	2,9263	0,158

On calcule les produits de combustion à partir de la composition pondérale du combustible (Tableau 1- 11), soit la teneur en éléments combustibles (carbone, hydrogène et soufre), soit la teneur en inertes (eau, azote et cendres). Les équations de combustion sont identiques à celles du gaz naturel au terme de SO₂ près.

Tableau 1- 11 – Compositions des fuels domestique et lourd en comparaison avec du butane et du propane commercial

Combustible	Carbone %	Hydrogène %	Soufre %	Azote %
Fuel domestique	86,4	13,4	0,2	-
Fuel lourd	86,5	9,8	3,3	-
Propane commercial	83,7	16,3	0,02	0,4
Butane commercial	84,2	15,8	0,02	-

3 Émissions à l'atmosphère

Après avoir étudié les matériaux utilisés et les procédés existants pour fabriquer des enrobés bitumineux, cette partie est dédiée aux émissions engendrées.

3.1 Caractérisation des principaux polluants étudiés

Dans le cadre de la thèse, nous nous sommes concentrés sur les principales émissions citées par l'Arrêté du 2 février 1998 relatif aux prélèvements et à la consommation d'eau ainsi qu'aux émissions de toute nature des installations classées pour la protection de l'environnement soumises à autorisation. Il s'agit du monoxyde de carbone, des oxydes de soufre, des oxydes d'azote et des composés organiques volatils. Cependant, dans le cadre de la recherche, nous avons ajouté à nos émissions le dioxyde de carbone, les HAP. L'oxygène est également considéré. En effet, l'oxygène renseigne sur la dilution existante dans la cheminée.

3.1.1 L'oxygène

La méthode d'analyse de l'oxygène (O₂) est basée sur les propriétés paramagnétiques de ce gaz. Elle est décrite dans la norme [AFNOR,1980]. Cet effet permet de doser l'oxygène

si le mélange renferme des proportions d'oxygène et d'autres gaz paramagnétiques (NO_x) telles que l'on puisse négliger les effets du champ sur ceux-ci. Ceci est le cas des fumées de centrales thermiques où avec une combustion à faible excès d'air, il y a de l'ordre de 1 % d'oxygène en volume (10^{-2}) et quelques centaines de mg/kg (10^{-4}) d'oxyde d'azote. C'est ainsi le cas des fumées des centrales d'enrobage, où il existe une combustion à fort excès d'air où la teneur en oxygène est de l'ordre de 12 à 15 %.

3.1.2 Le monoxyde de carbone

Les émissions de monoxyde de carbone (CO) proviennent d'une combustion incomplète de matières organiques et des combustibles fossiles (gaz naturel, hydrocarbures, charbons). La méthode de mesure préconisée dans la norme française NF X 43-012 est l'absorption d'un rayonnement infrarouge simple non dispersé. La mesure classique est de type différentiel et met en jeu deux faisceaux de rayonnement infrarouge, l'un de référence, l'autre de mesure. Le faisceau de référence traverse une cellule remplie d'un gaz neutre où le rayonnement infrarouge n'est pas absorbé. L'autre faisceau traverse une cellule identique où circule l'air contenant le CO et où il est partiellement absorbé. Les rayonnements des deux faisceaux provoquent des accroissements de température différents selon qu'il s'agit du faisceau de référence ou de mesure. Cette différence est ensuite mesurée par un thermocouple ou par l'intermédiaire de la différence de pression résultante [Toupance et Person, 2005b].

3.1.3 Le dioxyde de carbone

Le dosage en continu du dioxyde de carbone (CO_2) peut être réalisé par l'absorption d'un faisceau des radiations infrarouge non dispersé selon la norme NF X 20 380 [AFNOR, 1979]. Pour cela, il faut éliminer l'eau et les poussières avant la mesure, maintenir constante la pression (voisine de la pression atmosphérique) et la température.

3.1.4 Les oxydes d'azote

Les oxydes d'azote (NO_x) sont constitués dans l'ensemble des espèces chimiques dans lesquelles l'azote est lié à un moins un atome d'oxygène et dont le nombre d'oxydation est au moins égal à 2. Il s'agit de NO, N_2O_3 , NO_2 , N_2O_5 , et des acides correspondants HONO et HNO_3 , et de nombreux nitrates organiques. Du fait de leur rapide interconversion chimique, NO et NO_2 sont souvent regroupés ensemble sous le nom de NO_x :

$$[\text{NO}_x] = [\text{NO}] + [\text{NO}_2] \quad (1 - 18)$$

La méthode automatique actuellement utilisée pour mesurer les oxydes d'azote (NO et NO_2) est la chimiluminescence de $\text{NO} + \text{O}_3$, comme le préconise la norme NF X 43-018 [AFNOR, 1983]. Elle est basée sur les réactions suivantes :



au cours desquelles des molécules de NO_2 passent d'abord par un état excité puis libèrent une énergie lumineuse centrée dans le proche infrarouge (1,2 μm).

3.1.5 Les Composés Organiques Volatils

Les composés organiques volatils (COV) regroupent une multitude de substances qui peuvent être d'origine biogénique (origine naturelle) ou anthropogénique (origine humaine). Ils sont toujours composés de l'élément carbone et d'autres éléments tels que l'hydrogène, les halogènes, l'oxygène, le soufre [ADEME, 2004].

La Directive du Conseil n° 1999/13/CE du 11 mars 1999 , extrait du JOCE n° L85 du 29 mars 1999, rect. JOCE n° L 188 du 21 juillet 1999 et rect. JOCE n° L 87 du 8 avril 2000, préconise que :

Un composé organique concerne tout composé contenant au moins l'élément de carbone et un ou plusieurs des éléments suivants : hydrogène, halogène, oxygène, soufre, phosphore, silicium ou azote, à exception des oxydes de carbone et des carbonates et bicarbonates minéraux ;

Un Composé Organique Volatil (COV) concerne tout composé organique ayant une pression de vapeur de 0,01kPa ou plus à une température de 293,15 K ou ayant une volatilité correspondante dans les conditions d'utilisation particulières.

D'autres définitions sont données par l'Arrêté du 1^{er} mars 1993 : « toute composé qui, à l'exclusion du méthane contiennent C et H lequel peut être substitué à d'autres atomes (X, O, S, N, P) à l'exception de CO et des carbonates » et par l'EPA : « toutes substances carbonées qui participent aux réactions photochimiques de l'atmosphère ».

Une classification des COV est donnée aussi par l'EPA selon leur volatilité (Tableau 1- 12). Cette classification est basée sur des observations empiriques et/ou pratiques de l'étude des contaminants atmosphériques.

Tableau 1- 12 - Classification des contaminants atmosphériques organiques en fonction de leur volatilité d'après [EPA, 2004]

Classe	Pression de vapeur	Point d'ébullition
Volatils (COV)	> 0,13 mm Hg	< 100 °C
Semi volatils (COSV)	0,1 – 10 ⁻⁷ mm Hg	100 – 325 °C
Non volatils (CONV)	< 10 ⁻⁷ mm Hg	> 325 °C

mm Hg = 1,33322.10² Pa

Dans cette classification, les COV se trouvent principalement dans la phase gazeuse, les COV Non Volatils (CONV) se trouvent adsorbés dans des particules atmosphériques et les COV semi-Volatils (COSV) se distribuent dans la phase gazeuse et particulaire.

Une autre classification, en familles chimiques des COV, est la suivante :

Hydrocarbures aliphatiques – C_nH_n (alcane, alcènes, alcynes) ;

Hydrocarbures aromatiques – ArH (benzène, naphthalène, benzopyrènes) ;

Hydrocarbures oxygénés (alcools, glycols) ;

Hydrocarbures halogènes (dichlorométhane, chloroforme, perchlorétylène) ;

Autres Hydrocarbures (CS₂, amines, nitrés, acétonitrile).

Par la suite, nous ferons référence aux Composés Organiques Totaux (COT) pour représenter toutes les émissions organiques volatiles mesurées dans le cadre de la thèse, du fait qu'elles se produisent à différentes températures.

3.1.6 Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques

Les HAP regroupent des substances chimiques constituées de deux à six cycles aromatiques juxtaposés. Le nombre théorique de HAP susceptibles d'être rencontrés est supérieur à mille. Selon le nombre de cycles, ils sont classés en HAP légers (jusqu'à trois

cycles) ou lourds (quatre cycles ou plus) qui ont des caractéristiques physico-chimiques et toxicologiques différentes [Reinke et al, 2000]. Les HAP sont présents dans l'environnement à l'état de traces, c'est-à-dire à des concentrations allant du dixième à quelques dizaines de ng/m³. En raison de leur très faible solubilité, ils ont tendance à s'associer aux fines particules en suspension (de 0,3 à 3 µm) qui peuvent avoir un temps de séjour très long dans l'atmosphère. Dans l'atmosphère, l'essentiel des HAP lourds est absorbé sur les particules. Les HAP sont très instables dans l'air ; en effet ils peuvent réagir avec d'autres polluants comme l'ozone, le NO₂ et le SO₂ pour produire des diones, des nitro-HAP et des acides sulfoniques. Ils sont également photosensibles et sont détruits par les rayonnements ultraviolets [Tang et al, 2001]. Les HAP proviennent principalement des processus de pyrolyse et en particulier de la combustion incomplète des matières organiques. Les principales sources d'émission dans l'air sont le chauffage (principalement au charbon, mais aussi au bois ou au fuel domestique) et les véhicules automobiles.

Selon NIOSH [NIOSH, 2000] les études des polluants aromatiques polycycliques sont orientées à la recherche des 16 composés Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques suivants supposés représenter la famille des HAP au plan de la cancérogenèse: acenaphthylène C₁₂H₈ ; naphthalène C₁₈H₁₂ ; acénaphène C₁₂H₁₀ ; fluorene C₁₃H₁₀ ; phénanthrène C₁₄H₁₀ ; anthracène C₁₄H₁₀ ; fluoranthène C₁₆H₁₀ ; pyrène C₁₆H₁₀ ; benz(a)anthracène C₁₈H₁₂ ; crysène C₁₈H₁₂ ; benzo(b)fluoranthène C₂₀H₁₂ ; benzo(k)fluoranthène C₂₀H₁₂ ; benzo(a)pyrène C₂₀H₁₂ ; dibenzo(a,h)anthracène C₂₂H₁₄ ; benzo(g,h,i)perlylène C₂₂H₁₂ ; indénol (1,2,3-cd) pyrène C₂₂H₁₂ .

3.2 Polluants atmosphériques émis par les bitumes et les enrobés

Depuis les années 1970, les communautés scientifiques, industrielles et l'administration ont principalement concentré leur attention sur les fumées de bitume. Aujourd'hui une attention spéciale est portée à l'exposition des ouvriers aux fumées d'enrobé.

3.2.1 Caractérisation d'émissions de résidus pétroliers

En France, Gonzalez [Gonzalez et al, 2000] a mis en œuvre des essais préliminaires pour la caractérisation des émissions de COV et des HAP de résidus pétroliers prélevés sur des plages suite au naufrage du pétrolier Erika. Deux types d'essais ont été proposés par Gonzales: l'essai statique, sans renouvellement d'air, et l'essai dynamique, avec le conditionnement des échantillons dans une cellule d'essais avec renouvellement d'air. L'analyse a été réalisée par thermodesorption puis par chromatographie en phase gazeuse avec détection par ionisation de Flamme (GC-FID).

Les prélèvements ont été réalisés sur filtre en sortie de la chambre d'essai, à l'aide d'une pompe pour analyse des HAP, pendant 330min. Le système de prélèvement comporte un filtre en fibre de quartz de 47 mm et deux tubes de résine XAD-2 placés en série en aval du filtre. Le filtre et la résine XAD-2 ont été extraits conjointement par extraction accélérée (ASE) à haute pression et haute température avec du dichlorométhane pendant une heure environ. Après concentration sous flux d'azote, l'échantillon est analysé par HPLC en phase inverse avec détection couplée par fluorimétrie et spectromètre de masse (CG-MS).

Seuls 5 HAP de la liste de l'EPA (USA) ont été détectés, il s'agit des HAPs les plus volatils. Des facteurs d'émission massique (µg/kg.h) ont été calculés, pour ces HAPs (Naphthalène, Acénaphène, Fluorène, Phénanthrène et Anthracène), par rapport à la masse totale de l'échantillon (90 g) et les résultats présentés dans la forme de facteurs d'émission

sont dans le Tableau 1- 13. Selon Gonzales, les autres HAP, du fait de leur forte masse moléculaire et de leur faible volatilité, n'ont pas été volatilisés de la surface de l'échantillon.

Tableau 1- 13 - Facteurs d'émission des HAP calculées sur de résidus pétroliers suite au naufrage du pétrolier Erika, en France d'après [Gonzalez, 2000]

<i>HAP</i>	<i>Composés dans l'échantillon (ng)</i>	<i>Facteur d'émission ($\mu\text{g}/\text{m}^2.\text{h}$)</i>	<i>Emission massique ($\mu\text{g}/\text{kg}.\text{h}$)</i>
Naphtalène	2795	34,57	5,6
Phénanthrène	339	4,19	0,7
Acénaphthène	231	2,86	0,5
Fluorène	205	2,54	0,4
Anthracène	18	0,22	0,0

3.2.2 Mesures en laboratoire d'émissions de bitume

Depuis plus de dix ans, les fumées de bitume ont été étudiées par le biais de générateurs de fumées en laboratoire, parfois associés à l'étude de l'exposition des ouvriers sur les chantiers (routiers et de toiture). De façon générale, les générateurs prélèvent les fumées du bitume à l'aide de filtres (PTFE) et des résines (XAD-2) préconisés par la méthode NIOSH 5506 [NIOSH, 1998 b]. L'analyse par chromatographie en phase liquide (HPLC) est réalisée après l'extraction des HAP par acétonitrile. Les objectifs de l'utilisation des générateurs de fumées consistent à :

- tester les fumées engendrées par rapport aux fumées existantes dans les chantiers routiers, dans des conditions bien contrôlées ;
- tester l'influence du mode de génération des fumées sur la composition des fumées produites. Ce qui est réalisé en changeant le courant de l'air sur le bitume (soufflé au lieu d'être aspiré) et en changeant les conditions d'agitation existante ;
- déterminer les facteurs associés à la mise en œuvre à chaud de produits bitumineux qui influencent l'exposition des ouvriers aux composés solubles dans le benzène (dans le cadre d'un étude des fumées) et aux HAP présents dans les fumées du bitume ;
- valider un dispositif expérimental capable de produire des fumées de bitume à différentes concentrations.

□ Les générateurs des fumées existants

Selon la façon de produire de fumées, avec ou sans renouvellement du bitume chauffé, peuvent être classés en surfaciques et volumiques. Un ensemble de cinq générateurs de fumées du bitume est présenté dans le Tableau 1- 14.

Kurek [Kurek et al, 1997] a utilisé des bitumes avec des concentrations connues en composants dangereux (ou même sans composants dangereux). L'ambiance du chantier routier a été récréée en laboratoire dans une chambre avec des conditions contrôlées. Il est envisageable d'utiliser la même technique lors des essais d'études des fumées de l'enrobé bitumineux au laboratoire et/ou dans les centrales d'enrobage.

Bonnet [Bonnet et al, 2000] a évalué la capacité d'un nouveau système de génération de vapeur à fournir des atmosphères stables et reproductibles des fumées de bitume à une chambre d'inhalation. La représentativité des fumées produites à un niveau de concentration de $5 \text{ mg}/\text{m}^3$ a été analysée. Le générateur de fumées de Bonnet simule la situation trouvée sur chantier où un système ouvert de production de fumées rapidement entre en pseudo équilibre

avec l'air ambiant. Pour caler ses données, une validation des résultats a été réalisée pour Bonnet avec le générateur de fumées développé par Brandt. Les résultats ont montré des profils des HAP dans la matière soluble dans le benzène (MSB) similaires entre les deux bancs d'essai (générateurs), sur le même bitume et selon la température. Bonnet a conclu que les fumées engendrées peuvent être considérées comme représentatives de l'exposition des ouvriers pendant les travaux routiers.

Le système de Binet [Binet et al, 2002], enfin, est reproductible et les fumées de bitume prélevées de la chambre d'échantillonnage sont représentatives des fumées auxquelles les ouvriers sont exposés lors des opérations d'épandage d'enrobé bitumineux à chaud, en termes de profil de HAP et de distribution granulométrique de particules.

Les générateurs développés utilisent directement le bitume chaud pour produire des fumées. Le but est relier les fumées engendrées avec les émissions réelle dans les chantiers routiers (ou de toiture). Enfin, il est *a priori* plus simple travailler avec le bitume seul, il ne faut pas oublier que les fumées existantes sur les chantiers routiers sont issues des enrobés bitumineux chauds. Il peut donc exister des paramètres qui peuvent influencer les émissions mais qui ne sont pas exploitables par ces générateurs de fumées de bitume existants.

Tableau 1- 14 – Panorama des générateurs de fumées de bitume déjà développés

Type	Générateurs surfaciques (bitume en film mince)		Générateurs volumiques (bitume en masse)		
Référence	(1) Kurek et al, 1997	(2) Bonnet et al, 2000	(3) Kriech et al, 1992	(4) Brandt et Groot, 1999	(5) Binet et al, 2002
Objectifs	Tester le générateur de fumées par rapport les fumées des chantiers	Vérifier la représentativité des fumées	Sur les fumées engendrées : Tester l'influence du mode de génération sur leur composition Tester leur cancérogenèse	Déterminer les facteurs d'influence sur les fumées (MSB et HAP)	Tester le générateur de fumées à différentes concentrations
Quantité	150 g/min	24 g/min	6,5 kg	200 g	200 g
Type de prélèvement	Résine XAD-2 1 heure	Filtre + Résine XAD-2	Résine XAD-2	Filtre + Résine XAD-2	Filtre + Résine XAD-2
Durée	4h 44min		6 à 10h	6h	>6h
Flux d'air (l/min)		20	10	2	23
Renouvellement du bitume	Oui 150g/min	Oui	Non	Non	Non
Agitation tour/min	Non	Non	200	400	90
Température °C	155	200	232 et 316	160	170
Analyse	GC/MS, GC/FID et Fluorescence	GC/MS HPLC	GC/MS HPLC	HPLC	GC/MS
Conclusions	Générateur produit des fumées similaires aux chantiers	Générateur simule l'air ambiant des chantiers	Le mode de génération influence la composition des fumées ; 20% des fumées produites à haute température ont été cancérogènes	Seule la volatilité et la température ont une influence Relation logarithmique pour estimer les émissions de MSB (HAP)	Le générateur développé est reproductible à différentes concentrations de fumées
Schémas	The 'Schémas' row contains five detailed diagrams of the smoke generators described in the table above. From left to right: 1. Kurek et al: A schematic of a 'Heritage Fume Generator' showing a heated asphalt kettle, a fume box with a thin asphalt film on a heated plate, and a fume outlet to a hood. 2. Bonnet et al: A photograph of a 'Fume Box' setup. 3. Kriech et al: A photograph of a 'Glass Vessel' containing bitumen with a stirrer. 4. Brandt et Groot: A schematic of an 'Open Face Filter Cassette' showing a glass vessel with bitumen, a stirrer, and an adsorbent tube connected to a pump. 5. Binet et al: A complex schematic of a fume generator with a stirrer, temperature regulation probe, and various glass components. Dimensions are noted in mm.				

□ Bilan sur les prélèvements et analyse des HAP

La Figure 1- 18 synthétise la problématique existante pour les fumées émises par le bitume. En complément des HAP dans la phase particulaire, il faut étudier les composés en phase gazeuse, appelés semi-volatils, qui ne sont pas retenus par les filtres à particules. Par conséquent, sont nécessaires des tubes absorbants décrits dans la méthode NIOSH 5506 [NIOSH, 1998 b] afin de piéger ces HAP. Il faut retenir qu'à l'heure actuelle les limites d'exposition professionnelle pour les fumées du bitume sont exprimées en terme de matière particulaire totale (MPT), qui comprend la partie minérale des fumées. Cependant la partie la plus importante concerne l'exposition à la matière soluble dans le benzène (ce qui correspond à une partie de la MPT) et la teneur en HAP de cette matière soluble dans le benzène (MSB).

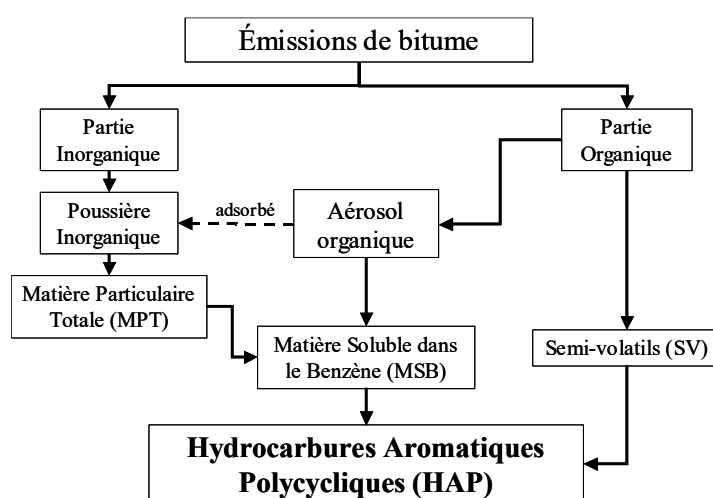


Figure 1- 18 – Parties organiques et minérales des émissions du bitume et leur relation avec les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

□ Connaissances sur les fumées du bitume générées en laboratoire

Les résultats de Kriech [Kriech et al, 1992] montrent que des petites modifications dans le protocole de génération de fumées engendrent des grosses variations dans le poids moléculaire des fumées produites. La modification du contrôle de la ventilation (air soufflé ou aspiré) conduit aux résultats suivants :

- une augmentation du poids moléculaire du condensât lorsque l'air est aspiré ou une baisse d'un facteur 10 lorsque l'air est soufflé ;
- une baisse des HAP de bas poids moléculaire, lorsque l'air est aspiré ou une augmentation d'un facteur 3 lorsque l'air est soufflé;
- une augmentation des HAP de haut poids moléculaire, lorsque l'air est aspiré ou une baisse d'un facteur 35 lorsque l'air est soufflé;
- une chute d'un facteur 100 en absence d'agitation la production de fumées.

Des échantillons de l'atmosphère de la chambre d'échantillonnage ont été rassemblés et analysés pour la détermination quantitative de : la matière particulaire totale (MPT), de la matière soluble, de la teneur en benzo[a]pyrene (B[a]P) des fumées, de tout autre HAP, et de l'évaluation de la distribution de dimension particulaire. Les résultats trouvés par Binet [Binet et al, 2002] pour des fumées à différentes concentrations sont décrits dans le Tableau 1- 15.

Tableau 1- 15 - Résultats analytiques de la matière particulaire totale (MPT), matière soluble dans le benzène (MSB) et Benzo[a]Pyrène (B[a]P) pour trois niveaux de concentration de fumées (5, 50 et 100 mg/m³) [Binet et al, 2002]

Concentrations fumées	MPT mg/m ³	MSB mg/m ³	B[a]P ng/m ³
	Valeur moyenne ± écart type		
5 mg/m ³	6,30 ± 0,22	4,6 ± 0,46	36,3 ± 3,21
50 mg/m ³	53,5 ± 2,72	42,7 ± 2,02	140 ± 15,6
100 mg/m ³	98,7 ± 6,12	82,4 ± 4,89	198 ± 50,4

La seule étude donnant une estimation des émissions issue du bitume a été celle de Brandt [Brandt et Groot, 1999]. Pour les fumées générées au laboratoire par Brandt [Brandt et Groot, 1999] le phénanthrène a été le plus important des HAP émis. Pour caractériser les bitumes, Brandt utilise leur volatilité, appelée Rec450, qui correspond au pourcentage de la masse du bitume dont le point d'ébullition est inférieur à 450 °C. Puisque la plupart des HAP cancérogènes se trouvent dans la fraction MSB, Brandt s'est concentré sur ces HAP. L'émission de composés HAP est exprimée par l'émission totale de composés solubles dans le benzène multipliée par la teneur en HAP dans la MSB :

$$\text{HAP}_{\text{émission}} = \text{MSB}_{\text{émission}} \times [\text{HAP}]_{\text{dans la MSB}} \quad (1 - 21)$$

Une régression linéaire multiple du logarithme du taux d'émission de fumées ($\text{BSM}_{\text{émission}}$ en mg de matière soluble dans le benzène par heure), de la volatilité du bitume et l'inverse de la température de génération de fumées (en Kelvin) donne expérimentalement la forme suivante :

$$\log \text{MSB}_{\text{émission}} = 0,126(\text{Rec450}) - 5082(1/T) + 10,86 \quad (\text{MSB}_{\text{émission}} \text{ en mg/h}) \quad (1 - 22).$$

La partie variable de l'équation est l'IF (indice de fumées) :

$$\text{IF} = 0,126(\text{Rec450}) - 5082(1/T) \quad (1 - 23)$$

Ces équations montrent que, dans la gamme de températures pour les applications routières (de 140 à 190 °C), le taux d'émission de fumées augmente d'un facteur de 2 chaque fois que la température augmente d'environ 12 °C. L'indice de fumées est bien corrélé avec les expositions individuelles mesurées lors de travaux routiers et sur toiture et il peut être utilisé pour estimer les expositions individuelles moyennes lors de ces activités.

3.2.3 Polluants atmosphériques émis par les enrobés bitumineux

Les générateurs de fumées de bitume ont été considérés, dans la plupart des cas, comme représentatifs du repandage des enrobés. Cependant les paramètres disponibles qui peuvent influencer les émissions du bitume ne sont pas forcément les mêmes pour des enrobés bitumineux. La bibliographie a donc été complétée par la recherche de travaux expérimentaux sur les émissions des enrobés.

□ Composition des fumées d'enrobés

Les enrobés sont considérés comme plus complexes car constitués des plusieurs composants organiques et minéraux. La composition chimique et les propriétés physiques exactes des émissions des enrobés dépendent de l'origine des bitumes, aussi bien que de leur température et des conditions associées à leur production. La Figure 1- 19 résume la composition des émissions.

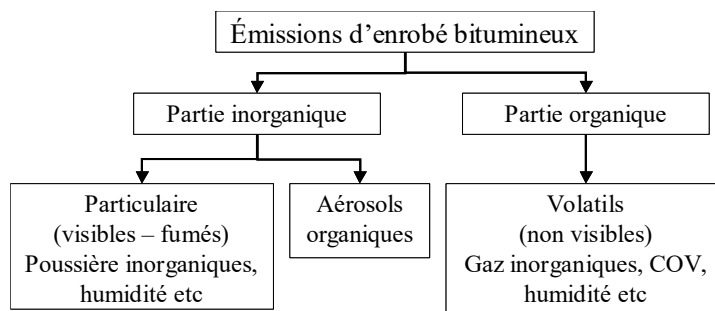


Figure 1- 19 – Contenu des émissions des enrobés bitumineux

En 1999, Tang [Tang et al, 1999] a réalisé une synthèse bibliographique sur les fumées de l'enrobé. Le terme « émissions d'enrobé » désigne les substances présentes dans l'espace d'air affecté par la manipulation des matériaux bitumineux. Les mesures typiques incluent la détermination du point d'ébullition et la granulométrie des particules émises qui a été utilisée comme paramètre pour classer les émissions des enrobés en inhalables, thoraciques ou respirables. Les fumées sont constituées de deux phases : vapeur et particulaire. Selon Tang il existe peu d'études chimiques ou biologiques sur les effets de la granulométrie des particules constituant les fumées des enrobés sur la santé. Le Tableau 1- 16 montre l'incidence de la taille ces particules :

Tableau 1- 16 – Distribution de la taille de particules (% de masse) de fumées mesurées dans les chantiers et laboratoires d'après [Tang et al, 1999]

% de masse	Type de mesure		
Taille de la particule	Raffinerie (cuves de bitume)	Étanchéité de toit (bitume)	Générateur de fumées (bitume) [Brandt et Groot, 1999]
< 12,5 μm	99,1	96	99,5
< 3,8 μm	82	68	88
< 1,2 μm	5	42	67

La valeur du point d'ébullition donne une indication de la présence de composés aromatiques polycycliques (CAP) et d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les fumées d'enrobés. La Figure 1- 20 montre une allure type de l'évolution du poids relatif des substances émises en fonction du point d'ébullition : la phase gazeuse et la phase particulaire y sont distinguées. L'existence des deux courbes indique la présence des semi-volatils dans les fumées.

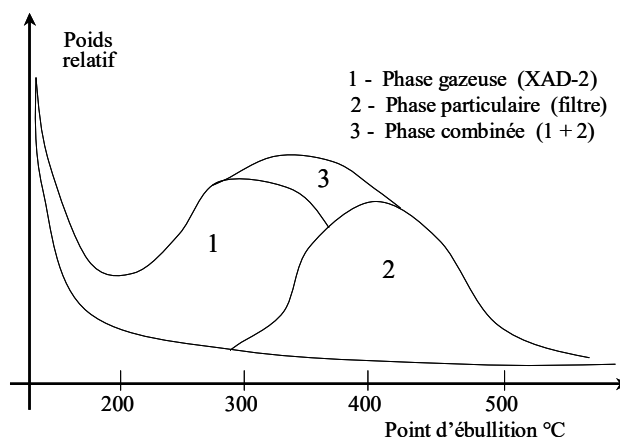


Figure 1- 20 – Point d'ébullition typique des fumées d'enrobés d'après [Tang et al, 1999]

Les caractéristiques chimiques des fumées d'enrobés sont aussi évaluées. Comme les fumées sont constituées des particules et de vapeurs, il est extrêmement compliqué de connaître leur composition. De plus, lorsqu'il s'agit de prélèvements réalisés sur chantiers, ceux ci peuvent contenir des composants issus d'autres sources que celle de l'enrobé bitumineux. Dans la pratique, il est impossible de déterminer pour les composés existant dans les fumées des enrobés bitumineux ; une quantité limitée de composants (organiques et minéraux) est donc sélectionnée pour l'analyse. Le Tableau 1- 17 montre les composants chimiques identifiés dans les fumées des enrobés bitumineux dans de travaux publiés dans la littérature.

Tableau 1- 17 – Exemples des composants chimiques identifiés dans les fumées des enrobés bitumineux d'après [Tang et al, 1999]

<i>Classe de composants</i>	<i>Sous-classes et composants typiques</i>
Minéraux	
Gaz minéraux	H ₂ S, SO ₂
Métaux	Nickel, vanadium, cadmium, plomb
Organiques	
Hydrocarbures	Aliphatiques saturés C ₁₀ -C ₄₀ et non saturés C ₁₀ -C ₂₂ Aromatiques : benzène, toluène, xylène
HAP	16 HAP prioritaires de la liste USA (EPA)
Composants soufrés	HAP soufrés
Acide carboxylique	Acides aliphatiques saturés et non saturés
Composants carbonyle	Aldéhydes aliphatiques : formaldéhydes Aldéhydes aromatiques : benzol aldéhydes
Composants halogènes	Bi phényles polychlorés (PCBs)
Amines	Polyamines

□ Connaissances sur les émissions de l'enrobé lors du répandage

Depuis des années les particules totales sont étudiées. Cependant les particules ne contiennent que la partie minérale (poussière) ; elles ne donnent pas d'indications sur les divers composés chimiques présents. La matière soluble dans le benzène (MSB) est également un indicateur typique de l'exposition personnelle des ouvriers aux fumées des enrobés dans sa partie organique. La MSB est à mettre en relation avec l'exposition aux HAP dans les émissions des enrobés. Le Tableau 1- 18 montre les concentrations de MPT et de MSB des émissions du bitume obtenues à partir de données collectées sur chantiers d'après Tang [Tang et al, 1999]. Parmi les composés aromatiques polycycliques, le benzo(a)pyrène est comme considéré un indicateur à examiner au prioritaire à cause de son caractère potentiellement dangereux pour la santé [Niemeier et al, 1988]. Toutefois, la somme totale des HAP détectés est souvent préférée comme indicateur des émissions des enrobés bitumineux.

Tableau 1- 18 - Concentration de MPT et de MSB des émissions du bitume dans les chantiers d'après [Tang et al, 1999]

<i>Source d'exposition</i>	<i>MSB (mg/m³)</i>	<i>MPT (mg/m³)</i>
Raffinage du pétrole	0,11 – 13	0,02 – 14
Chantier routier	ND – 0,77	ND – 15,1
Centrale d'enrobage	0,3 – 1,7	ND – 7,2
Etanchéité de toiture	ND – 6,88	0,04 – 12,56

ND = non détecté

Des travaux précédents [Jullien et al, 2006b] de mesures d'émissions ont été réalisés par le LCPC sur des mini-planches en utilisant des enrobés prélevés en sortie de trémie et compactés manuellement dans un gabarit. Pour caractériser les émissions d'enrobés, après répandage, une chambre à flux constituée d'un demi fût de 200 l coupé dans sa longueur (Figure 1- 21), de section 0,87 m (longueur) par 0,55 m (diamètre) a été réalisée. Ce demi-cylindre métallique, disposait d'une sortie destinée à être raccordée à un système de ventilation forcée pour la mesure de COT en continu et une ouverture destinée à raccorder les prises d'échantillons pour les prélèvements de HAP destinés à une analyse de laboratoire. La surface totale d'émission caractérisée est égale à la section longitudinale de la chambre à flux. Les COT sont mesurés en continu sous le capteur, sans réalimentation forcée en air. Les premiers essais ont été réalisés selon le schéma de principe présenté en Figure 1- 21, pour obtenir un ordre de grandeur avec une dilution minimale des gaz et rejets. La prise de ventilation forcée a été soit utilisée, soit obturée. Ces essais ont mis en évidence la difficulté à réaliser des prélèvements corrects des HAP qui sont émis sous forme de traces, alors que la mesure des COT n'a jamais posé de problème, un signal étant toujours obtenu..

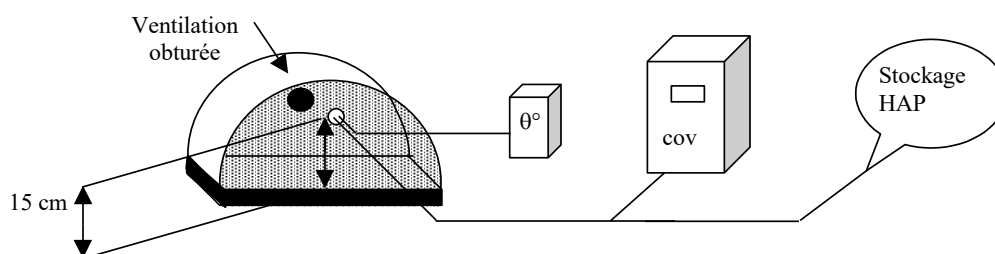


Figure 1- 21 Principe des prélèvements avec le capteur sans ventilation d'air [Jullien et al, 2006b]

L'allure de l'évolution des courbes de COT en fonction du temps, et correspondant au refroidissement de l'enrobé est montrée sur la Figure 1-22 à titre indicatif. La température de l'enrobé de cette mini planche était d'environ 100 °C en début de mesure et de 70 °C après 30 minutes. Les évolutions de la concentration en COT et de la température des gaz mesurées sous le capteur ont été mesurées toutes les minutes. Ces essais nous ont appris que la teneur en COT augmente pendant environ les 5 premières minutes, ce qui correspond à la saturation de l'air contenu sous le capteur, et chute après. Pour la température des gaz tracée sur la Figure 1- 22, qui est le reflet d'un remplissage du capteur avec les émanations gazeuses chaudes de l'enrobé, la montée en température durait environ 10 minutes.

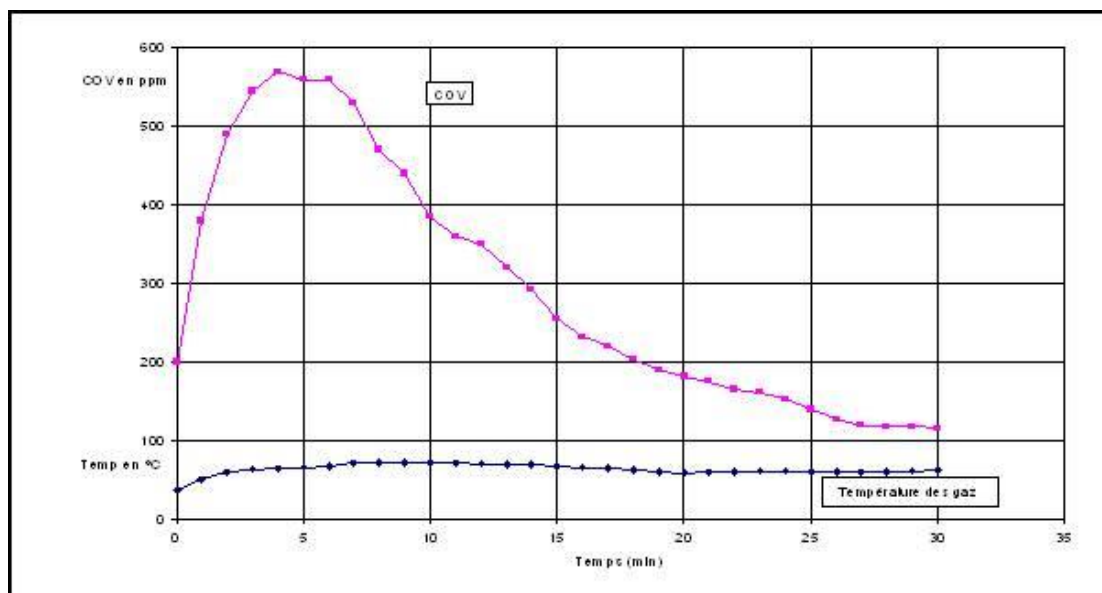


Figure 1- 22 Concentration en COT et température mesurées sans ventilation d'air d'après [Jullien et al, 2006b]

Ce sont ces mesures de COT antérieures, réalisées sur l'enrobé lors de son refroidissement qui ont servi de mesures préliminaires pour aborder l'étude des émissions avec le malaxeur de laboratoire dans le cadre de la thèse.

3.3 Polluants atmosphériques émis par la combustion

Une combustion complète émet principalement du dioxyde de carbone et de la vapeur d'eau et dans de plus faibles quantités les composés suivants : des oxydes d'azote, du dioxyde soufre, des cendres et des éléments traces comportant des métaux lourds notamment. Notons également que les oxydes d'azotes proviennent d'une oxydation de l'azote de l'air de combustion. Les produits supplémentaires émis lors d'une combustion incomplète (annexe 2.1) sont :

- le monoxyde de carbone,
- les particules,
- les composés organiques,
- d'autres composés tels que les aldéhydes, les dioxines et furanes, les hydrocarbures aromatiques polycycliques.

La formation de dioxines et furannes est favorisée par une combustion incomplète. Mais, d'autres paramètres tels que la teneur en chlore du combustible, sa charge en métaux lourds, en cuivre notamment qui catalyse la formation de ces polluants et le temps de séjour de fumées dans la plage de température (comprise entre 250 et 350 °C) atteinte en général sur le système de dépoussiérage des fumées, jouent également un rôle déterminant dans une centrale d'enrobage. Les mécanismes chimiques de formation des polluants sont détaillés ci-après.

Mécanismes de formation du NO : Les études concernant la formation des oxydes d'azote ont montré que trois mécanismes différents sont responsables de la formation de ces polluants [Xie et al, 1996].

a. Le NO thermique

Il résulte de l'oxydation directe de l'azote moléculaire contenu dans le comburant et a été décrit par Zeldovich [Zeldovich, 1946]. Il est l'aboutissement de deux réactions :



Ce qui donne comme réaction globale :



Ces réactions sont lentes et nécessitent des températures élevées ainsi que des temps de séjours longs et sont généralement considérées comme irréversibles. Dans le cas de milieux riches ou proches de la stœchiométrie il est possible d'ajouter une troisième réaction :



b. Le NO précoce

Ce mécanisme est responsable de la formation du NO dans le front de flamme. Cette réaction rapide résulte de la réaction entre l'azote moléculaire et des radicaux hydrocarbonés du type :



Ou bien :



Il existe de nombreuses autres réactions possibles, ce qui engendre des difficultés à comprendre et estimer ce mécanisme de formation du NO. L'azote moléculaire ainsi produit va alors être transformé en NO par de nombreuses réactions comme l'oxydation des radicaux HCN et NH, ou bien par les mécanismes responsables de la formation du NO thermique.

c. Le NO combustible

Ce mécanisme, comme son nom le sous-entend, est responsable de la formation des NO_x à partir de l'azote contenu dans le combustible (gaz naturel) et peut pour certains combustibles (charbons ou fuels lourds) être responsable d'une grande partie de la formation de ces polluants. Ce mécanisme dépendant principalement de la teneur en azote du combustible est mal connu car il résulte des nombreuses réactions décomposant les grosses molécules contenant de l'azote en de plus petites qui forment ensuite les NO_x . Dans un réacteur, la formation de NO_x est liée à la température du gaz de combustion et au temps de résidence [Farias et Ngendakumana, 1997].

Mécanismes de formation des HAP :

Les flammes de méthane (CH_4), d'acétylène (C_2H_2), d'éthylène (C_2H_4) et d'éthane (C_2H_6) ont fait l'objet d'un très grand nombre de recherches afin d'établir le schéma réactionnel de formation des différents hydrocarbures. Toutes ces analyses tentent de comprendre le cheminement des formations des espèces à partir du combustible initial jusqu'au benzène, aux hydrocarbures aromatiques polycycliques, voire à la suie. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont formés dans la plupart des cas de systèmes de combustion en milieu riche et dans les flammes de diffusion ; ils jouent un rôle important dans le processus de la formation de suie. Après de multiples recherches, tant d'un point de vue physique que chimique, il a été établi que la suie est composée de particules de carbone et de HAP. La formation du premier cycle aromatique et des hydrocarbures

aromatiques polycycliques est proposée par deux voies réactionnelles principales. La voie en $C_4 + C_2$: ces analyses ont été réalisées sur des flammes pré mélangées d'acétylène et d'éthylène. Des paramètres comme la pression, la température et la vitesse des réactions ont fait partie du modèle. La voie $C_3 + C_3$ est basée sur la modélisation des flammes pré mélangées d'acétylène. D'autres voies ont été analysées, comme les flammes riches prémélangées de $C_2H_2/O_2/Ar$, à basse pression, les flammes riches prémélangées d'acétylène et d'oxygène, à basse pression et à pression atmosphérique.

La modélisation des flammes a indiqué que la formation du premier cycle aromatique provient principalement de la voie C_4+C_2 ; dans la zone des gaz brûlés, la voie en C_3+C_3 est dominante. Dans tous les cas, les voies de production du premier cycle aromatique dépendent des conditions de pression et de température de la flamme. En effet, différentes voies réactionnelles impliquant $n-C_4H_3$, $n-C_4H_5$ et les espèces en C_3 ont été identifiées comme les principaux processus de production du benzène et du radical phényle, avec des contributions respectives dépendant des conditions expérimentales, et de la température de la flamme.

En relation avec la formation des hydrocarbures aromatiques polycycliques et de la suie, le benzène, le radical phényle, le radical cyclopentadiényle (C_5H_5) jouent un rôle important dans la formation des composés plus lourds, lors de la combustion des mélanges riches en hydrocarbures. Après de nombreux travaux, deux voies réactionnelles sont proposées dans la littérature.

La première fait intervenir les radicaux C_5H_5 qui permettent, après réarrangement, l'addition d'un nouveau cycle aromatique sur le composé initial. La seconde voie de formation des HAP s'effectue par abstraction de l'hydrogène atomique et addition de l'acétylène sur un cycle aromatique, le mécanisme est couramment nommé « HACA » (Hydrogen Abstraction – Carbon Addition). Notons que l'addition d'un ou de deux cycles aromatiques permet également la formation de composés poly aromatiques. Des schémas réactionnels des trois principaux processus de formation des HAP, voie en C_5 , mécanisme HACA et réaction entre cycles aromatiques sont présentés (Figure 1- 23).

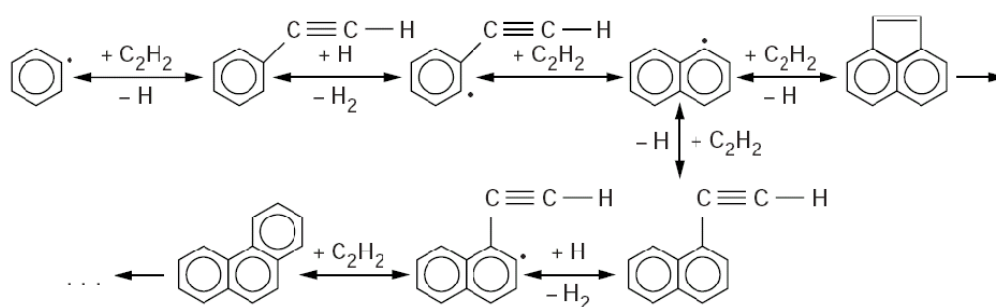


Figure 1- 23 – Schéma réactionnel pour la formation des composés aromatiques polycycliques, avec mécanisme HACA d'après [Dias et Vandooren, 2004]

Mécanisme de formation et destruction des suies :

Les particules de suie sont en majorité composées de carbone (environ 90 %). On peut y trouver de l'hydrogène (environ 10 %), de l'oxygène et de l'azote dans des proportions plus faibles [Haynes et Wagner, 1981 ; Wagner, 1978]. Les suies sont issues de la combustion incomplète des hydrocarbures et de la condensation d'espèces gazeuses. Leur densité est plus faible que celle du graphite ($2,25 \text{ g/cm}^3$) et comprise entre $1,8$ et 2 g/cm^3 [Garo, 1984]. Les suies rencontrées dans les flammes représentent une faible part du volume du mélange

considéré. A titre d'exemple, l'ordre de grandeur de la fraction volumique des suies est de 10^{-7} soit 10^{-7} m^3 de suies pour 1 m^3 de gaz.

Les particules de suie vont évoluer durant leur séjour dans la flamme. Cette évolution est due à différents processus qui ont fait l'objet de nombreuses études. Pour retracer l'évolution des suies au cours de leur existence, on peut distinguer différents phénomènes : la nucléation des premières particules, la croissance de surface des particules, la coagulation, l'agglomération ainsi que l'oxydation.

- a. La nucléation : C'est le processus qui correspond à la formation des premières particules à partir de la phase gazeuse. Les molécules entrant en jeu sont les hydrocarbures insaturés comme l'acétylène mais aussi les HAP [Haynes et Wagner, 1981]. Cette phase correspond à la transformation d'un système moléculaire en un système particulaire (diamètre des particules est de l'ordre du nanomètre).
- b. La croissance de surface : La phase de nucléation fait apparaître un très grand nombre de particules mais elles ne représentent qu'une faible part de la masse finale de suies produites. D'autres processus interviennent donc pour transformer les hydrocarbures gazeux en suie. Certaines molécules vont réagir au niveau de la surface des suies. Une fois encore, on retrouve ici l'acétylène mais aussi les HAP et le benzène. Ce phénomène appelé croissance de surface est un processus hétérogène où la majeure partie de la masse totale des suies sera produite [Garo, 1984]. Pendant cette phase, les particules grossissent et vont constituer des particules primaires dont la forme est proche de celle d'une sphère [Rogaume et al, 2000].
- c. La coagulation et l'agglomération : Ces deux phénomènes sont dus aux collisions des particules soumises au mouvement brownien. Quand les particules sont 'jeunes' et la croissance de surface rapide, deux particules qui se rencontrent peuvent fusionner car les particules formées sont mal organisées et leur structure interne mobile : c'est le processus de coagulation (coalescence). Quand elles sont 'âgées', les particules vont se coller sans fusionner car le volume à réorganiser est important et la structure interne plus rigide : c'est le processus d'agglomération (agrégation). La transition entre ces deux processus a lieu quand les particules primaires sont de l'ordre de 10 nm. Contrairement à la nucléation et à la croissance de surface, ces processus physiques se font sans accroissement de masse de suie. Ils conduisent à une distribution en taille des particules de suie et à l'apparition d'agrégats de suie dont la morphologie est complexe.
- d. L'oxydation : Quand les particules de suie sont transportées dans les zones où de l'oxygène est présent, elles peuvent être oxydées. Ce processus peut avoir lieu en même temps que les processus de formation et on assiste alors à une compétition entre production et oxydation des particules. Les principales espèces intervenant dans le processus d'oxydation sont l'oxygène mais également le radical OH. Ces molécules peuvent réagir avec les suies au niveau de leur surface en arrachant des atomes de carbone. Elles peuvent aussi casser les liaisons entre sphérules primaires ou chaînes. La première action a pour conséquence de diminuer la masse des suies sans changer le nombre de particules, la deuxième augmente celui-ci tout en diminuant leur masse.

De plus amples détails sur ces processus peuvent être trouvés dans la littérature [Bockorn, 1994 ; Haudiquert-Talbaut, 1996 ; Kennedy, 1997].

3.4 Polluants atmosphériques émis par les centrales d'enrobage

3.4.1 Sources d'émission canalisées et obtention de données de sites

Les principaux éléments recherchés parmi les rejets à l'atmosphère par les cheminées des centrales d'enrobage sont l'oxygène, le monoxyde de carbone, le dioxyde de carbone, les oxydes d'azote, les Composés Organiques Totaux (COT) dont les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) et les poussières (parfois la suie et de la vapeur d'eau). La maîtrise des concentrations d'oxygène est fondamentale dans tous les processus de combustion, y compris pour exprimer les émissions polluantes.

Les émissions dans les cheminées ont deux origines différentes [CITEPA, 2005] : les émissions liées à la combustion d'énergie fossile et les émissions liées à d'autres phénomènes se rapportant à l'emploi de matières premières ou à des réactions chimiques.

Lors de l'enrobage en centrale, et selon le type de procédé utilisé, les émissions qui ne sont pas dues à la combustion, sont selon le cas issues de l'enrobé bitumineux. C'est effectivement le cas pour une centrale type tambour sécheur enrobeur (TSE) et, a priori, on ne peut pas connaître les proportions existantes entre chacune de ces sources. La Figure 1- 24 montre un schéma résumant l'origine des émissions canalisées dans une centrale d'enrobage.

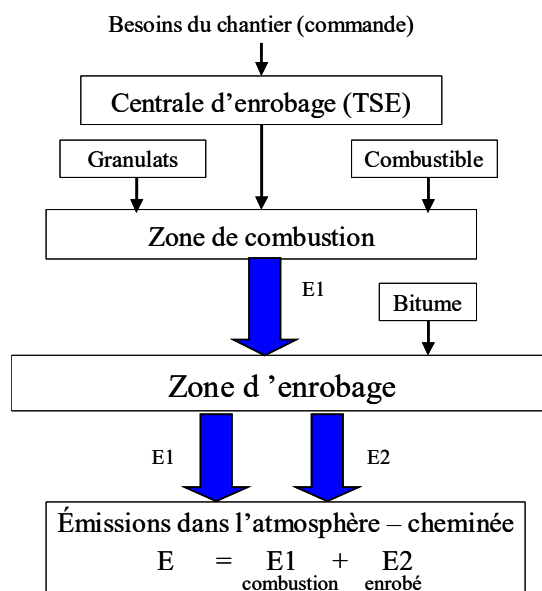


Figure 1- 24 – Schéma d'origine des émissions d'une centrale d'enrobage (type TSE)

Pour la collecte de données d'émissions à l'air sur des installations industrielles, quatre méthodes sont utilisables : la mesure, le bilan, la corrélation et les facteurs d'émission. Chacune possède des avantages, des inconvénients et des limites d'utilisation [Fontelle, 2005] :

- La méthode de mesure consiste à mesurer au moyen d'une chaîne de mesure appropriée la concentration de diverses substances dans l'effluent ou dans le panache rejeté. L'application la plus répandue est celle de la surveillance des sources industrielles canalisées fixes (typiquement en cheminée) dans le cadre des dispositions réglementaires en vigueur. La mesure des rejets fournit une information très précise sur les variations temporelles et sur les émissions des substances observées en fonction des conditions opératoires. Cependant la mise en œuvre des chaînes de mesure d'émission est complexe et onéreuse en coûts d'investissement et de fonctionnement ;

- La méthode du bilan part du principe de la conservation de la matière où les émissions de certaines substances telles que le soufre et le chlore, certains métaux lourds, peuvent être déterminés par bilan matière. En pratique, cette méthode est très utilisée dans les cas simples comme celui d'une chaudière où il suffit de déterminer la quantité de combustible consommée au cours d'un intervalle de temps, de prélever un échantillon de combustible et de procéder à l'analyse de la teneur du constituant étudié, d'en déduire la quantité de constituants entrant dans la chaudière au cours du temps, de déterminer de manière similaire par échantillonnage et analyse la rétention éventuelle dans l'installation et calculer l'émission au moyen d'une formule directe ;
- La méthode de corrélation consiste à établir une corrélation entre, d'une part, la quantité de polluants rejetée dans l'atmosphère et, d'autre part, des paramètres caractéristiques du procédé considéré. L'avantage réside dans le fait que ces paramètres sont déterminés pour conduire le procédé et n'engendreront que pas ou peu de surcoût environnemental. En revanche, l'établissement de la relation nécessite des campagnes de mesures préliminaires assez longues, onéreuses, afin d'obtenir un résultat statistiquement fiable. Il convient de vérifier périodiquement la validité de la relation ;
- La détermination de facteurs d'émission (F.E.) est une méthode qui consiste à faire appel à une fonction préétablie caractéristique de l'émission d'une substance donnée et de variables descriptives de la source considérée. Elle ne diffère pas fondamentalement de la méthode précédente. Dans ce cas on utilise des données disponibles, publiées ou non, se rapportant de manière plus ou moins pertinente au cas considéré. C'est une méthode qui a donné lieu aux USA à la production d'un rapport volumineux concernant les centrales d'enrobage, toutes technologies confondues [EPA, 2004].

3.4.2 Facteurs d'émission et qualité des données

Les facteurs d'émission sont publiés par l'Agence de Protection de l'Environnement des Etats Unis (EPA) dans son rapport AP-42 [EPA, 2004] relatif aux centrales d'enrobage depuis 1972. Ce rapport est souvent actualisé avec de nouvelles sources d'émissions ou par augmentation de la base de données déjà existante. Il ne prend pas en compte les formules ou le type de bitume utilisé car le niveau de détails fourni n'est pas suffisant. D'une façon générale, dans le cas des centrales d'enrobage, les facteurs d'émission doivent inclure les estimations des émissions calculées comme suit :

$$E = \frac{m_0}{M} \quad (1 - 30)$$

- Où m_0 est la quantité de polluant émis, en kg ;
- M est la quantité d'enrobé fabriqué, en tonnes.

Des tableaux, comportant les facteurs d'émission moyen, minimum et maximum, sont classés par l'EPA selon le type d'équipement de contrôle des émissions, le type de combustible brûlé, le pourcentage de recyclés utilisés, la quantité d'essais réalisés et la qualité des données. Dans ses rapports bruts utilisés pour former une base de données valable pour être utilisée pour calculer des facteurs d'émission, l'EPA examine de façon qualitative la quantité et la qualité de l'information contenue, puis propose le classement suivant, qui est assez peu explicite :

- Données type A - des essais multiples ont été exécutés pour la même source en utilisant une méthodologie définie et ils sont indiqués avec assez de détail pour être validés ;
- Données type B - des essais ont été réalisés par une méthodologie généralement indiquée, mais il manque des détails pour permettre une validation ;
- Données type C – des essais ont été basés sur une méthodologie non décrite ou nouvelle ou il manque une quantité significative de données de fond ;
- Données type D - des essais ont été effectués d'après une méthode jugée non validable, mais les résultats peuvent fournir quand-même une valeur d'ordre de grandeur des émissions de la source considéré.

Le classement de données effectué par l'EPA porte sur la méthodologie d'obtention des données. Les données utilisées sont à la fois obtenues directement par l'EPA ou à la fois fournies par des partenaires industriels. Après l'évaluation des données, la qualité des facteurs d'émission est évaluée par l'EPA en utilisant les critères généraux suivants, qui portent pour une large part sur le nombre de centrales différentes pour lesquelles les données ont été recueillies :

- Facteur d'émission qualité A (Excellent) : Développé principalement à partir des données de type A et B évaluées à partir d'un nombre important d'équipements industriels choisis. La catégorie de sources est suffisamment spécifique pour que sa variabilité puisse être réduite au minimum ;
- Facteur d'émission qualité B (au-dessus de la moyenne) : Développé principalement à partir des données type A et B évaluées à partir d'un nombre modéré d'équipements. Il n'est pas dit ici si les équipements examinés représentent un échantillon aléatoire de l'industrie ou pas. Comme dans l'estimation A, la catégorie de source est assez spécifique de sorte que la variabilité des sources puisse être réduite au minimum ;
- Facteur d'émission qualité C (Moyenne): Développé principalement à partir des données de type A, B et C évalués à partir d'un nombre raisonnable d'équipements. Les équipements examinés représentent *a priori* un échantillon aléatoire de l'industrie ;
- Facteur d'émission qualité D (au-dessous de la moyenne) : Le facteur d'émission a été développé principalement à partir des données de type A, B et C évaluées à partir d'un nombre restreint d'équipements. Il semble que dans ce cas les équipements testés ne représentent pas un échantillon aléatoire ajouté à une variabilité de la population des catégories de sources. Des limitations sur l'utilisation du facteur d'émission sont notées dans le tableau des facteurs d'émission ;
- Facteur d'émission qualité E (Pauvres) : Le facteur d'émission a été développé à partir des données type C et D comme dans le cas précédent. Les équipements examinés ne représentent pas un échantillon aléatoire de l'industrie et il peut également y avoir une variabilité de la population des catégories de sources. Des limitations sur l'utilisation de ces facteurs sont également notées.

Compte tenu du nombre très conséquent des données sur les facteurs d'émission existants, nous les avons synthétisés :

i) Premièrement par rapport aux systèmes de contrôles d'émission, les données prises en compte sont issues des centrales équipées de filtres à manches.

ii) Deuxièmement, le combustible utilisé par les centrales (gaz naturel) et la qualité du facteur d'émission (qualité A) ont été privilégiés. Enfin, pour les polluants qui nous intéressent (CO₂, CO, CH₄, NO_x, SO₂, COT et le benzo(a)pyrène (choisi parmi les HAP)), des valeurs moyennes des facteurs d'émission sont présentées dans les Tableau 1- 19 (centrales d'enrobage de type TSE) et Tableau 1- 20 (centrales d'enrobage de type discontinu).

Tableau 1- 19 – Facteurs d'émissions – centrale type TSE d'après [EPA, 2004]

Polluant	Facteurs d'émission – combustible gaz naturel			
	Nombre total d'essais	valeur mini (kg/tonne d'enrobé)	valeur maxi (kg/tonne d'enrobé)	valeur moyenne (kg/tonne d'enrobé)
CO ₂	38	9,66	13,08	11,35
NO _x	6	1,4.10 ⁻⁰²	6,5.10 ⁻⁰²	2,5.10 ⁻⁰²
CO	5	2,1.10 ⁻⁰²	4,4.10 ⁻⁰²	2,8.10 ⁻⁰²
SO ₂	5	0,082.10 ⁻⁰²	0,47.10 ⁻⁰²	0,240.10 ⁻⁰²
COT	6	0,085.10 ⁻⁰²	0,70.10 ⁻⁰²	0,37.10 ⁻⁰²
CH ₄	2	0,176.10 ⁻⁰²	0,43.10 ⁻⁰²	0,203.10 ⁻⁰²
Benzo(a)pyrène	3	1,70.10 ⁻⁰⁹	1,10.10 ⁻⁰⁸	4,90.10 ⁻⁰⁹

Il n'y a pas de différenciation entre les types de centrales TSE (équicourant ou contre-courant)

Tableau 1- 20 – Facteurs d'émissions – centrale type discontinue d'après [EPA, 2004]

Polluant	Facteurs d'émission – combustible gaz naturel			
	Nombre total d'essais	valeur mini (kg/tonne d'enrobé)	valeur maxi (kg/tonne d'enrobé)	valeur moyenne (kg/tonne d'enrobé)
CO ₂	185	17,23	21,07	19,13
NO _x	37	2,52.10 ⁻⁰²	3,77.10 ⁻⁰²	3,06.10 ⁻⁰²
CO	35	5,50.10 ⁻⁰²	8,98.10 ⁻⁰²	7,43.10 ⁻⁰²
SO ₂	34	2,05.10 ⁻⁰²	3,42.10 ⁻⁰²	2,65.10 ⁻⁰²
COT	29	0,85.10 ⁻⁰²	1,59.10 ⁻⁰²	1,14.10 ⁻⁰²
CH ₄	16	0,237.10 ⁻⁰²	1,09.10 ⁻⁰²	0,605.10 ⁻⁰²
Benzo(a)pyrène	3	1,30.10 ⁻¹⁰	1,80.10 ⁻¹⁰	1,60.10 ⁻¹⁰

Une analyse des données EPA montre que les facteurs d'émission (données par tonnage d'enrobé fabriqué) sont plus faibles pour les centrales d'enrobage continue de type TSE que pour les centrales de type discontinu, à l'exception du NO_x et du benzo(a)pyrène. Dans le cas des NO_x, bien que du mme ordre de grandeur les valeurs moyennes sont plus basses pour la centrale de type TSE. Par contre, dans le cas du benzo(a)pyrène, les centrales d'enrobage de type TSE engendrent environ 30 fois plus d'émissions que les centrales d'enrobage de type discontinu. La différence significative trouvée pour le benzo(a)pyrène peut être attribuée à la présence de l'enrobé bitumineux en contact direct avec les gaz de combustion dans le cas du procédé TSE.

3.4.3 Incidence des réglages sur les émissions

Farias [Farias et Ngendakumana, 1997] a étudié les émissions de CO, NO et de suie sur plusieurs chaudières et brûleurs (annexe 2.2) fonctionnant avec du fuel lourd en considérant : l'excès d'air et la puissance utile du brûleur. D'une façon générale les tendances

d'émission trouvées confirment les difficultés d'une analyse globale du procédé et le poids du rapport air/combustible. Cette étude a été basée sur des caractéristiques du spectre de la flamme réalisées par un spectromètre placé en aval de la sortie du brûleur. Le spectre typique trouvé montre deux bandes principales dues aux radicaux CH et C₂ reliées en continu aux émissions de suie et de CO. Ces radicaux sont le premier stade des principales réactions en chaîne vis-à-vis de la formation des polluants et donc ils peuvent être utilisés comme indicateurs de la qualité du rapport air/combustible. En parallèle, des mesures de NO, CO et suie, considérés comme les principaux polluants issus de la combustion, ont été réalisées en cheminée (Figure 1-25).

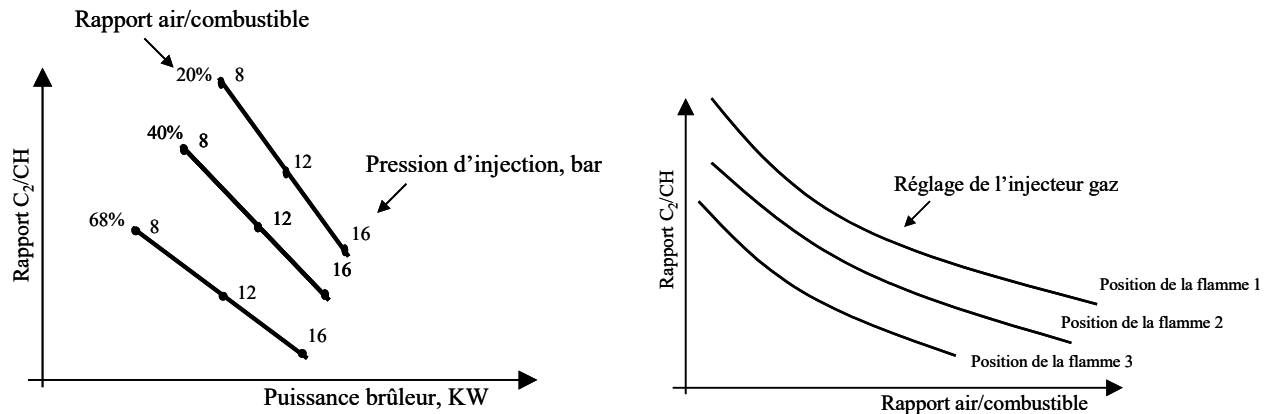


Figure 1- 25 - Courbes caractéristiques de tendances de formation de C₂ et CH en fours et chaudières en fonction de la puissance du brûleur et du rapport air/combustible [Farias et Ngendakumana, 1997]

Les résultats expérimentaux ont montré une forte relation entre l'émission du rapport C₂/CH et la richesse du rapport air/combustible. Sur ces radicaux, le CH semble être le meilleur traceur par rapport à la flamme et joue aussi un rôle important par rapport aux mécanismes instantanés de formation de NO (Figure 1-26).

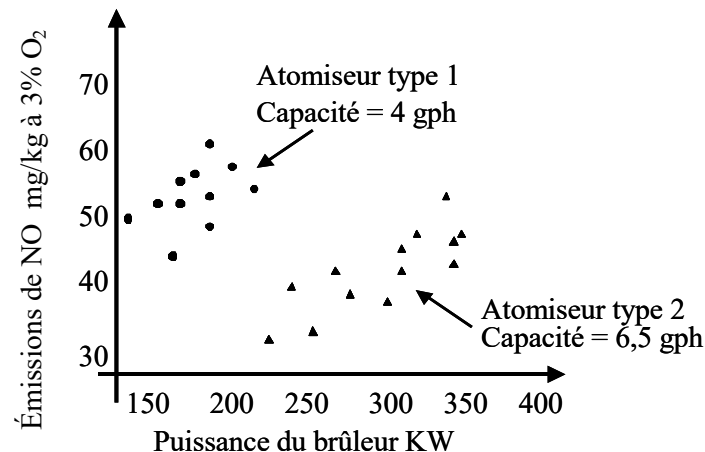


Figure 1- 26 - Points caractéristiques de tendances de formation de NO dans des fours et chaudières en fonction de la puissance du brûleur [Farias et Ngendakumana, 1997]

Les études menées par Farias [Farias et Ngendakumana, 1997] ont montré ainsi l'importance de maîtriser les paramètres qui ont une influence sur le mélange air/combustible parce qu'ils dominent largement la production de suie et de NO d'une chaudière. Il s'agit de la pression d'injection de combustible, de la puissance du brûleur et du rapport air/combustible. Par contre, Farias précise également que les émissions de CO sont perturbées seulement hors de la plage de fonctionnement du brûleur. Enfin, les résultats ont confirmé l'importance de la zone frontale de la flamme comme le lieu de formation de suie et de NO.

3.5 Réglementation dans différents pays du monde relative aux centrales d'enrobage et aux sources de polluants

3.5.1 Réglementation française et européenne

L'Arrêté du 2 février 1998 fixe les prescriptions applicables aux prélèvements et à la consommation d'eau ainsi qu'aux émissions de toute nature des installations classées soumises à autorisation. Les centrales d'enrobage sont des installations soumises à l'autorisation et donc classées par cet arrêté. Différents articles de cet arrêté sont rappelés ci-après. Dans ses dispositions générales, l'article 2 préconise que « les installations sont conçues de manière à limiter les émissions polluantes dans l'environnement, notamment par la mise en œuvre de technologies propres, le développement de techniques de valorisation, la collecte sélective et le traitement des effluents et déchets en fonction de leurs caractéristiques, et la réduction des quantités rejetées ».

Par rapport aux valeurs limites d'émissions, l'article 21 cite que « pour les effluents gazeux, les valeurs limites s'imposent à des mesures, prélèvements et analyses moyennes réalisées sur une durée qui est fonction des caractéristiques de l'appareil et du polluant et voisine d'une demi-heure. Lorsque la valeur limite est exprimée en flux spécifique, ce flux est calculé, sauf dispositions contraires, à partir d'une production *journalière*. Dans le cas d'une auto surveillance permanente (au moins une mesure représentative par jour), 10 % de la série des résultats des mesures peuvent dépasser les valeurs limites prescrites, sans toutefois dépasser le double de ces valeurs. Ces 10 % sont comptés sur une base de 24 heures pour les effluents gazeux ».

L'article 24 précise les conditions pour normaliser les mesures : « le débit des effluents gazeux est exprimé en mètres cubes par heure rapportées à des conditions normalisées de température (273 Kelvins) et de pression (101,3 Kilopascals) après déduction de la vapeur d'eau (gaz secs) ; les concentrations des polluants sont exprimées en gramme(s) par mètre cube rapporté aux mêmes conditions normalisées. Pour les installations de séchage, les mesures se font sur gaz humides ».

Les valeurs limites sont données dans l'article 27 en termes de concentration et sont fixés selon le flux horaire maximal autorisé pour : (1) les poussières totales, (2) le monoxyde de carbone, (3) les oxydes de soufre (exprimés en dioxyde de soufre), (4) les oxydes d'azote (exprimés en dioxyde d'azote), (5) le chlorure d'hydrogène et autres composés minéraux gazeux du chlore (exprimés en HCl), (6) le fluor et composés minéraux du fluor (exprimés en HF), (7) les composés organiques volatils, (8) les métaux et composés de métaux (gazeux et particulière), (9) les rejets de diverses substances gazeuses, (10) l'amiante, (11) les autres fibres et (12) les rejets de substances cancérigènes.

En résumé, l'Arrêté français définit les flux horaires maximaux (flux par unité de temps) et, selon les valeurs trouvées, donne les concentrations limites à respecter (Tableau 1-

21). Cependant il précise que l'arrêté d'autorisation préfectoral doit fixer la teneur en oxygène des gaz émis résiduels (dilution). Ce taux d'oxygène conditionne l'application de l'arrêté car les niveaux existants d'oxygène dans les centrales d'enrobage peuvent varier entre 11 et 16 %, selon les paramètres de fabrication ou de fonctionnement. Pour les comparer, les émissions peuvent doubler si le taux d'oxygène de référence passe de 17 % à 11 % [Monéron, 2006].

Pour le cas français, qui a choisi de limiter les émissions dans la cheminée, la législation donne des concentrations autorisées toujours liées à des flux horaires calculés à partir d'une production journalière. On verra par la suite que le calcul du flux demande des expertises (maîtrise de vitesse de gaz dans la cheminée) et qu'il n'est pas constant lors d'une journée de production dans une centrale d'enrobage. En complément des analyses de flux, l'inexistence d'une uniformisation du taux de dilution en oxygène dans le pays peut créer des distorsions lors de l'application de l'arrêté.

Tableau 1- 21 – Limites d'émissions – législation française pour les émissions gazeuses d'une centrale d'enrobage (Arrêté du 2 février 1998 modifiée par l'Arrêté du 18 décembre 2003)

Effluents gazeux	Flux et concentration autorisées	
Poussières totales	Centrales temporaires 50 mg/m ³	
	Autres centrales 100 mg/m ³	
Monoxyde de carbone	Arrêté préfectoral	
Oxydes de soufre	Si flux horaire > 25 kg/h	
	300 mg/m ³	
Oxydes d'azote	Si flux horaire > 25 kg/h	
	500 mg/m ³	
Protoxyde d'azote	Arrêté préfectoral	
Chlorure d'hydrogène et autres composés minéraux gazeux du chlore	Si flux horaire > 1 kg/h	
	50 mg/m ³	
Fluor et composés minéraux du fluor	Si flux horaire > 500 g/h	
	5 mg/m ³	
Composés organiques volatils à l'exclusion du méthane	Si flux horaire > 2 kg/h	Arrêté préfectoral Limite annuelle
	110 mg/m ³	
Composés organiques volatils (annexe III) : acétaldéhyde, acide acrylique, acide chloroacétique, aldéhyde formique, acroléine, acrylate de méthyle, anhydride maléique, aniline, biphényles, chloroacétaldéhyde, chloroforme, chlorométhane, chlorotoluène, crésol, 2-4 diisocyanate de toluylène, dérivés alkylés du plomb, dichlorométhane, 1,2 dichlorobenzène, 1,1 dichloroéthylène, 2,4 dichlorophénol, diéthylamine, diméthylamine, 1,4 dioxane, éthylamine, 2-furaldéhyde, m'talcrylates, mercaptans, nitrobenzène, nitrocrésol, nitrophénol, nitrotoluène, phénol, pyridine, 1,1,2,2 tétrachloroéthane, tétrachloroéthylène, tétrachlorométhane, thioéthers, thiols, O. toluidine, 1,1,2 trichloroéthane, trichloroéthylène, 2,4,5 trichlorophénol, 2,4,6 trichlorophénol, triéthylamine et xylénol	Si le flux horaire > 0,1 kg/h 20 mg/m ³	
Métaux : cadmium, mercure et thallium	Si flux horaire > 1 g/h	
	0,05 mg/m ³ par métal	0,1 mg/m ³ pour la somme des métaux (Cd + Hg + Tl)
Métaux : arsenic, sélénium et tellure	Si flux horaire > 5 g/h	
	1 mg/m ³ pour la somme des métaux (Cd + Hg + Tl)	
Rejets de plomb	Si flux horaire > 10 g/h	
	1 mg/m ³	
Rejets de d'antimoine, chrome, cobalt, cuivre, étain, manganèse, nickel, vanadium et zinc	Si flux horaire > 25 g/h	

	5 mg/m ³	
Rejets de diverses substances gazeuses : phosphine et phosgène	Si flux horaire > 10 g/h 1 mg/m ³ par chaque produit	
Rejets de diverses substances gazeuses : acide cyanhydrique, brome, Chlore et hydrogène sulfuré	Si flux horaire > 50 g/h 5 mg/m ³ par chaque produit	
Rejets de diverses substances gazeuses : ammoniac	Si flux horaire > 100 g/h 50 mg/m ³	
Amiante	Si la quantité brut mise en œuvre > 100 kg/an	
	0,1 mg/m ³ pour l'amiante	0,5 mg/m ³ pour les poussières totales
Autres fibres	Si la quantité des fibres mise en œuvre > 100 kg/an	
	1 mg/m ³ pour les fibres	50 mg/m ³ pour les poussières totales
Rejets de substances cancérigènes : benzo(a)pyrène, béryllium, chrome IV (oxyde de chrome), chromate de calcium, chromate de chrome III, chromate de strontium, chromate de zinc, dibenzo(a,h)anthracène, 2 naphtylamine et oxyde de bis chlorométhyle	Si flux horaire > 0,5 g/h Arrêté préfectoral	
Rejets de substances cancérigènes : trioxyde et pentoxyde d'arsenic, acide arsénieux, acide arsénique, 3,3 dichlorobenzidine, MOCA, 1,2 dibromo-3-chloropropane et sulfate de diméthyle	Si flux horaire > 2 g/h Arrêté préfectoral	
Rejets de substances cancérigènes : acrylonitrile, épichlorhydrine, 1,2 dibromoéthane, chlorure de vinyle, oxyde, dioxyde, sulfure et sous sulfure de nickel	Si flux horaire > 5 g/h Arrêté préfectoral	
Rejets de substances cancérigènes : benzène, 1-3 butadiène, 1-2 dichloroéthane, 1-3 dichloro2propanol, 1-2 époxypropane, oxyde d'éthylène et 2 nitropropane	Si flux horaire > 25 g/h Arrêté préfectoral	

L'Arrêté du 18 décembre 2003, qui modifié l'Arrêté du 2 février 1998, introduit la notion de centrale d'enrobage temporaire (déplaçable) comme critère de classification, en la différenciant des autres types de centrales d'enrobage, notamment des fixes. Il faut noter que l'arrêté préfectoral d'autorisation peut fixer, dans ce cas, en tant que besoin, des dispositions plus sévères que celles prescrites dans l'Arrêté du 2 février 1998.

Dans le contexte de l'administration publique française, les Directions Régionales de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement (DRIRE) sont chargées de contrôler les activités industrielles susceptibles d'avoir un impact sur l'environnement, dans le cadre de la réglementation sur les installations classées pour la protection de l'environnement. L'inspection des installations classées exerce une mission de police environnementale auprès des établissements industriels. Cette mission de service public, définie par la loi, vise à prévenir et à réduire les dangers et les nuisances liés à ces installations afin de protéger les personnes, l'environnement et la santé publique. Les principes d'action des DRIRE sont basées sur « la législation relative aux installations classées pour la protection de l'environnement qui est la base de l'action de l'État autour de la prévention des pollutions et des risques créés par les industries. Les exploitants eux-mêmes sont les premiers responsables des actions de prévention mais les pouvoirs publics pour leur part doivent examiner les projets, fixer les règles nécessaires et s'assurer de leur respect ». La législation relative aux installations classées est fondée sur l'approche intégrée, ce qui signifie que une seule autorisation est délivrée pour un site industriel au titre de la protection de l'environnement. L'approche intégrée permet la prise en compte de tous les impacts sur l'environnement (air, eau, sol, bruit, vibrations) et des risques d'accident et une seule autorité est compétente pour l'application de cette législation. (site internet de la DRIRE).

En France, seul l'Etat est compétent en matière de législation des installations classées. L'Etat intervient par l'intermédiaire du préfet assisté de services techniques : l'essentiel des décisions relève du niveau départemental, les structures régionales et nationales assurent les fonctions d'encadrement et de pilotage de l'ensemble. La législation des installations classées met en place un système simple. Les activités industrielles qui relèvent de cette législation sont énumérées dans une nomenclature qui les soumet soit à un régime d'autorisation, soit à un régime de déclaration. Un schéma de la procédure d'autorisation est présenté dans la Figure 1- 27 .

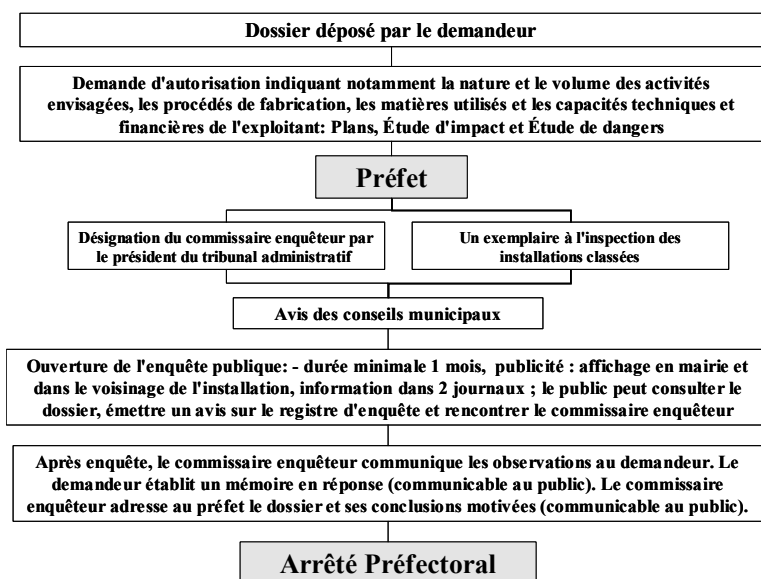


Figure 1- 27 – Schéma de la procédure d'autorisation d'après www.drire.gouv.fr

En Europe, chaque pays a ses propres limites d'émission. L'association européenne des producteurs des enrobés bitumineux (EAPA), dans son rapport sur les meilleures techniques environnementales disponibles pour les centrales d'enrobage [EAPA, 1996], donne un panorama des limites existantes pour divers pays (Tableau 1- 22). Pour permettre une comparaison entre les limites d'émissions existantes, l'EAPA a spécifié comme taux de dilution en oxygène la valeur de 17 % en O₂ comme référence de base pour les centrales d'enrobage.

Tableau 1- 22 – Limites spécifiées par les normes nationales européennes [EAPA, 1996]

	SO_x	NO_x	CO	HAP
<i>Pays</i>	<i>mg/Nm³</i>	<i>mg/Nm³</i>	<i>mg/Nm³</i>	
Autriche	-	-	-	-
Belgique	500	500	100	4 kg/an
Danemark	180	180	-	-
Finlande	500	-	-	-
Allemagne	500	300	500	
Hongrie	135	77	1000	< 0,1 g/h
Irlande	-	-	-	-
Italie	1700	500		0,1 mg/Nm ³
Pays Bas	50 – 75	50 – 75	-	0,1 mg/Nm ³
Norvège	-	-	-	-
Portugal	4400	1500	1000	0,1 ou 1 mg/Nm ³
Espagne	1700	575	1675	-
Suède	-	-	-	-
Suisse		250		0,1 mg/Nm ³
Royaume Uni	-	-	-	

Nm³ = normal mètre cube (voir lexique en fin de texte)

3.5.2 Réglementation aux États Unis

L'EPA, l'agence environnementale américaine, a pour mission de protéger la santé humaine et l'environnement. Depuis 1970 elle travaille pour la science environnementale dans le domaine de la recherche, l'éducation et l'évaluation des effluents. L'« Acte d'Air Propre », délivré par le congrès américain exige que l'Agence de Protection Environnementale (EPA) fixe les standards de qualité de l'air pour les polluants considérés comme néfastes à la santé publique et à l'environnement. Cet « Acte d'Air Propre » établit deux types de standards nationaux de qualité de l'air.

Les standards primaires fixent les limites pour la protection de la santé publique, y compris la santé des populations « sensibles » comme les asthmatiques et les enfants. Les standards secondaires fixent les limites pour la protection du bien-être de la population, y compris la protection contre la diminution de la visibilité, les dégâts contre les animaux, les cultures, la végétation et les bâtiments. Le bureau de l'EPA chargé des standards et des plannings de la qualité de l'air (OAQPS) a fixé les standards pour six principaux polluants. Ils sont listés ci-après (tableau 1-23).

Tableau 1- 23 – Standards nationaux de la qualité de l'air ambiant aux USA d'après [EPA, 2004]

<i>Polluants</i>	<i>Standard primaire</i>	<i>Duré du prélèvement (temps moyen)</i>	<i>Standard secondaire</i>
Monoxyde de carbone	9 mg/kg (10 mg/m ³)	8 heures ¹	Non
	35 mg/kg (40 mg/m ³)	1 heure ¹	Non
Plomb	1,5 µg/m ³	Moyenne trimestrielle	Idem Standard primaire
Dioxyde d'azote	0,053 mg/kg (100 µg /m ³)	Annuel (moyenne arithmétique)	Idem Standard primaire
Particules totales (PM ₁₀)	50 µg /m ³	Annuel ² (moyenne arithmétique)	Idem Standard primaire
	150 µg /m ³	24 heures ¹	
Particules totales (PM _{2,5})	15 µg /m ³	Annuel ³ (moyenne arithmétique)	Idem Standard primaire
	65 µg /m ³	24 heures ⁴	
Ozone	0,08 mg/kg	8 heures ⁵	Idem Standard primaire
Dioxyde de soufre	0,03 mg/kg	Annuel (moyenne arithmétique)	-----
	0,14 mg/kg	24 heures ¹	-----
	---	3 heures ¹	0,5 mg/kg (1300 µg /m ³)

¹ Ne doit pas être dépassé plus qu'une fois par an.

² Pour atteindre ce standard, la concentration annuelle moyenne de PM₁₀ pesée sur trois années en chaque monitor à l'intérieur d'une aire ne doit pas dépasser 50 µg /m³.

³ Pour atteindre ce standard, les concentrations annuelles moyennes de PM_{2,5} pesées sur trois années issues des simples ou multiples monitors ciblés dans une ville ne doivent pas dépasser 15 µg /m³.

⁴ Pour atteindre ce standard, les concentrations moyennes (98ème percentiles) en 24 heures sur trois années issues de chaque monitor ciblé dans une population d'une région ne doivent pas dépasser 65 µg /m³.

⁵ Pour atteindre ce standard, les concentrations moyennes d'ozone sur les quatre plus hauts pics d'une journée des trois années mesurés en chaque monitor ne doivent pas dépasser 0,08 mg/kg.

3.5.3 Réglementation au Brésil

La réglementation brésilienne ressemble à celle des USA. Le *Conselho NaAcional do Meio Ambiente* (CONAMA) est l'organisme fédéral chargé d'établir les standards nationaux de qualité de l'air. Un standard de qualité de l'air est défini par la loi brésilienne comme « la limite maximale de concentration d'un polluant capable d'agir sur la santé et le bien-être de la population en général ».

Les standards établis sont divisés en deux types. Les standards primaires de qualité de l'air donnent les concentrations de polluants dans l'air qui, dépassés, peuvent affecter la santé de la population. Ils peuvent être vus comme des niveaux maximums supportés de concentration de polluants atmosphériques. Les standards secondaires de qualité de l'air correspondent à des concentrations de polluants atmosphériques au-dessous desquels on se prévoit un minimum d'effet sur le bien-être de la population, mais aussi un minimum de dommages de la flore et à de la faune, et à l'environnement en général. Ils peuvent être entendus comme niveaux désirés de concentration de polluants et pourraient devenir une cible à longue échéance. Les polluants atmosphériques normés par le CONAMA sont présentés dans le Tableau 1-24.

Tableau 1- 24 - Législation brésilienne pour les émissions gazeuses (résolution CONAMA n°03 du 28/06/1990)

<i>Polluants</i>	<i>Temps de prélèvement</i>	<i>Standard primaire µg/m³</i>	<i>Standard secondaire µg/m³</i>	<i>Méthode de mesures^d</i>
Particules totales en suspension (PTS)	24 heures ^a MGA ^b	240 80	150 60	Echantillonneur des grandes mesures
Particules respirables (PR)	24 heures ^a MAA ^c	150 50	150 50	Séparation inertielle/filtration
Fumée	24 heures ^a MAA ^c	150 60	100 40	Réflecteur (opacimétrie)
Dioxyde de soufre (SO ₂)	24 heures ^a MAA ^c	365 80	100 40	Pararosaniline
Dioxyde d'azote (NO ₂)	24 heures ^a MAA ^c	320 100	190 100	Chimiluminescence
Monoxyde de carbone (CO)	1 heure ^a	40.000	40.000	Infrarouge non dispersive
		35 mg/kg	35 mg/kg	
	8 heures ^a	10.000 9 mg/kg	10.000 9 mg/kg	
Ozone (O ₃)	1 heure ^a	160	160	Chimiluminescence

^a Ne doit pas être dépassé plus qu'une fois par an ; ^b MGA= Moyenne géométrique annuelle.

^c MAA = Moyenne arithmétique annuelle ; ^d La résolution permet d'utiliser des méthodes équivalentes.

Ces dispositions établissent aussi que les sources d'émissions polluantes atmosphériques, dans leur ensemble, localisées dans un district (zone) industriel, doivent rejeter leurs polluants en quantités et dans des conditions telles qu'elles n'occasionnent pas des concentrations, au niveau du sol, supérieures aux standards primaires de qualité de l'air à l'intérieur des limites géographiques du district (zone) industriel; et n'occasionnent non plus des concentrations, au niveau du sol, supérieures aux standards secondaires de qualité de l'air, en dehors des limites géographiques du District Industriel. De plus, Il y a une période critique de pollution de l'air lorsqu'on observe la présence de hauts taux de concentration de polluants à l'atmosphère dans une courte période de temps, issue de l'arrivée de conditions météorologiques défavorables à la dispersion de ceux-ci. Il a été établi les niveaux suivants : « Attention, Alerte et Emergence ». Les critères sont présentés dans le Tableau 1- 25 :

Tableau 1- 25 – Critères pour les épisodes critiques de pollution de l'air (résolution CONAMA n°03 du 28/06/1990)

<i>Polluants (en µg/m³)</i>	<i>Attention</i>	<i>Alerte</i>	<i>Emergence</i>
Particules totales en suspension (PTS) – 24 heures	375	625	875
Particules respirables (PR) – 24 heures	250	420	500
Fumée – 24 heures	250	420	500
Dioxyde de soufre (SO ₂) – 24 heures	800	1600	2100
Dioxyde d'azote (NO ₂) – 1 heure	1130	2260	3000
Monoxyde de carbone (CO) – 8 heures	15	30	40
Ozone (O ₃) – 1 heure	400	800	1000

3.5.4 Autres aspects réglementés

L'exposition individuelle au travail, est définie par l'union européenne comme liée à la présence d'un agent chimique dans la zone de respiration des ouvriers. Elle est décrite en

termes de concentration sur une période de référence. La Limite d'Exposition Individuelle (LEI) est basée sur des informations scientifiques disponibles issues de l'expérience industrielle, des expertises (sur des animaux ou des humains) ou d'études épidémiologiques. Pour finir, plusieurs pays ont défini des limites pour l'exposition aux fumées d'enrobé (Tableau 1-26). Elles sont mesurées en termes de particules totales (particules et aérosols prélevés sur des filtres) et en termes de Composés Aromatiques Polycycliques (CAP).

Tableau 1- 26 – Les limites d'exposition individuelle pour les enrobés bitumineux et composés aromatiques polycycliques (CAP) sur les lieux de travail d'après [Tang, 1999]

<i>Pays</i>	<i>Fumées d'enrobé mesurée en termes de particules totaux (mg/m³)</i>	<i>Composés aromatiques polycycliques mesurés dans les chantiers en termes de fraction soluble dans le benzène (mg/m³)</i>
Australie	5	200
Belgique	5	200
Danemark	5	Données non disponibles
Finlande	5	10 (benzo(a)pyrène)
France	Pas de limite	200
Allemagne	Pas de limite	2 (benzo(a)pyrène)
Italie	5	200
Norvège	Pas de limite	40 (HAP total)
Pays-bas	5	200
Pologne	Données non disponibles	150
Suède	Pas de limite	2
Suisse	Données non disponibles	200
Royaume Unis	5	Données non disponibles
Canada	5	Données non disponibles
USA		
NIOSH	5	100
OSHA	Pas de limite	150
ACGHI	5	200

NIOSH – National Institute for Occupational Safety and Health OSHA – Occupational Safety and Health Administration ACGHI – American Conference of Governmental Industrial Hygienists

4 Conclusions du chapitre 1

La problématique des émissions en centrale d'enrobage a été présentée dans ce chapitre grâce à la collecte bibliographique sur ce sujet dans différents domaines. Ainsi le domaine des enrobés, bitumes, essais en laboratoire et essais sur sites industriels ont été présentés. La composition du bitume, son comportement et son vieillissement ont été détaillés. Des informations sur les fumées du bitume ont été obtenues par le biais de travaux réalisés avec différents générateurs existants. Les problèmes posés par l'échantillonnage des COT et des HAP ont notamment été soulevés ainsi que ceux liés à leur mesure.

Les procédés « centrale d'enrobage » existants ont été décrits, notamment leurs principes et les matériels utilisés. Le mode de fonctionnement du Tambour Sécheur Enrobeur (TSE), ses réglages, la combustion et les combustibles couramment utilisés ont été rappelés. Les principaux polluants connus engendrés par les centrales d'enrobage ont été détaillés. Par rapport aux émissions des centrales, les facteurs d'émission EPA donnant des valeurs moyennes de l'industrie par type de centrale (discontinue ou TSE), associés à une classification de qualité des données ont été retenus comme pertinents pour la thèse.

A la fin, la réglementation environnementale a été abordée au niveau français, européen et international, le problème du flux horaire et du taux de dilution des émissions au niveau de la cheminée sont importants dans l'étude de ce type de procédé qui repose essentiellement sur la détermination des concentrations de polluants dans la thèse.

CHAPITRE 2 - Méthodologie d'étude des émissions du procédé d'enrobage à différentes échelles

INTRODUCTION

Ce chapitre présente la logique développée au cours du travail de thèse afin de comprendre l'origine des émissions en cheminée liée au combustible et au bitume chauffé, il est constitué de deux parties. La première partie présente les différentes étapes du travail de thèse. Les deux TSE étudiés y sont notamment décrits et leurs modes de production usuels sont précisés. Afin de situer le travail, un bilan des connaissances antérieures relatives à la caractérisation expérimentale du procédé TSE en conditions dédiées est dressé. Une décomposition du procédé d'enrobage, du point de vue environnemental, est réalisée où sont tracés les objectifs du travail à chaque échelle d'analyse proposée.

La deuxième partie décrit la méthodologie d'étude à chaque échelle et les résultats attendus qui permettent d'approfondir les connaissances sur le procédé. La méthodologie d'étude des émissions du procédé d'enrobage dans le tambour sécheur enrobeur de la centrale est d'abord explicitée. L'essentiel du travail porte sur la mesure des émissions et le contrôle de conditions de production. Ensuite la méthodologie d'étude des émissions lors du malaxage en laboratoire est détaillée. Il s'agit dans le cas de pousser l'analyse expérimentale le plus loin possible pour comprendre l'incidence du bitume lui-même et des conditions de d'enrobage à l'échelle du granulat.

1 Présentation des étapes du travail de thèse

1.1 Positionnement du travail

1.1.1 Présentation des TSE étudiés dans leur contexte industriel

La Figure 2-1 présente la centrale TSE à poste fixe du parc routier de Blois étudiée avec les différentes zones auxquelles on fait référence dans ce document.

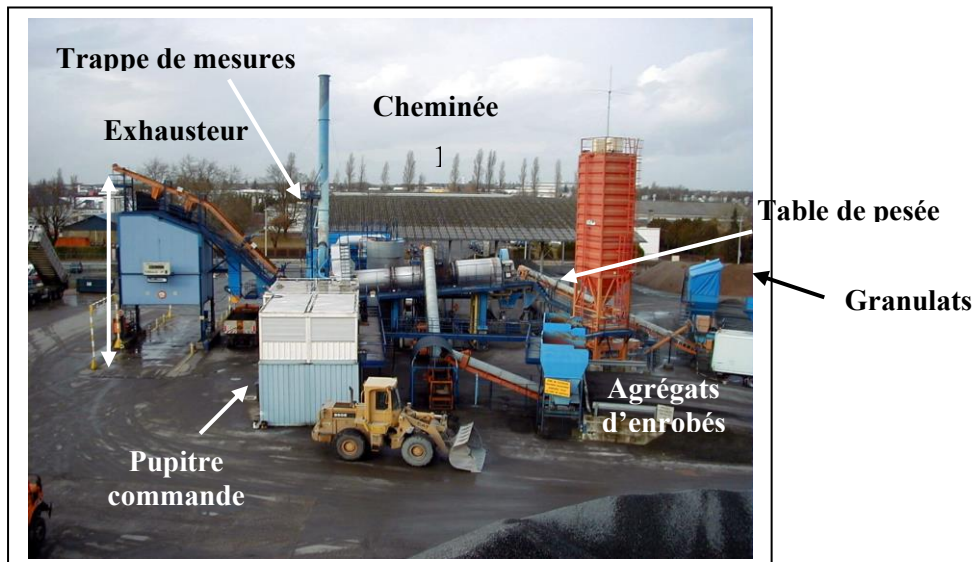


Figure 2- 1 Vue panoramique de la centrale TSE fixe au gaz naturel du Parc 41 de Blois

La centrale d'enrobage type TSE mobile au fuel lourd étudiée est d'un principe identique à la centrale fixe et comporte les mêmes éléments (Figure 2- 2). Pour stocker le fuel lourd, il existe une citerne appropriée maintenue en température pour pouvoir pomper le combustible, contrairement au TSE fixe qui est alimenté en gaz de ville par des canalisations

appropriées. La décharge des enrobés est réalisée de façon continue par le biais d'un élévateur à chaud qui transporte les enrobés jusqu'à leur trémie de stockage.



A) Décharge des enrobés



B) Stock des granulats et TSE

Figure 2- 2 Vue panoramique de la centrale TSE mobile

Le schéma de la Figure 2-3 montre comment les variations du procédé interfèrent dans la combustion existante et les émissions. Lors du démarrage de la centrale, il faut choisir la formule à fabriquer (pupitre de commande), y compris les granulats et le bitume à utiliser, la température de l'enrobé et la cadence de production du poste. Deux à cinq minutes après la période de démarrage, la centrale entre dans un régime normal de production. Le régime de production est considéré comme stabilisé quand l'enrobé fabriqué sort à une température constante à ± 5 °C près. Cette stabilité peut être perturbée par des variations de la teneur en eau des granulats qui engendrent des variations de température des enrobés, de température des gaz de sortie et de dépression à l'intérieur du tambour sécheur.

Pour assurer la conformité de la température des enrobés fabriqués, des ajustements sont nécessaires. Il s'agit de l'augmentation ou de la baisse du régime du brûleur et du réglage de l'exhausteur. Parallèlement, le conducteur de la centrale s'attache à maintenir constante (entre 5 et 10 daP) la dépression à l'intérieur du tambour sécheur. Toutes ces variations se traduisent par des variations du débit d'air au niveau du brûleur et des entrées d'air parasite au niveau des granulats, occasionnant, en conséquence, un changement dans le taux d'aération de la combustion mesuré à la cheminée de sortie et dans les concentrations des émissions engendrées.

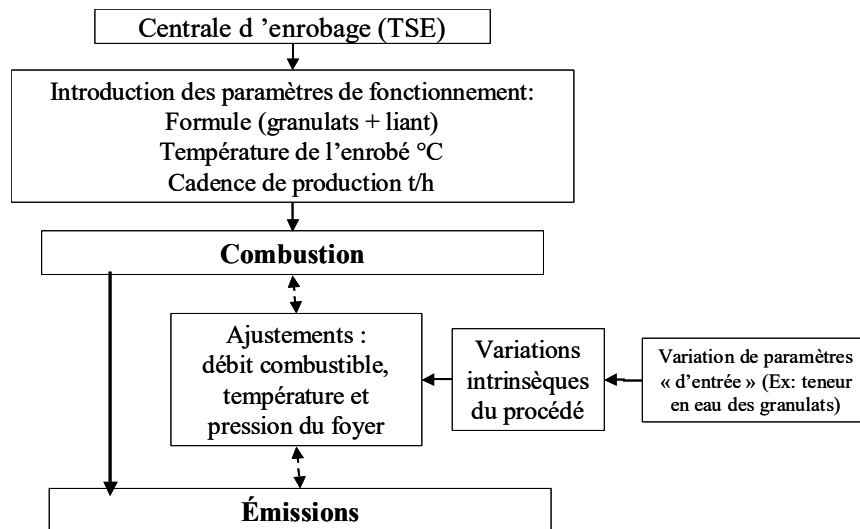


Figure 2- 3 Consigne de production du poste de commande d'une centrale d'enrobage type TSE

Les émissions d'une centrale d'enrobage ne sont pas constantes dans le temps. Il existe des fluctuations dues aux écarts de procédé, maîtrisables et non maîtrisables. Parmi les fluctuations non maîtrisables, on peut citer : la teneur en eau des granulats, qui est entièrement dépendante du stockage et de la météorologie et les variations du combustible (réseau public). Cependant, même les paramètres *a priori* maîtrisables font l'objet de variations conditionnées par les contraintes du chantier. C'est le cas de la cadence, des problèmes de constance d'alimentation des matériaux et de la température des enrobés, qui constituent des modifications fréquentes et intrinsèques des procédés à une échelle industrielle. En conséquence, lors de la production, la combustion doit s'adapter à ces variations imprévues et, dès lors, les températures des fumées, de l'enrobé et le volume des rejets gazeux changent au cours du temps.

1.1.2 Production annuelle type du TSE fixe en conditions usuelles

Un registre hebdomadaire des productions de la centrale d'enrobage TSE fixe de Blois (DDE 41), tenu par le chef de poste durant plusieurs années (1999 à 2003), a été tout d'abord exploité. Le listing hebdomadaire des consommations a été utilisé dans le cadre de la gestion comptable de la centrale. Ce listing rapporte également des valeurs de teneurs en eau moyennes ; aucune information sur la température de fabrication des enrobés n'est par contre disponible. Celles-ci sont à distinguer des teneurs en eau qui ont été mesurées spécifiquement lors de campagnes expérimentales. En effet, elles sont calculées à partir d'informations journalières sans effectuer de pondération par rapport aux quantités fabriquées des différentes formules. Ces données sont très globales et ne permettent pas de faire la différence entre les liants utilisés en termes de type de bitume et de fournisseur. Les agrégats recyclés utilisés dans les fabrications proviennent aussi du stock du Parc.

La Figure 2-4 donne les productions de la centrale d'enrobage TSE fixe au gaz naturel à Blois, en 2002, où les formules ont varié tout au long de l'année, selon le carnet de commandes. Le suivi annuel de la production représenté à l'échelle hebdomadaire donne une idée de la variabilité de la production. Dans l'exemple de 2002, la moyenne hebdomadaire a été de 1500 t/semaine, avec un écart type de 950 tonnes d'enrobé fabriqué d'une semaine à l'autre. Par rapport à la production, l'ensemble des enrobés fabriqués utilisés en couches de

surface (roulement + liaison) (BBSG et BBTM) a représenté 78 %, contre 21 % utilisés en couches de base (GB) et de forme et 1 % d'enrobés froids.

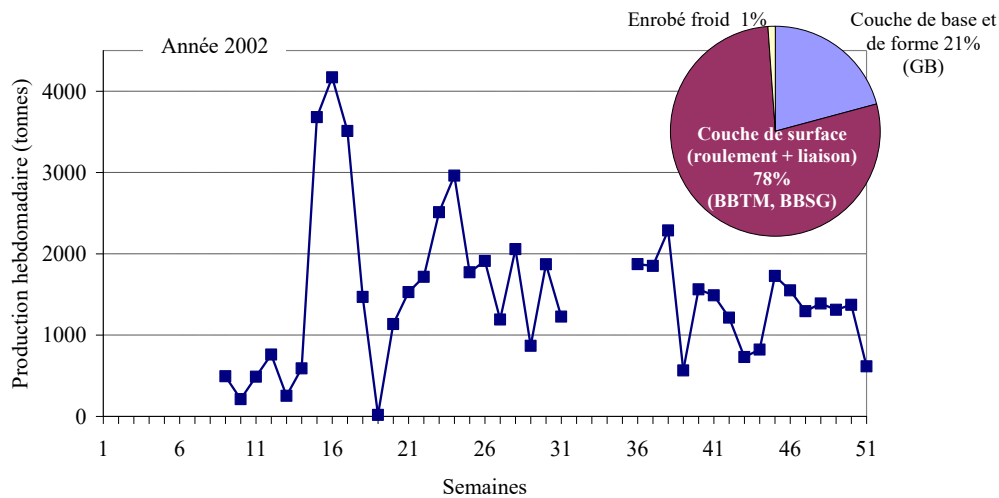


Figure 2- 4 Suivis annuels (2002) de la production hebdomadaire des enrobés de la centrale d'enrobage TSE fixe au gaz

La problématique des changements de teneur en eau des granulats dûs aux conditions climatiques au cours de l'année est illustrée en Figure 2- 5 et dans le Tableau 2 - 1. La température ambiante et la teneur en eau des granulats se détachent comme paramètres influents dans la centrale. Selon les données présentées, l'humidité des granulats peut doubler facilement d'une période de l'année à l'autre. La Figure 2- 5 indique que la teneur en eau se situe dans une plage entre 1,4 % (été) et 3,7 % (hiver). Les données montrent qu'il existe aussi des variations importantes dans une même saison de l'année, y compris l'été.

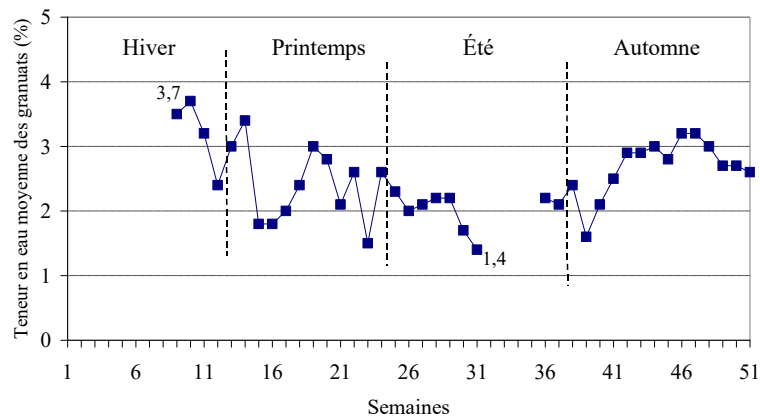


Figure 2- 5 Suivis annuels (2002) de la teneur en eau moyenne des granulats de la centrale d'enrobage TSE fixe au gaz naturel à Blois

Tableau 2 - 1 – Suivis saisonniers (2002) de la teneur en eau moyenne des granulats et de la consommation de la centrale d'enrobage TSE fixe au gaz naturel à Blois

<i>Période</i>	<i>Valeurs</i>	<i>Teneur en eau (%)</i>	<i>Consommation en gaz (m³/h)</i>
Hiver	Mini	2,60	5,73
	Moyenne	3,25	6,30
	Maxi	3,70	6,91
Printemps	Mini	1,50	4,38
	Moyenne	2,41	5,21
	Maxi	3,40	7,16
Été	Mini	1,40	3,87
	Moyenne	1,99	4,53
	Maxi	2,20	4,86
Automne	Mini	1,60	4,46
	Moyenne	2,62	5,58
	Maxi	3,20	6,35
Année 2002	Mini	1,40	3,87
	Moyenne	2,50	5,31
	Maxi	3,70	7,16

L'amplitude de variation des paramètres (consommation en combustible, teneur en eau des granulats et productivité) a été analysée à l'échelle annuelle. La Figure 2- 6 montre l'augmentation de la consommation en fonction de la teneur en eau des granulats. La validité de la régression observée a été vérifiée par le test de Student. La teneur en eau est donc un paramètre significatif. Cependant, l'ensemble des valeurs montre aussi des fluctuations dues à d'autres facteurs (conditions météorologiques, température des enrobés). Ceux-ci ne peuvent être isolés à partir des données disponibles. Cette constatation est cohérente avec les enseignements que l'on peut tirer d'un calcul théorique de sensibilité de la consommation à partir d'un bilan énergétique, qui montre que 1 point de teneur en eau est équivalent à environ 30° C sur la température des enrobés [Monéron, 1994].

Les points représentés sur la Figure 2- 7, sont des regroupements des points de la Figure 2- 6 par rapport aux consommations moyennes saisonnières. Les périodes prises en compte ont été les suivantes : l'automne (21 sept à 22 déc.), l'hiver (23 déc. à 21 mars), le printemps (22 mars à 21 juin) et l'été (22 juin à 20 sept). Lorsque les consommations sont moyennées sur une saison, on retrouve également une augmentation de consommation entre saisons sèches et humides.

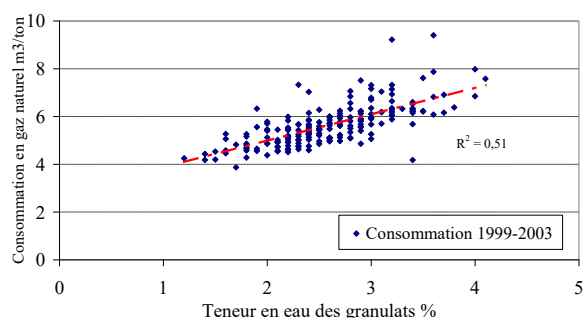


Figure 2- 6 Relation entre la teneur en eau des granulats et consommation du TSE fixe au gaz [Ventura et al, 2005]

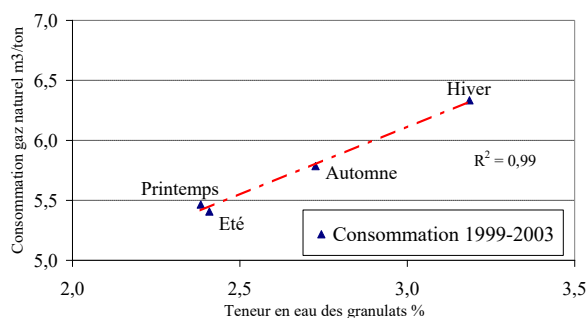


Figure 2- 7 Relation entre la teneur en eau des granulats et consommations moyennes saisonnières du TSE fixe au gaz [Ventura et al, 2005]

La consommation en gaz naturel à la tonne d'enrobé fabriqué (Figure 2- 8), décroît en fonction de la productivité horaire. Un doublement de la productivité horaire (de 70 à 140 t/h) s'accompagne d'une diminution de 60% de la consommation en gaz naturel par tonne d'enrobé produit. Cette productivité horaire est le reflet du fonctionnement de la centrale, lié à toutes les contraintes de planification et d'organisation des chantiers (quantités d'enrobés à fabriquer, formulations différentes, cadence horaire, fractionnement ou fabrication en continu). Ainsi, la Figure 2- 8 traduit vraisemblablement le fait que les arrêts et démarrages s'accompagnent d'une augmentation de la consommation, phénomène bien connu des chefs de poste.

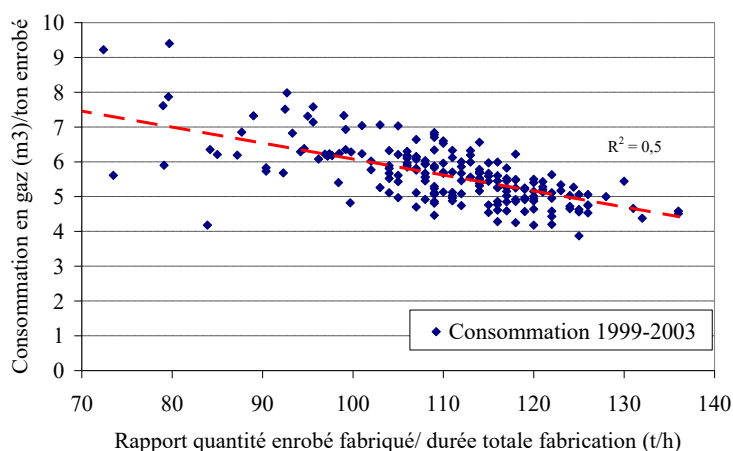


Figure 2- 8 Relation entre la consommation et la productivité

1.1.3 Productions journalières types des TSE fixe et mobile étudiés

Centrale fixe : La prise en compte des demandes des chantiers est illustrée par la présentation du déroulement d'une fabrication à l'échelle de la journée où la plupart des variations sont dues aux besoins des chantiers routiers qui sont très divers au Parc 41. Dans l'exemple présenté, trois formules (dont cinq changements en tout de formules) ont été fabriquées avec des cadences et des températures de fabrication différentes. Le grand nombre de formules fabriquées, les démarrages et les arrêts, les cadences de production et la température des émissions ont été mises en évidence dans la Figure 2 - 9. La variabilité de la production à l'échelle d'une journée est toujours liée aux commandes existantes (planning de la centrale).

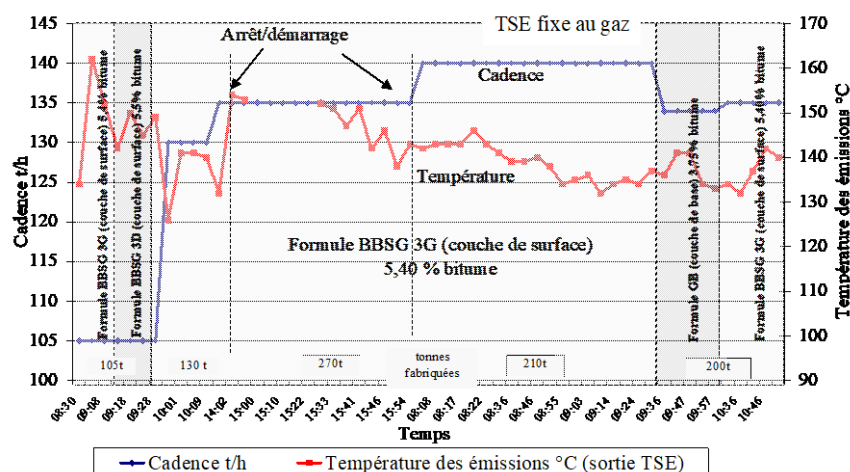


Figure 2- 9 Suivi en continu des variations de la cadence horaire, des types de formules et des températures des émissions pendant deux journées de fabrication en 2004 d'après [Paranhos et al, 2005a]

Centrale mobile : La prise en compte des demandes des chantiers dans le cas d'une centrale mobile est illustrée dans la Figure 2- 10. La présentation du déroulement d'une fabrication à l'échelle de la journée représente les besoins des chantiers routiers qui, dans ce cas, sont moins divers au niveau de formules (journée entière dédiée à la même formule) mais dépendantes au niveau des cadences (déroulement du chantier). Dans l'exemple, une seule formule a été fabriquée avec des cadences de fabrication différentes.

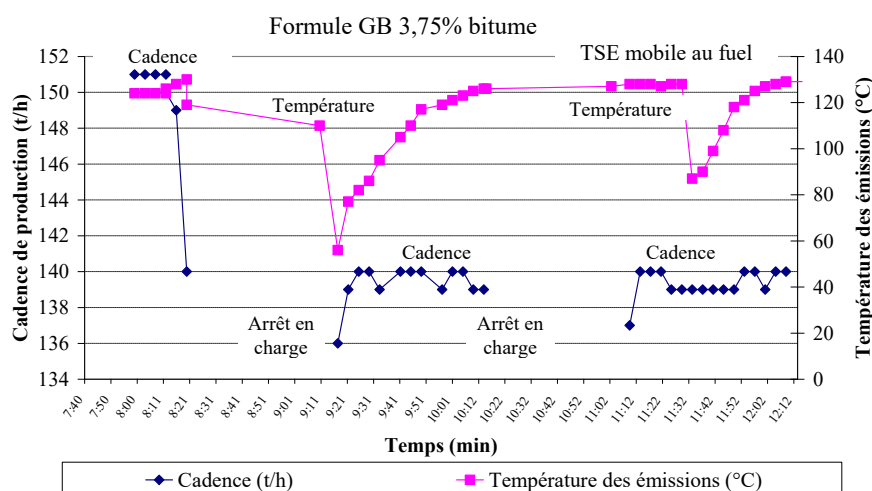


Figure 2- 10 Suivi en continu des variations de la cadence horaire et des températures des émissions pendant une journée de fabrication

1.1.4 Bilan des campagnes antérieures du LCPC réalisées en conditions dédiées sur le TSE fixe

Les premiers travaux de caractérisation des émissions de centrale réalisés en 2001, avaient pour objet l'analyse de l'incidence du taux de recyclage des agrégats dans une formule de type BBSG pour la couche de liaison de la RN76. Les mesures réalisées devaient fournir des données environnementales, de consommations et émissions des procédés d'enrobage et de répandage selon différentes conditions et formulations d'un BBSG.

La centrale TSE du Parc routier de Blois permet l'utilisation d'agrégats d'enrobés recyclés ; le taux maximal de recyclage est de 30 % compte-tenu des caractéristiques techniques du dépoussiéreur. Ainsi, dès le début des campagnes d'essais, l'emploi de divers

taux de recyclage dans la gamme 0-30 % a été intégré aux travaux expérimentaux réalisés, comme c'est couramment pratiqué par le Parc routier dans ses formules habituelles, à des taux plus faibles toutefois.

Deux campagnes de mesures environnementales destinées à obtenir des plages de flux de polluants selon le taux de recyclage des agrégats ont été réalisées en 2001 et 2003 pour une heure de fabrication sur la centrale TSE fixe au gaz naturel du Parc Routier de Blois (DDE 41). Les données brutes obtenues sont issues de mesures d'émissions par des organismes agréés (SODAE et EUROFINS) et du relevé des paramètres de fonctionnement effectué par le LCPC. Le Tableau 2 - 2 en rappelle les objectifs.

A partir de la 1^{ère} campagne d'expérimentation réalisée en 2001, les questions posées quant aux caractéristiques et aux impacts environnementaux du procédé centrale se sont affinées au fur et à mesure du dépouillement des résultats issus de l'obtention de nouvelles données. Des questions ont émergé, notamment quant aux conditions de collecte des données, et également quant aux formulations des enrobés, à l'emploi d'agrégats recyclés et aux conditions de fonctionnement du process. L'analyse des rejets gazeux mesurés a été effectuée à partir des données brutes et à partir de moyennes sur des phases de fonctionnement stabilisées. Les fluctuations du process et des émissions sont étudiées afin de relier entre eux les différents résultats, ceci étant, il faut approfondir encore ce sujet, ce qui va être réalisé dans le cadre de ce travail.

Tableau 2 - 2 – Objectifs des campagnes du LCPC antérieures de mesure des émissions en centrale

<i>Campagne de mesures</i>	<i>Date</i>	<i>Stratégie de fabrication des mesures</i>	<i>Réalisation de mesures d'émissions</i>	<i>Objectifs</i>	<i>Références</i>
D1 TSE fixe Gaz naturel	26 sept 2001	Conditions dédiées BBSG 0/10	SODAE ^a	Étudier l'incidence du taux de recyclés sur les émissions, dans le cadre d'un projet d'ACV appliquée à des tronçons d'une route nationale (RN 76)	[Jullien et al, 2006b]
D2 TSE fixe Gaz naturel	11 juin 2003	Conditions dédiées BBSG 0/10	EUROFINS ^a	(Ré)étudier le taux à 10 % de recyclés et l'influence de l'eau (taux d'humidité des sables fillerisés) sur les émissions	[Ventura et al, 2005]

^a Organisme agréé

Une différence importante est à signaler entre les mesures de rejets en 2001 et les mesures de rejets en 2003, à savoir qu'en 2003 toutes les phases de démarrage et en arrêt ont été prises en compte alors qu'en 2001 ce n'était pas le cas. Il est apparu que leur analyse pourrait apporter des informations utiles. Dans ce travail de thèse, les phases de démarrage et d'arrêt ont donc également été repérées et plus finement exploitées. Le Tableau 2 - 3 rappelle les modalités de fabrication étudiées en 2001 et 2003 et la provenance ou le type de constituants des enrobés.

Tableau 2 - 3 – Descriptif des modalités

<i>Année</i>	<i>Taux de recyclage %</i>	<i>Provenance agrégats</i>	<i>Bitume*</i>
2001	0	La noubleau (neufs)	35/50
	10	RN 76 (Recyclés)	35/50
	20	RN 76	35/50
	30	RN 76	35/50
2003	0	-	35/50
	10 avec faible teneur en eau des sables	Stock Parc (Recyclés) La noubleau	35/50
	10 avec forte teneur en eau des sables	Stock Parc(Recyclés) La noubleau	35/50
	20	Stock Parc (Recyclés) La noubleau	35/50

* bitume issu du même fournisseur

La synthèse des résultats de ces essais 2001-2003, dédiés aux modalités de collecte caractéristiques du fonctionnement et des émissions à l'atmosphère à une centrale d'enrobage à chaud a montré l'intérêt d'une approche multi-échelles pour appréhender les émissions engendrées lors de la fabrication des enrobés à chaud ainsi que la difficulté à synchroniser et à fiabiliser les mesures et les paramètres de fonctionnement du poste.

En effet, pour les paramètres de fonctionnement de la centrale lors de l'expérimentation de 2001, seuls les enregistrements en continu de la cadence horaire et des températures du bitume et des enrobés ont été effectués. Des dérives de la température d'enrobés ont été parfois observées suivies d'une diminution de la concentration en O₂, et d'une augmentation des concentrations en CO₂, COT et NO_x. On peut penser que, malgré la volonté de ne rien modifier au niveau du réglage, l'opérateur a été obligé de réagir face à cette baisse progressive de la température des enrobés et qu'il a été amené à pousser la chauffe, et donc à augmenter l'allure du brûleur, provoquant les changements de concentrations des gaz de combustion. Ceci aurait dû s'accompagner d'une augmentation de la consommation en gaz naturel, données non disponible à cette période. Enfin, les concentrations en CO apparaissent très variables sur l'ensemble du suivi, avec un pic au démarrage correspondant à l'allumage du brûleur. Ces constatations ne sont pas spécifiques à une seule modalité, elles ont été obtenues pour l'ensemble des suivis en continu.

Les expérimentations dédiées de 2001 et 2003 avaient pour objet chacune de comparer des formules identiques mais utilisant des taux de recyclage d'agrégats d'enrobés différents. Bien qu'il ait été difficile, dans ces conditions de production dédiées, d'obtenir des expérimentations strictement répétables, l'incidence de la teneur en eau sur le process a été également mise en évidence. Pour chaque polluant mesuré, les flux massiques émis ont été calculés lorsque les mesures ont été jugées satisfaisantes. Les COT, très fluctuants par rapports aux autres polluants dans les périodes stabilisées de référence, n'ont pas été trouvés dépendants de la masse en bitume utilisée.

A ce stade des connaissances du procédé centrale TSE de Blois, il n'était pas possible de distinguer d'après les mesures effectuées les émissions provenant préférentiellement du bitume de celles issues de la combustion. En perspective à ces travaux, une collaboration entre le LCPC, le GPB et ERMONT a démarré en 2004 pour traiter ces questions. Compte tenu du fait que les émissions dues à la combustion et à la présence de bitume sont, à la sortie d'une centrale de fabrication, toujours mélangées, une étude complémentaire plus approfondie

en laboratoire a été menée en parallèle dans le cadre de la thèse. Les conditions de déroulement de l'ensemble du travail sont présentées ci-après.

1.2 Décomposition du procédé d'enrobage étudié en échelles significatives d'étude

1.2.1 Description du procédé dans son environnement

□ Le site de la centrale et ses zones caractéristiques

Le travail de thèse réalisé s'inscrit dans le cadre des approches globales environnementales plus larges de cycle de vie des infrastructures [Jullien et al, 2006a ; Hoang, 2005]. Le système global lié aux émissions d'une centrale d'enrobage au sens de la définition donnée dans le cadre de l'analyse du cycle de vie est présentée en Figure 2- 11. L'approvisionnement en granulats est réalisé pour la centrale, par camions ou trains, qui apportent des granulats des carrières, des sables sédimentaires et des agrégats (recyclés) issus de chantiers routiers. Ces matériaux sont classés selon leur granulométrie et stockés. L'approvisionnement du bitume est réalisé par des camions, qui apportent le liant chaud ($\approx 170^\circ\text{C}$) directement d'une raffinerie. Ces bitumes sont stockés selon leur classe [AFNOR, 1999c] ou type (origine), dans des cuves chauffées en permanence. L'approvisionnement en électricité et en gaz naturel est réalisé par le réseau public. La livraison des enrobés bitumineux chauds fabriqués est réalisée aussi par des camions directement vers les chantiers routiers.

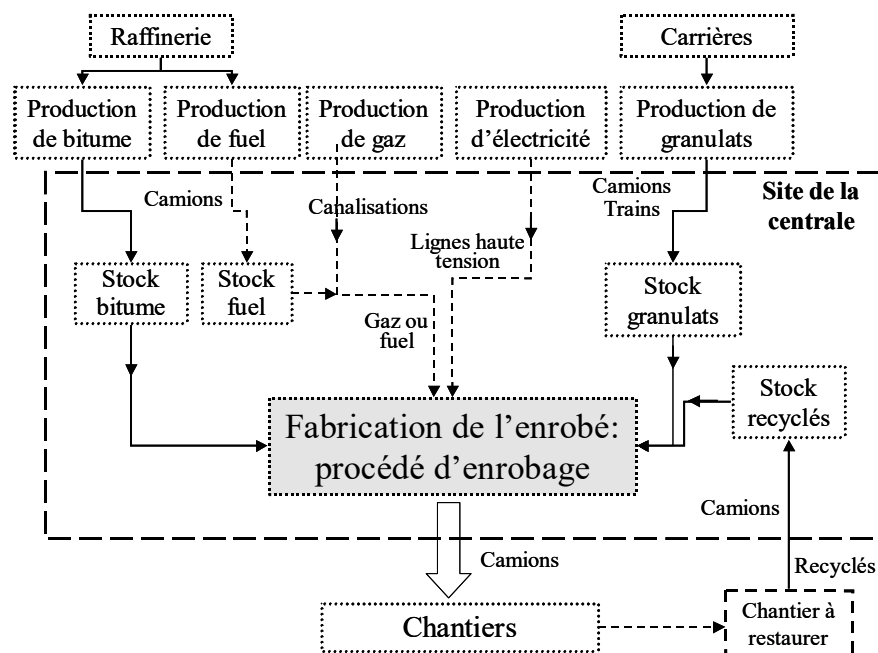


Figure 2- 11 Système environnemental associé au site d'une centrale d'enrobage

• Le flux de matières

La description des flux entrants et sortants au sens de l'ACV du procédé élémentaire d'enrobage est schématisée par la Figure 2- 12. Les flux entrants sont divisés : consommations de ressources et consommations d'énergie. Pour les ressources, il s'agit des liants et des matériaux utilisés pour fabriquer les enrobés. Les énergies prises en compte sont le combustible gaz naturel (ou fuel lourd) et l'électricité nécessaires au fonctionnement du procédé. Les flux sortants sont divisés en enrobés, rejets dans l'air, rejets dans l'eau (sols),

déchets et nuisances (bruits et odeurs). Parmi ces flux, seuls les enrobés fabriqués, les rejets dans l'air et les consommations en combustible font partie de nos objets d'analyse.

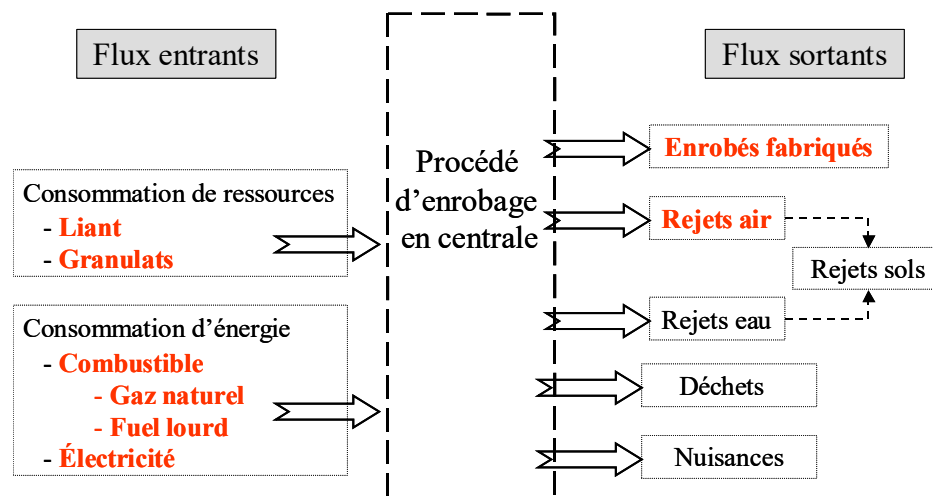


Figure 2- 12 Schéma général du Procédé d'enrobage en centrale

- Le procédé d'enrobage

Ainsi dans des études environnementales globales seules les données du type flux sont sélectionnées. Avant d'aboutir à l'évaluation des flux de polluants à l'atmosphère en relation avec les conditions de fabrication des enrobés et les formules fabriquées, une étude détaillée du procédé et de ses fluctuations a été entreprise.

Dans le cadre de cette étude du procédé, il a d'abord été nécessaire d'identifier les éléments clés à étudier ensemble ou séparément en tant que :

- Paramètres d'entrée et de sortie du processus d'enrobage ;
- Processus d'enrobage lui-même.

Dans cette perspective, les centrales d'enrobage de type TSE peuvent être représentées, du point de vue environnemental, par un ensemble de cinq parties liées entre elles. Il s'agit de (1) l'énergie, (2) des ressources en matériaux, (3) du processus d'enrobage, (4) des enrobés fabriqués (produit) et (5) des émissions à l'atmosphère engendrées (Figure 2-13).

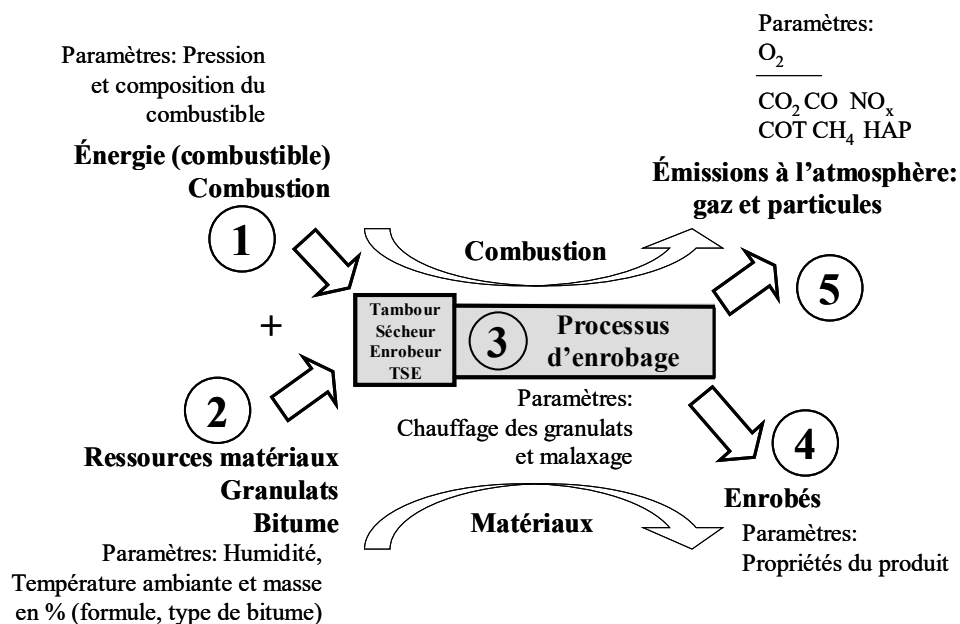


Figure 2- 13 Décomposition du procédé en sous-ensemble

La fabrication continue consiste à doser les matériaux granulaires et le liant selon une formule de composition prescrite à la commande, à sécher les granulats au sein d'un tambour rotatif, à les chauffer, toujours au sein de ce même tambour et à les mélanger avec le bitume chaud pour obtenir un mélange homogène et à la température désirée.

Les parties qui se trouvent en amont du processus (1 et 2) ont une influence directe sur les parties qui se trouvent en aval (4 et 5). Les paramètres les plus influents dans chaque partie sont les suivants:

- Partie 1 : Energie/combustible

Dans le cas d'utilisation de gaz naturels, la composition du gaz, la température d'alimentation et la pression dans le système d'injection (brûleur) sont les paramètres influents. Dans le cas du fuel lourd, sa qualité, ainsi que le mode de pulvérisation conditionnent la qualité de la combustion ;

- Partie 2 : Ressources matériaux

Les principaux paramètres influents dans cette partie sont la température extérieure ambiante et l'humidité des granulats, qui est reliée au mode de stockage. Indirectement il s'agit de la météorologie et des saisons de l'année. Les proportions de granulats et de bitume selon un ratio massique préétabli, appelé formulation des enrobés, sont susceptibles d'avoir aussi une influence sur les conditions de fonctionnement (processus). Enfin, la nature du liant est un facteur important de la composition des rejets gazeux à l'atmosphère ;

- Partie 3 : Processus

Dans le schéma général du procédé proposé, la partie 3 (processus), en tant que partie centrale, a une double fonction. D'un côté, elle doit assurer la qualité des produits fabriqués, systématiquement vérifiée par des essais en laboratoire, d'un autre côté, elle doit maintenir la génération des émissions de polluants dans les niveaux préconisés. Les cadences et les températures de production sont les paramètres les plus importants du fonctionnement d'une centrale d'enrobage, en liaison directe avec les besoins des chantiers. Lors d'un changement de cadence ou de température, la consommation énergétique est nécessairement modifiée, toutefois ces changements doivent respecter la plage de réglage du TSE, notamment du brûleur ;

- Partie 4 : Enrobés fabriqués

En tant que produits normalisés, la qualité des enrobés est systématiquement vérifiée en laboratoire, soit en sortie de centrale, soit sur le chantier. Aucune non-conformité n'est permise vis-à-vis de la qualité de ces enrobés ;

- Partie 5 : Émissions engendrées

Les émissions de polluants en cheminée sont exprimées en concentrations volumiques toujours liées à des valeurs maximales de flux horaires, préconisées par l'Arrêté du 2 février 1998. Cette étude se restreint aux émissions de O₂, CO₂, CO, NO_x, COT, CH₄ et HAP (chapitre 1).

Les cinq parties sont complètement liées. Si la combustion est arrêtée, les émissions à l'atmosphère cessent et il n'y a plus d'enrobés. Si les granulats ne sont plus alimentés, la combustion est automatiquement coupée et il n'y a plus d'émission ni d'enrobés fabriqués. Ainsi, si la combustion ou les ressources en matériaux sont altérées, les émissions à l'atmosphère changent. De la même manière, s'il y a un changement dans les émissions, on peut en déduire que la combustion et/ou les ressources matériaux ont été modifiées.

- Les axes et les paramètres d'étude du procédé

Sur la décomposition proposée d'enrobage en TSE, deux axes principaux d'étude sont dégagés: il s'agit d'un axe combustion et d'un axe matériaux. La combustion ne peut être abordée que sur site industriel, tandis que la problématique matériaux, couplée à celle de la combustion en termes d'émissions, peut être abordée d'une part à l'échelle du TSE et d'autre part à l'échelle du laboratoire.

L'étude détaillée du procédé nécessite d'effectuer un très grand nombre de mesures. L'ensemble des mesures à réaliser comprend les mesures des concentrations des substances émises à l'atmosphère proprement dites, destinées à être comparées à des valeurs réglementaires ou entre elles, les mesures permettant la conversion des résultats en flux et les mesures de paramètres explicatifs du fonctionnement du processus d'enrobage. Des précisions sur les types de mesures à effectuer sont apportées ci-après, sans pour autant les classer par priorités.

Réglage de la combustion : Le réglage de la combustion est effectué indépendamment des fabrications. Aucune donnée spécifique ne permet de quantifier de façon précise le résultat du réglage. Cependant, son incidence sera évaluée à partir des informations plus générales obtenues sur les gaz à la sortie de la cheminée.

Teneur en eau : Une détermination de la teneur en eau de tous les constituants est réalisée pour déterminer le paramètre « teneur en eau » à prendre en compte dans l'automate de la centrale. Cette teneur en eau est un paramètre explicatif des évolutions de consommation puisqu'elle conditionne la consommation en combustible, donc le bilan énergétique. Une vérification des teneurs en eau de chaque constituant est effectuée en début de journée de fabrication.

Paramètres de fabrication : Les informations propres à la fabrication des enrobés sont enregistrées soit à partir de l'automate de la centrale, soit à partir d'un module d'acquisition de données (Adline). Il s'agit de la formule théorique, de la composition réelle des enrobés fabriqués, de la température de ces enrobés, de la température du bitume, de la cadence horaire, de la teneur en eau moyenne des granulats et des notifications d'éventuels arrêts, démarrages et/ou changement de cadences de production. La comparaison des différentes

modalités de fabrication nécessite de vérifier la constance de ces paramètres. Par ailleurs, l'objectif de corrélation entre propriétés mécaniques des enrobés et rejets gazeux à l'atmosphère (par le biais de la notion de vieillissement) nécessite la caractérisation des enrobés fabriqués. Pour des températures de fabrication trop élevées, ce qui est possible dans des conditions usuelles de fabrication, un risque potentiel d'oxydation des liants bitumineux existe et est susceptible d'influencer les propriétés mécaniques du produit et de générer un surcroît d'émissions gazeuses.

Consommation en combustible : Pour la centrale à poste fixe au gaz naturel, la consommation est enregistrée en continu et ponctuellement pour chacune des modalités de fabrication étudiées. Cette consommation est comptabilisée sur la durée entière de la fabrication, intégrant le démarrage et l'arrêt. Pour la centrale mobile, la consommation en fuel est relevée ponctuellement au niveau de l'automate de la centrale.

Conditions météorologiques : Les émissions gazeuses à l'atmosphère sont liées à la consommation en gaz naturel, induite pour les conditions de fabrication des différentes modalités ainsi qu'à la température ambiante pour les conditions extérieures. Cela nécessite de connaître ces conditions extérieures. Les paramètres concernés (température, vent, pluie) sont enregistrés à partir d'une station météo. La pression atmosphérique est mesurable à l'aide d'un baromètre, au pied de la cheminée.

Analyse des gaz de combustion : Les analyses de gaz sont réalisées à partir de prélèvements effectués dans la cheminée d'évacuation du flux gazeux à l'atmosphère, au niveau de la bride normalisée. Ces mesures permettent de quantifier les rejets gazeux polluants.

Vérifications de fabrications : Pour une expérimentation en conditions dédiées de fabrication, la comparaison des modalités entre elles (en matière de comportement mécanique) nécessite la vérification de la constance de la courbe granulométrique des constituants et de la teneur en liant. Toutes les analyses sont réalisées postérieurement à l'expérimentation, au LCPC Nantes. La caractérisation mécanique des enrobés fabriqués est réalisée à partir de plaques d'enrobés confectionnées sur place pendant le jour de la fabrication. La caractérisation du liant d'apport est effectuée à partir d'un prélèvement lors de l'approvisionnement au niveau du porteur de bitume. Ce liant a été stocké dans une cuve à liant du parc routier préalablement vidée pour éviter tout mélange et permettre de garantir la provenance du bitume. Pour l'expérimentation en conditions usuelles de fabrication, la comparaison des modalités entre elles en matière de comportement mécanique n'a pas été réalisée. Compte tenu de sa mise en œuvre sur le chantier, il est considéré que l'enrobé fabriqué présente une bonne qualité.

Arrêts en charge : Parmi les interventions du chef de poste, les « arrêts en charge » méritent d'être détaillés. Il s'agit d'un arrêt consécutif à des contraintes chantiers (par exemple un manque de camions) et pour lequel l'enrobé bitumineux reste à l'intérieur du tambour du TSE. Le temps d'arrêt peut varier de quelques minutes jusqu'à deux heures environ (pause déjeuner). Pendant cette période, le brûleur et l'exhausteur sont arrêtés, la cadence chute à zéro et les émissions organiques sont dues simplement au refroidissement lent de l'enrobé.

1.2.2 Objectifs du travail à chaque échelle d'étude

La difficulté du développement d'une étude fine du procédé est basée tout d'abord sur le fait qu'il faut préciser une durée suffisante de production et un nombre pertinent de formules fabriquées à considérer. Les résultats des mesures des émissions obtenus lors des campagnes de mesures sur site englobent non seulement les émissions dues au phénomène de

combustion en centrale, mais également celles provenant du chauffage des matériaux bitumineux (Figure 2-14) .

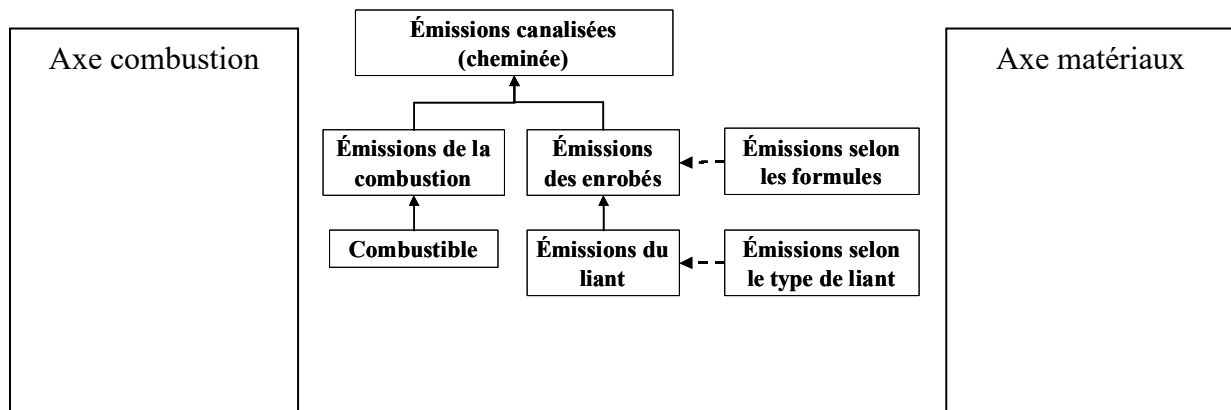


Figure 2- 14 Contexte des émissions étudiées

Tout en considérant ces deux axes d'études, il s'agit d'abord d'étudier les émissions en conditions quelconques de production en centrale pour en obtenir des plages d'émissions courantes, d'étudier l'influence des paramètres de fonctionnement et de la consommation de ressources sur les émissions et de développer une méthodologie de mesures spécifiques à la thèse. Pour valider cette méthodologie on s'appuiera notamment sur de mesures d'un organisme agréé.

Compte tenu de la complexité du procédé centrale d'enrobage TSE et de l'origine des émissions, il s'agit au fur et à mesure de mettre en place une méthodologie de collecte et d'analyse des données à plusieurs échelles visant à découpler les sources d'émissions combustion/matériaux. Au fur et à mesure qu'on diminue l'échelle d'analyse, les émissions engendrées deviennent de moins en moins complexes. Dans le cadre de cette diminution de l'échelle d'étude des émissions, la masse de bitume (ou d'enrobé bitumineux) utilisée devient également moins importante (Figure 2- 15).

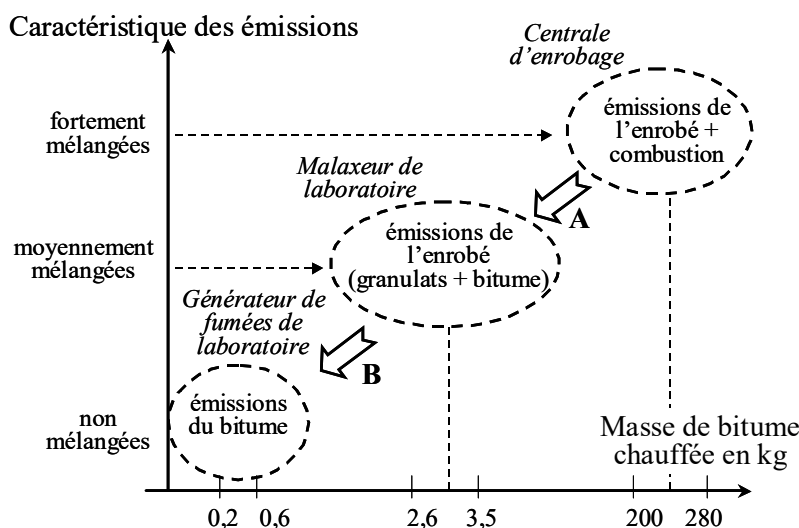


Figure 2- 15 Complexité d'émissions analysées : Sources d'émission en relation avec la masse de bitume chauffée

Ensuite, l'étude en laboratoire est basée sur la fabrication des enrobés à chaud, le prélèvement et l'analyse des fumées engendrées, et l'étude des relations entre les

performances mécaniques et le vieillissement du bitume. Il s'agit d'identifier et de décorréler l'effet du matériau sur les émissions en fonction de différents facteurs de fabrication, en relation avec la qualité des matériaux produits. Ceci a nécessité la mise au point de méthodes de caractérisation couplées à des performances (mécaniques et environnementales) applicables avec une fiabilité suffisante pour discriminer différentes nuances de matériaux en laboratoire. L'étude expérimentale en laboratoire a donc été poursuivie pour mesurer et caractériser les émissions du bitume seul chauffé.

L'objectif consistant à séparer la source matériau de la source combustion sera réexaminé au fur et à mesure de l'étude.

2 Méthodologie d'étude à chaque échelle

2.1 Principes de mesures des émissions aux différentes échelles

La totalité de l'étude est basée sur des essais dont l'échelle correspond à la masse de matériau étudié. Les polluants caractérisés sont : CO_2 , CO, NO_x , SO_2 , COT et CH_4 .

Compte tenu de la complexité des campagnes de mesures, soit au niveau administratif, soit au niveau technique, il a été nécessaire de procéder par étapes : Les premières mesures d'émissions ont été réalisées au début de la thèse, par des organismes agréés disposant d'analyseurs spécifiques.

Dans le cadre de la thèse, avec la mise à disposition de l'analyseur ECOM par le CORIA et de l'acquisition par le LCPC d'un appareillage FID (annexe 3.2), des mesures ont été réalisées par nos soins, en centrale d'enrobage et en laboratoire. Dans le cas de la centrale d'enrobage, la mise en place de l'instrumentation en cheminée s'est déroulée en 2 temps : avec l'analyseur ECOM puis avec l'analyseur FID. Dans le cas du laboratoire, seul l'analyseur FID a été utilisé puisqu'il n'y a pas de combustion.

2.2 Méthodologie d'étude des émissions lors de l'enrobage en centrale

2.2.1 Conditions de production étudiées et objectifs

Dans les conditions de production retenues pour l'étude sur site industriel, les données recueillies dans le cadre des campagnes de mesures, sont représentatives soit d'une heure, d'une journée, d'une semaine ou d'une année. Selon les cas, l'analyse de données utilise :

- Les archives du chef du poste (en général, à la semaine et pour une année) ;
- Les Collectes effectuées au cours de campagnes scientifiques (en général pour une heure et pour une journée).

L'analyse des données passe donc avant tout par la détermination de l'échelle d'observation, l'interprétation des résultats et notamment la relation qui existe entre les différentes échelles et les réflexions qu'on peut en déduire sont fonction de l'échelle temporelle prise en compte (Figure 2- 16).

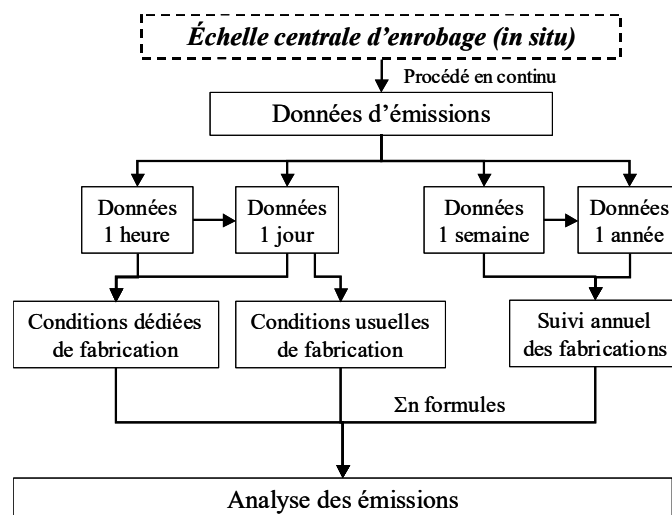


Figure 2- 16 Les échelles temporelles d'analyse utilisées – centrale d'enrobage

L'exploitation des résultats proposés dans la suite est liée à la méthodologie d'obtention des données. Pour chaque donnée définie comme exploitable et valide, on s'intéresse à l'échelle de temps de la mesure. Il s'agit d'interpréter les données qui sont représentatives du phénomène à analyser et d'obtenir les réponses selon les objectifs liés aux principales échelles.

2.2.2 Méthodologie de collecte de données centrale

Les campagnes de mesures réalisées avec les deux TSE disponibles ont regroupé à la fois des conditions dédiées, avec fabrications spécifiques et des conditions usuelles, avec fabrications diverses selon les besoins des chantiers. Les données brutes ainsi obtenues sont rassemblées dans le Tableau 2 - 4. La chronologie des essais tient aux possibilités d'expérimentations sur site : soit l'été. La progression dans la prise en main des mesures est précisée dans le Tableau 2 - 4.

Tableau 2 - 4 – Mesures réalisées sur les centrales d'enrobage (TSE fixe au gaz naturel et TSE mobile au fuel lourd)

Campagne de mesures centrales (Stratégie de fabrication des mesures)	Dates	Formules fabriquées	Réalisation de mesures d'émissions	Objet
TSE fixe Gaz naturel (Conditions Usuelles – U1)	20 juillet, 9 et 10 septembre 2004	GB, BBSG et BBTM	LCPC ^a (ECOM)	Premiers essais
TSE fixe Gaz naturel (Conditions Dédiées – D3)	7 septembre 2004	GB 0/14	EUROFINS ^b	-
TSE fixe Gaz naturel (Conditions Dédiées – D3)			LCPC ^a (ECOM)	Validation (mesures en parallèle)
TSE mobile Fuel lourd (Conditions Usuelles – U2)	Juillet et août 2006	GB, BBSG et BBTM	LCPC ^a (ECOM et FID)	Exploitation

^a Avec les analyseurs du LCPC et du CORIA

^b Organisme agréé

Par rapport aux types de mesures existantes, nous disposons (Figure 2-17):

- des mesures d'émissions réalisées en continu (données brutes) qui sont exprimées soit en concentration en partie par million (mg/kg), pour le NO_x, le CO, le COT, le CH₄ et le SO₂, soit en % du volume gazeux pour le O₂ et le CO₂ ;
- des mesures d'émissions réalisées par prélèvements, dans le cas des HAP, qui sont exprimées en µg pour un volume prélevé donné (m³) et dans un temps donné, ce qui conduit à des flux ;
- des mesures des paramètres de fonctionnement obtenues en continu, normalement enregistrées par des logiciels intégrés aux matériels : débit de granulats, débit de bitume, consommation en combustible ;
- des mesures des paramètres de fonctionnement obtenues ponctuellement : allure du brûleur, dépression du système.

La Figure 2-17 précise également quelles sont les conditions de suivi des différentes mesures en continu ou pas.

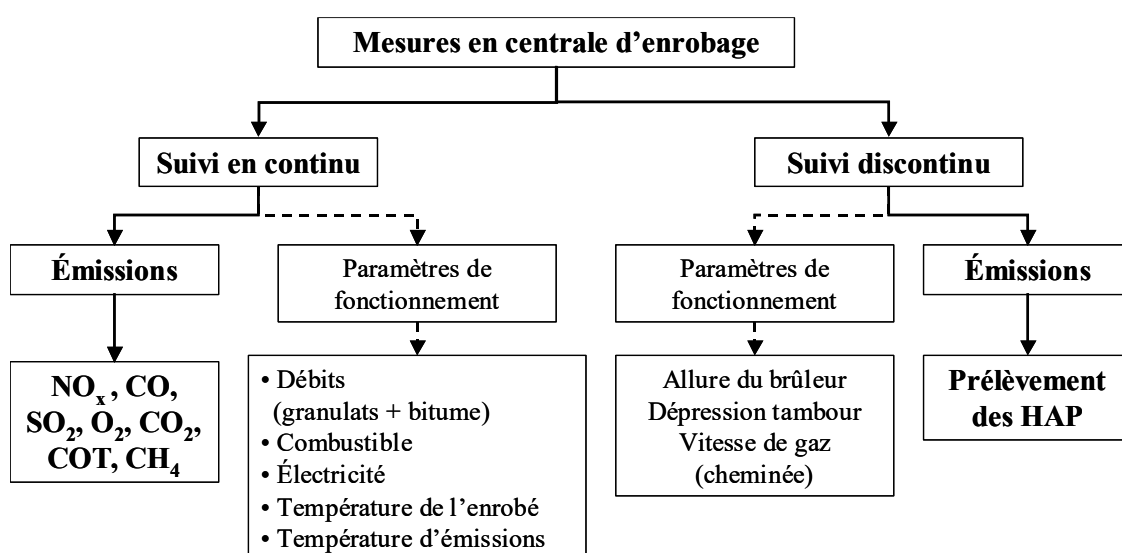


Figure 2- 17 Types de mesures réalisées dans une centrale d'enrobage TSE

- *Paramètres de conversion*

En relation avec l'arrêté de 1998 et avec l'approche environnementale globale de plages d'émissions, il est nécessaire d'exprimer les résultats de mesures soit en concentration, soit en flux. Les données nécessaires à ces conversions sont présentées dans le Tableau 2 – 5.

Tableau 2 - 5 – Paramètres calculés [Paranhos et al, 2005]

Paramètres calculés	Unité	Remarques
Vitesse des fumées	m/s	Calculée avec la pression dynamique mesurée avec un tube de Pitot sur les gaz aux conditions de service
Teneur en eau des fumées	kg/Nm ³	Récupération de l'eau par prélèvement sur un condenseur, rapporté au volume prélevé, sec, normé à 0 °C, 1013 hPa
Masse volumique des fumées aux conditions normales	kg/Nm ³	Masse volumique et proportion de chaque constituant du mélange gazeux considéré: N ₂ , O ₂ , CO ₂ et CO, H ₂ O
Débit volumique humide	m ³ /h	Calculé en fonction de la vitesse et de la section de la cheminée
Débit volumique normé humide	Nm ³ /h	Valeurs de normalisation : 1013 hPa et 0 °C
Débit volumique normé sec	Nm ³ /h	Calculé en fonction du débit volumique normé humide et de la teneur en eau des fumées
Concentration volumique moyenne sur une période stabilisée	% ou mg/kg	Calculé en fonction des concentrations mesurées en continu

Nm³ : volume de référence appelé normal mètre cube. C'est la quantité de gaz qui, à une température de zéro (0) degré Celsius (273,15 Kelvin) et sous une pression absolue de 1,01325bar (une atm au niveau de la mer), occupe un volume de un (1) mètre cube.

Les mesures de vitesse des fumées en cheminée ont été réalisées avec un tube de Pitot double relié à un micromanomètre numérique au début de chaque modalité de fabrication, selon la norme ISO 10780 [ISO, 1994]. La teneur en eau de l'effluent gazeux, exprimée en kg/Nm³, a été calculée en mesurant la masse d'eau recueillie dans la bouteille à condensât utilisée pour le prélèvement des HAP, rapportée au volume prélevé, sec, normé à 0 °C, 1013 hPa.

- *Méthode de mesures - fréquence d'échantillonnage*

Les conditions de mesure sont les résultats d'un compromis entre les contraintes de l'expérimentation et donc celles du chantier en particulier la nécessité de procéder pour obtenir une bonne représentativité des résultats de mesures obtenus. La base de données obtenue à exploiter est composée de paramètres et de mesures décrites dans le Tableau 2 - 6.

Tableau 2 - 6 – Ensemble des paramètres bruts issus de la campagne de mesures en conditions dédiées de fabrication sur le TSE fixe au gaz naturel

	<i>Paramètres</i>	<i>Mesures</i>
Mesures en continu lors de la campagne de mesures en chaque modalité de fabrication	Temps	Toutes les mesures (émissions et paramètres de fonctionnement) sont prélevées avec l'heure exacte du prélèvement
	Émissions dans la cheminée: O ₂ , CO ₂ , SO ₂ , CO, NO _x , COT et CH ₄	Mesures exécutées à l'aide des analyseurs en continu, avec une fréquence d'échantillonnage de l'ordre de la minute, et recalculées en valeurs normées à 0 °C, 1013 hPa, sur gaz humides, avec correction à une teneur en oxygène de référence
	Débit de production	Mesures exécutées par le logiciel d'acquisition de données, valeur moyenne toutes les 30 secondes
	Débit de bitume	
	Température du bitume	
	Température des enrobés	
	Température des fumées (cheminée)	Mesures exécutées par le pupitre de commande de la centrale, une valeur toutes les minutes
	Dépression dans la cheminée	
	Consommation en gaz naturel	
Mesures discontinues lors de la campagne de mesures en chaque modalité de fabrication	Émissions dans la cheminée: HAP	Prélèvements exécutés pendant 30 min d'une période « stabilisée »
	Vitesse gaz	Mesure exécutée une fois au début d'une période stabilisée (identique à celle pour le prélèvement des HAP)
	Allure brûleur	Mesures exécutées par un technicien dans le pupitre de commande, environ toutes les 5 minutes
	Dépression au nez du brûleur	
	Température des fumées (cheminée)	
	Température du bitume	
	Température des enrobés	
Essais laboratoire sur échantillon centrale selon la modalité de fabrication	Pénétrabilité	Essais normalisés sur bitume frais, sur bitume extrait et sur éprouvettes trapézoïdales d'enrobé selon leur modalité de fabrication
	Température bille et anneau (TBA)	
	Spectrométrie infrarouge (IRTF)	
	Module complexe du bitume	
	Module complexe de l'enrobé	
	Teneur en asphaltènes	

2.2.3 Méthodologie d'exploitation des résultats

La méthodologie d'analyse de données décrite ci-après a pour but d'étudier la variabilité des mesures réalisées, de comprendre l'influence respective des sources d'émission (enrobés, combustible) et d'associer des « valeurs » environnementales à des formules d'enrobés selon les conditions de fabrication (plages d'émissions). Les étapes de la méthode, élaborée à partir de tous les essais réalisés, sont présentées dans la Figure 2-18.

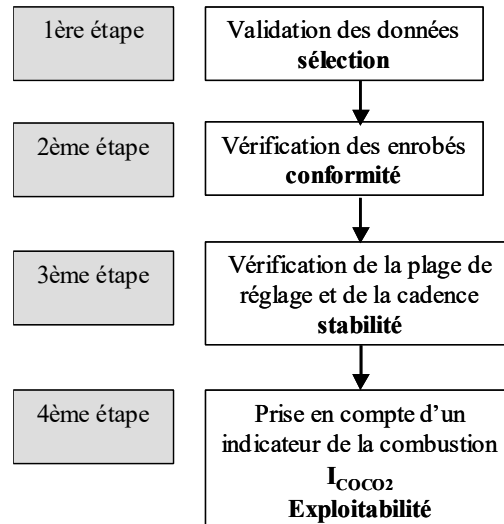


Figure 2- 18 Étapes de la méthode d'exploitation des données centrale

1^{ère} étape :

Validation des données

- i. Éliminer les valeurs qui ne sont pas cohérentes au cours du temps, comme un analyseur débranché ou des valeurs négatives ;
- ii. Éliminer toutes les valeurs comprises dans les phases de démarrages, d'arrêts et de changements de formule fabriquée par la centrale. Les données de CO₂, CO et O₂ et la synchronisation des mesures rendent possible cette étape ;
- iii. Vérifier la cohérence des mesures des différents analyseurs et des informations sur les consommations. Pour la cohérence de données, il ne s'agit pas seulement de comparer l'allure des résultats des émissions entre elles en fonction du temps mais aussi de comparer entre eux les paramètres de fonctionnement de la centrale. Pour cela, les données de consommation de combustible en continu, l'allure du brûleur, la dépression à l'intérieur du sécheur enrobeur sont indispensables. La consommation est liée à l'allure du brûleur et à la vitesse de gaz. L'émission de CO₂ est liée à la consommation ;
- iv. Corrections des dérives de l'appareillage : Des éventuelles corrections sont nécessaires pour compenser les dérives d'étalonnage des analyseurs de mesures utilisés. Ces dérives peuvent intervenir entre le départ et la fin des mesures. La correction à appliquer est de type $y = a \cdot x + b$ et représente une déviation de la ligne de base de mesures selon le schéma de la Figure 2- 19.

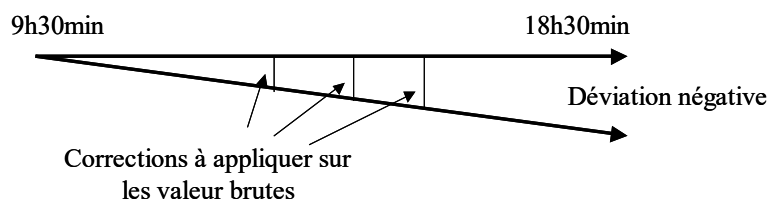


Figure 2- 19 - Déviations négatives (corrections) à appliquer, le cas échéant, sur des valeurs brutes de mesures réalisées

- v. Conversion des émissions en mg/Nm^3 humides : Une homogénéisation des unités de mesures est nécessaire. Les données brutes sont exprimées soit en pourcentage soit en mg/kg (parties par million) et s'appliquent sur des gaz secs ou humides. Une transformation concerne le passage des mg/kg en mg/Nm^3 . Cette transformation s'effectue à partir de la formule suivante :

$$\frac{\text{mg}}{\text{Nm}^3} = \text{ppm} \cdot \frac{M_v}{22,4} \quad (2 - 1)$$

Où M_v = masse volumique du constituant analysé.

Pour les polluants analysés, ceci se traduit par les facteurs de correction suivants : 1,25 pour le CO, 2,05 pour le NO_x , 2,86 pour le SO_2 , 1,608 pour le COT et CH_4 .

Les émissions gazeuses sont exprimées par rapport à des gaz humides. Pour les appareils qui fonctionnent sur des gaz secs, il est nécessaire de convertir les valeurs brutes selon la formule suivante :

$$\frac{\text{mg}}{\text{Nm}^3_{\text{humide}}} = \left(1 + \frac{\text{taux humidité}}{0,804}\right) \frac{\text{mg}}{\text{Nm}^3_{\text{sec}}} \quad (2 - 2)$$

2^{ème} étape :

Vérification de la conformité des enrobés produits

Pour définir une période conforme dans la plage de fonctionnement d'une centrale d'enrobage, on se base sur des considérations liées au mode de fabrication des enrobés. Notamment deux aspects sont pris en compte :

- i. Il s'agit d'un équipement normalisé, la norme en vigueur [NF P 98-701] préconise que la centrale doit assurer:
 - le dosage des granulats et des liants hydrocarbonés chauds dans des proportions définies par la formulation ;
 - le séchage et le chauffage à une température prédéterminée pour la production de matériaux traités aux liants hydrocarbonés chauds;
 - le traitement des gaz issus du séchage et du chauffage de manière, d'une part à récupérer les fines, et d'autre part à limiter la pollution atmosphérique (dépoussiéreur) ;
 - l'homogénéisation du mélange.
- ii. Il s'agit d'un produit normalisé (l'enrobé bitumineux), la norme en vigueur [NF P 98-150] préconise :

- que la plage de température de fabrication des enrobés respecte les plages tolérées par le bitume pur (Tableau 2 - 7) ;
- que la variation de température maximale des enrobés en sortie de tambour est de $\pm 5^{\circ}\text{C}$;

Tableau 2 - 7 Plages de températures de fabrication des enrobés selon le bitume pur utilisé d'après la norme [AFNOR,1992b]

Catégorie du bitume pur	Température de fabrication ($^{\circ}\text{C}$)
Classe 180/220	130 – 150
Classe 70/100	140 – 160
Classe 50/70	145 – 165
Classe 40/50	150 – 170

La démarche qui permet d'aboutir à la détermination d'un période conforme est résumée en Figure 2- 20.

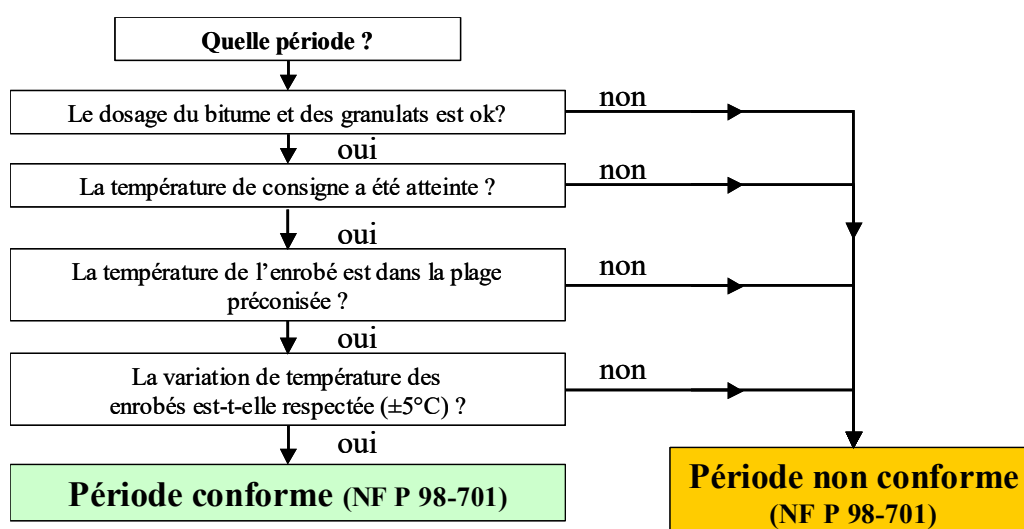


Figure 2- 20 Définition des périodes « conforme » au niveau des fabrications et des émissions dans une centrale d'enrobage

3^{ème} étape :

Vérification de la plage de réglage et de la cadence - période stabilisée

Au-delà des exigences de la norme, être dans une « période stabilisée » au niveau des émissions signifie aussi avoir une fabrication dans la plage de réglage du brûleur qui respecte la cadence horaire choisie et qui respecte la cohérence entre les données. Même si la norme NF P 98-150 ne parle ni du réglage du brûleur ni des émissions engendrées, une production en dehors du réglage engendre des émissions bien au-dessus (voire extrêmement élevées) de celles obtenues dans la plage réglée.

La troisième étape est résumée dans le schéma logique de la Figure 2-21.

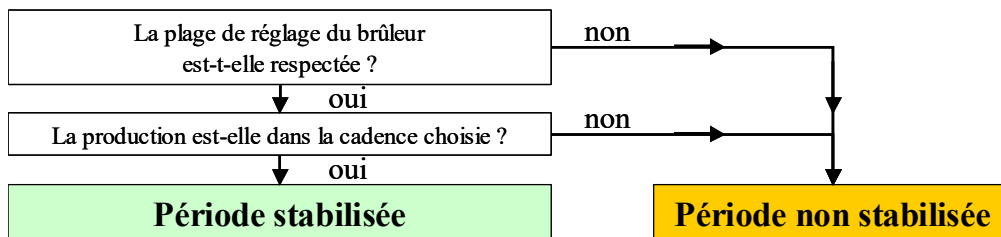


Figure 2- 21 Définition des périodes « stabilisée » au niveau des fabrications et des émissions dans une centrale d'enrobage

Les données doivent être analysées différemment en fonction des écarts existants qu'ils soient voulus ou non voulus. Les écarts de fonctionnement « voulus » sont les éventuelles modifications de réglages (ou choix) réalisées par le chef du poste.

Les écarts de fonctionnement « non voulus » sont aussi non contrôlés par le chef du poste. Il s'agit des changements survenant pour les matériaux, le combustible ou le brûleur. Dans le cas des matériaux, c'est la teneur en eau des granulats (et des recyclés) qui est la plus importante comme précisé en début de chapitre 2 (figure 6) ; dans le cas des combustibles, ce sont des changements dans leurs compositions, pressions ou températures d'approvisionnement qui peuvent survenir. Enfin, concernant le brûleur, l'allure imposée au niveau du poste en changeant la cadence ou la température de production peut conduire à le faire fonctionner en dehors de sa plage de réglage.

La différence entre période stabilisée et non stabilisée conduit à des fluctuations différentes des valeurs prises en compte. Les valeurs considérées « faiblement fluctuantes » sont utilisées pour des études fines des conditions de production de l'enrobé (température, cadence). Il s'agit d'étudier dans le détail les relations entre les paramètres et les émissions engendrées. Les valeurs considérées comme « fortement fluctuantes » sont utilisées pour étudier les écarts de procédé. C'est le cas, par exemple, des données obtenues en dehors de la plage de réglage du brûleur et qui serviront pour les études sur la combustion et des pics élevés de CO existants.

4ème étape :

Prise en compte d'un indicateur de la qualité de la combustion

Cette étape consiste à analyser les pics d'émission existants, la consommation en continu et le paramètre « allure du brûleur ». Les pics sont liés à une mauvaise combustion et les données obtenues peuvent être altérées. La consommation en combustible et l'allure du brûleur sont des indicateurs pour confirmer les soucis de combustion, en relation avec la plage de réglage.

2.2.4 Étude d'un indicateur de la qualité de la combustion

Afin de générer un minimum de pollution, il est nécessaire d'avoir la combustion la plus complète possible (annexe 2.1). La qualité de la combustion peut être appréciée au moyen d'un suivi de la concentration en monoxyde de carbone. À partir d'un niveau de CO mesuré et d'un niveau de CO₂ mesuré ou calculé en fonction de la teneur en oxygène, on obtient un rapport CO/CO₂ qui est un indicateur de la qualité de la combustion. L'apparition de CO indique que l'excès d'air, la température de flamme ou le temps de séjour des gaz dans la zone de combustion sont insuffisants. Une mauvaise qualité de combustion se traduit également par la formation d'autres polluants tels que les composés organiques volatils et les hydrocarbures lourds présents essentiellement sous forme particulaire.

Dans le cas de l'utilisation de l'analyseur ECOM (annexe 3.1), la teneur en CO₂ est calculée en considérant l'hypothèse d'une combustion complète avec excès d'air où le pourcentage de CO₂ est déduit de la mesure d'O₂ et exprimé en fonction du volume de fumées sèches de la façon suivante :

$$CO_{2\text{calculé}} = CO_{2\text{max}} \times \frac{(0,21 - O_{2\text{mes}})}{0,21} \quad (2 - 3)$$

Le CO_{2max} dépend du type du type de combustible. L'indicateur de combustion est donc :

$$I_c = \frac{CO}{CO_2} \quad (2 - 4)$$

Le tri des données en fonction de l'indicateur de combustion consiste à classer les plages des données selon une bonne ou mauvaise combustion :

- i. Regarder les valeurs d'émission et de paramètres de fonctionnement au cours du temps. La comparaison des valeurs directement en mg/kg (valeurs brutes) n'est possible que pour une modalité fixe en fabrication stabilisée ;
- ii. Les données classées « mauvaise combustion » doivent être repérées. Une étude des écarts du procédé est réalisée dans le souci d'obtenir des valeurs moyennes, qui peuvent aider dans la détermination de ces écarts.

2.3 Méthodologie d'étude des émissions lors du malaxage en laboratoire

2.3.1 Conditions d'élaboration étudiées et objectifs

L'analyse réalisée vise à mettre en relation les émissions de fumées issues de la fabrication de l'enrobé en laboratoire avec les émissions potentielles du bitume seul, en fonction des conditions de fabrication. Après le malaxage et le prélèvement de fumées, l'évolution physique et chimique subie par le bitume (vieillissement du bitume) est étudiée. Pour étudier les propriétés de l'enrobé et du bitume, différents essais sont réalisés (annexe 1) (Figure 2- 22).

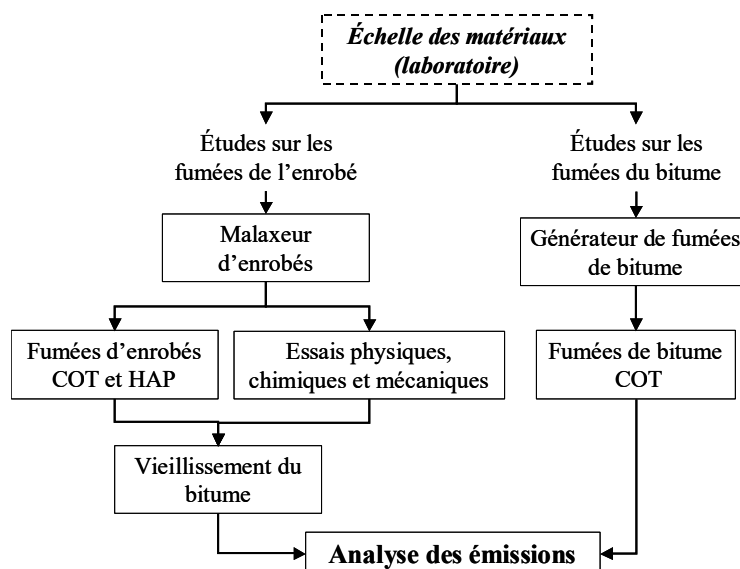


Figure 2- 22 Études expérimentales réalisées en laboratoire

Pour étudier les propriétés de l'enrobé et du bitume, des essais physiques, chimiques, physico-chimiques et mécaniques sont réalisés (Tableau 2 - 8). Dans tous les cas, il a fallu extraire le bitume de l'enrobé bitumineux par des méthodes appropriées (annexe 1.1).

Tableau 2 - 8 – Essais de caractérisation réalisés en laboratoire dans le cadre de la thèse

Essais	Physiques	Chimiques	Physico-chimiques	Mécaniques
Enrobé				Module complexe
Bitume pur ou extrait de l'enrobé	Pénétrabilité	Spectrométrie infrarouge	Vieillessement accéléré (RTFOT)	Module complexe
	Température Bille et Anneau (TBA)	Distillation simulée		
		Teneur en asphaltènes (IATROSCAN)		

La qualité des matériaux produits a été évaluée à travers des essais reliés aux « performances » des matériaux et des essais de caractérisation classique du bitume extrait, couramment pratiqués au LCPC en début de la thèse (annexe 1). Pour ce faire, les essais traditionnels de pénétrabilité (PEN) et de température de ramollissement bille et anneau (TBA) ont été utilisés pour évaluer l'oxydation et le vieillissement du liant. Dans le cadre de la thèse, nous avons associé deux autres essais, chimique et mécanique, pour caractériser d'avantage le bitume. Il s'agit de :

- la Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) , qui est aussi un très bon indicateur d'oxydation du bitume car elle donne en % les liaisons C=O et S=O présentes dans le bitume [Durrieu et al, 2002] (méthode décrite dans l'annexe 1.2);
- le module complexe, obtenu à haute et à basse température (méthode décrite dans l'annexe 1.5).

2.3.2 Méthodologie de collecte de données laboratoire

Pour cette étude, les enrobés ont été fabriqués selon la norme européenne EN 12697-35 qui décrit les mélanges bitumineux et le malaxage en laboratoire. La méthode développée consiste à échantillonner les émissions gazeuses engendrées lors de la fabrication des mélanges hydrocarbonés à chaud destinés à la réalisation des essais de formulation ou de caractérisation en laboratoire, selon le schéma explicatif de la Figure 2- 23. Il convient de souligner que ce procédé, assimilable à une source canalisée, permet d'analyser les rejets polluants des enrobés bitumineux ayant uniquement pour origine les constituants, notamment le bitume. Les prélèvements et mesures de HAP ont été réalisés selon la norme française NF X 43329. L'analyse des Composants Organiques Totaux (COT) a été réalisée selon la norme française NF EN 13526 qui préconise la détermination de la concentration massique en carbone organique total par la méthode du détecteur continu à ionisation de flamme.

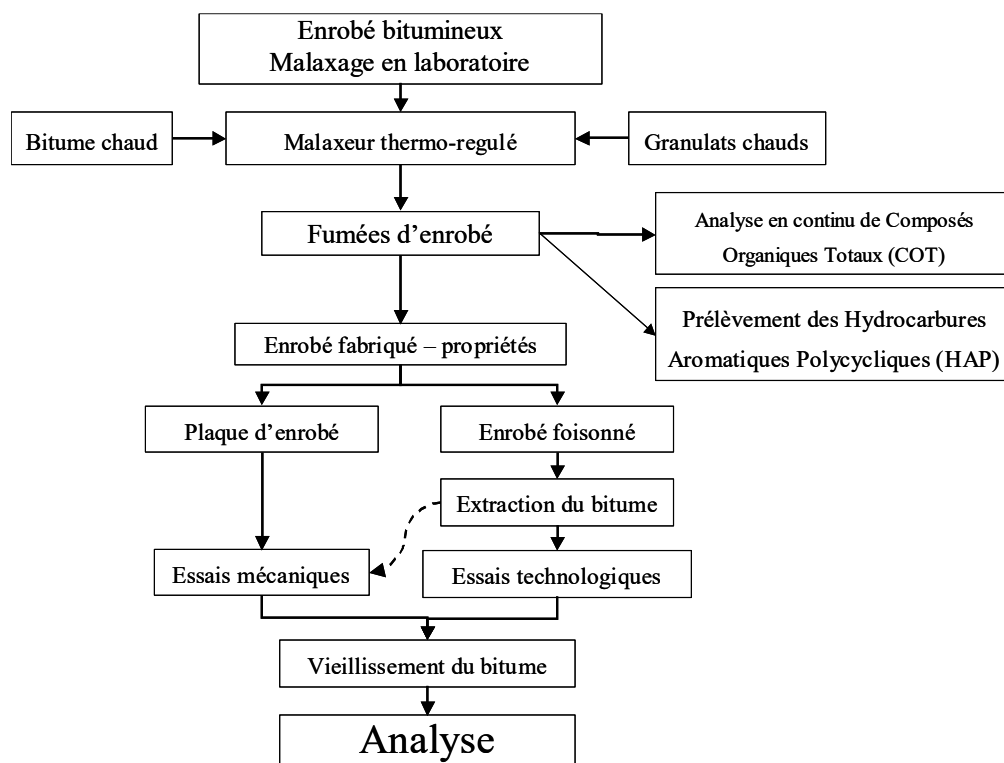


Figure 2- 23 Schéma des essais réalisés sur les enrobés bitumineux

Parallèlement aux émissions de l'enrobé, engendrées par un malaxeur thermo-régulé adapté aux prélèvements de fumées, les émissions du bitume, engendrées par des générateurs de fumées de bitume, ont aussi été étudiées. Le Tableau 2 - 9 présente les objectifs spécifiques de l'ensemble des essais réalisés en laboratoire.

Tableau 2 - 9 – Objectifs des essais sur le bitume et sur l'enrobé réalisés en laboratoire

<i>Campagne de mesures</i>	<i>Date</i>	<i>Formules</i>	<i>Objectifs</i>
Essais physiques et chimiques	2004	BBSG 1/10	Analyser la qualité de l'enrobé à plusieurs taux de recyclés et la teneur en eau lors d'une campagne de mesures sur le TSE fixe au gaz naturel à Blois.
Tous essais de caractérisation	2005	GB	Analyse de la qualité (conformité) et du vieillissement de l'enrobé fabriqué lors d'une campagne de mesures sur le TSE fixe au gaz naturel à Blois.
Malaxeur d'enrobé	2005 et 2006	GB et BBSG 0/14	Plan d'expérience sur l'enrobé bitumineux lors du malaxage en laboratoire pour étudier l'influence de la température, la teneur en liant et la volatilité du bitume sur les émissions et sur le vieillissement.
Générateur de fumées de bitume	2006	Bitume 35/50	Étudier l'influence de la température et l'agitation sur les émissions du bitume pur engendrées par de générateurs de fumées. Établir un lien entre les fumées de bitume et de l'enrobé.

2.3.3 Méthodologie d'exploitation des résultats

Les étapes de la méthode, élaborée à partir de tous les essais réalisés, sont présentées dans la Figure 2 – 24.

Les émissions organiques engendrées par l'enrobé sont, parmi d'autres réponses possibles, expliquées en fonction des facteurs utilisés et reliés aux indicateurs de qualité et de vieillissement du bitume. La méthode développée donne des caractéristiques environnementales à des formules d'enrobés bitumineux développées en laboratoire. Elle est assez générale pour être utilisée dans un autre laboratoire, en France ou au Brésil par exemple.

L'exploitation des résultats de mesures selon le plan d'expérience est décrite ci-après après avoir fixé des niveaux -1 et $+1$ des facteurs à étudier, il faut mesurer les réponses correspondantes y_1 et y_2 . L'hypothèse prend en compte que les réponses sont linéaires (Figure 2- 27) et le modèle mathématique est donné par :

$$y = a_0 + a_1 \times x \quad (2 - 6)$$

Où y est la réponse, x est le facteur étudié ; il varie de manière continue de -1 à $+1$ et il peut prendre toutes les valeurs entre ces deux bornes et a_0 et a_1 sont les coefficients.

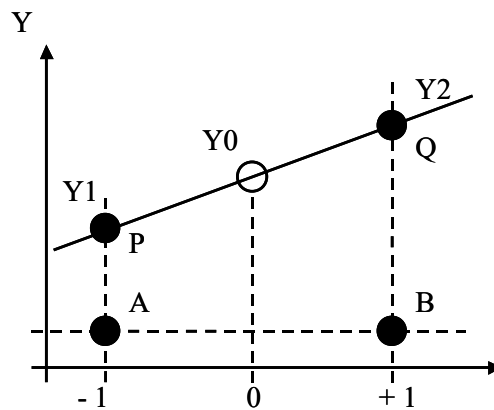


Figure 2- 27 Le facteur x prend toutes les valeurs entre -1 et $+1$. Les réponses varient linéairement avec x d'après [Goupy, 1988]

La signification de a_0 et a_1 est la suivante :

- au point expérimental A ($x = -1$)

$$y = a_0 - a_1 \quad (2 - 7)$$

- au point expérimental B ($x = +1$)

$$y = a_0 + a_1 \quad (2 - 8)$$

Ces deux équations donnent un système à deux inconnues a_0 et a_1 . On constate que

$a_0 = y_0$, moyenne de réponses :

$$a_0 = \frac{1}{2} [y_1 + y_2] = y_0 \quad (2 - 9)$$

Quant à a_1 , c'est la pente de la droite d'isoreponses PQ

$$a_1 = \frac{1}{2} [y_2 - y_1] \quad (2 - 10)$$

Alors,

$$y = \mu + E \times x \quad (2 - 11)$$

où μ = moyenne et E = effet.

On suppose que chaque facteur agit linéairement et additivement sur la réponse. Si les deux variables x_1 et x_2 sont continues, le modèle mathématique prend la forme suivante, sans interaction :

$$y = a_0 + a_1 \times x_1 + a_2 \times x_2 \quad (2 - 12)$$

S'il y a des interactions, le modèle prend en compte cette particularité et s'écrit alors :

$$y = a_0 + a_1 \times x_1 + a_2 \times x_2 + a_{12} \times x_1 \times x_2 \quad (2 - 13)$$

Où

- y est la réponse ;
- x_1 est la variation du facteur 1 entre -1 et $+1$;
- x_2 est la variation du facteur 2 entre -1 et $+1$;
- a_0, a_1, a_2 et a_{12} sont les coefficients.

Pour le plan d'expériences 2^2 avec seulement deux facteurs étudiés, nous avons :

$$y_1 = a_0 - a_1 - a_2 + a_{12} \quad (2 - 14)$$

$$y_2 = a_0 + a_1 - a_2 - a_{12} \quad (2 - 15)$$

$$y_3 = a_0 - a_1 + a_2 - a_{12} \quad (2 - 16)$$

$$y_4 = a_0 + a_1 + a_2 + a_{12} \quad ((2 - 17)$$

Matrice d'effets

Et,

$$a_0 = \frac{1}{4} [y_1 + y_2 + y_3 + y_4] \quad (2 - 18)$$

$$a_1 = \frac{1}{4} [-y_1 + y_2 - y_3 + y_4] \quad (2 - 19)$$

$$a_2 = \frac{1}{4} [-y_1 - y_2 + y_3 + y_4] \quad (2 - 20)$$

$$a_{12} = \frac{1}{4} [y_1 - y_2 - y_3 + y_4] \quad (2 - 21)$$

Où

- a_0 = moyenne ;
- a_1 = effet facteur 1 ;
- a_2 = effet facteur 2 ;
- a_{12} = interaction entre 1 et 2.

Le modèle mathématique associé devient :

$$y = \mu + E_1 x_1 + E_2 x_2 + E_{12} x_1 x_2 \quad (2 - 22)$$

Le modèle permet non seulement de retrouver les réponses expérimentales mais aussi de calculer « y » pour toutes valeurs de x_1 et x_2 comprises entre -1 et $+1$. Alors il est possible tracer des courbes de même réponse des facteurs étudiés, appelées « iso courbes ».

La méthode utilisée permet le calcul des effets, des interactions et de la moyenne à partir des réponses. Enfin, elle peut garantir que les effets et les interactions calculés étaient obtenus avec la meilleure précision possible.

Les résultats montrés se généralisent aux plans 2^3 , 2^4 , 2^5 ,... 2^k avec l'introduction d'autres facteurs dans l'étude. Le modèle associé à ces plans comprend :

- Un terme constant a_0 qui est la moyenne de toutes les réponses ;
- k coefficients associés aux facteurs ; ces coefficients sont les effets principaux des facteurs correspondants ;
- C_q^k coefficients associés aux interactions d'ordre q ; ces coefficients sont les valeurs des interactions calculées avec la matrice des effets ;

La réponse de chaque essai peut être écrite en faisant référence au modèle associé au plan 2^k . Pour un plan 2^3 on aura :

$$y = \mu + E_1x_1 + E_2x_2 + E_3x_3 + E_{12}x_1x_2 + E_{13}x_1x_3 + E_{23}x_2x_3 + E_{123}x_1x_2x_3 \quad (2 - 23)$$

Comme pour le plan factoriel à deux niveaux, la stratégie en choisissant les points d'expériences retombe sur la définition du domaine expérimental. Il est défini en fonction des plages habituelles d'utilisation (Figure 2- 28). Les installations permettent de faire varier les facteurs dans cette plage, les niveaux maximum et minimum sont définis.

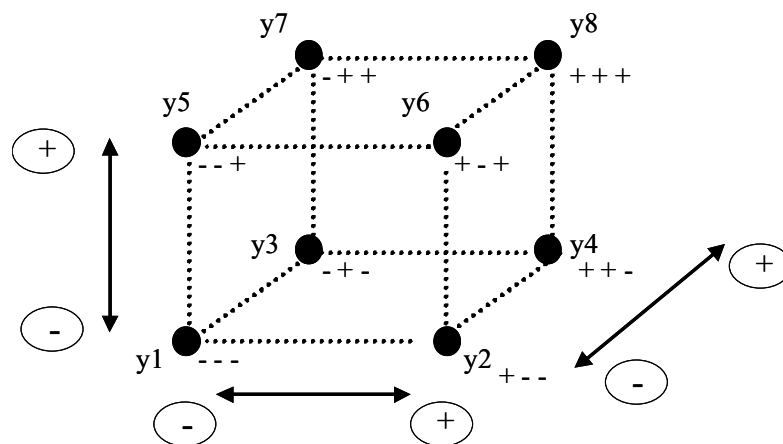


Figure 2- 28 Répartition des points expérimentaux dans le domaine expérimental 2^3 d'après [Goupy, 1988]

Dans ce cas, le modèle permet non seulement de retrouver les réponses expérimentales mais aussi de calculer « y » pour toutes valeurs de x_1 , x_2 et x_3 comprises entre -1 et $+1$. Il est possible tracer des surfaces d'iso réponse.

Pour représenter les essais on convient de symboliser par -1 le niveau bas de chaque facteur et par $+1$ le niveau haut. Il est possible de rassembler tous les éléments de l'expérimentation dans un tableau que l'on nomme matrice d'expériences ou matrice des essais (Tableau 2 – 10)).

Tableau 2 - 10 – Matrice d'expériences

		<i>Facteur 1</i>	<i>Facteur 2</i>	<i>Facteur 3</i>	<i>Réponses</i>
1ère étape (plan 2 ²) avec deux facteurs	Essai N°1	-	-	-	Y1
	Essai N°2	+	-	-	Y2
	Essai N°3	-	+	-	Y3
	Essai N°4	+	+	-	Y4
2ème étape (plan 2 ³) avec trois facteurs	Essai N°5	-	-	+	Y5
	Essai N°6	+	-	+	Y6
	Essai N°7	-	+	+	Y7
	Essai N°8	+	+	+	Y8
Facteur niveau bas (-)	Effets				
Facteur niveau haut (+)					

Chaque essai « y » est défini : pour l'essai n° 3, par exemple, le facteur 1 sera réglé au niveau bas, le facteur 2 sera réglé au niveau haut et le facteur 3 sera réglé au niveau bas. Il procède le même pour les autres expériences programmées et porte tous les résultats dans la matrice d'expériences.

2.3.4 Étude d'un indicateur du potentiel d'émission des matériaux

Des prélèvements des fumées sont réalisés en continu dans les générateurs de fumées (bitume et enrobé), grâce à un analyseur portatif et automatique (annexe 3.2). Cet équipement emprunte son mode de fonctionnement à la Chromatographie Gazeuse, la séparation des constituants se faisant à travers une phase stationnaire, et leur détection par un Détecteur à Ionisation de Flamme (FID), conformément à la norme NF EN 13526. Les mesures en continu des COT réalisées issues des bitumes et des enrobés, pendant une durée prédéterminée, et à une température donnée maintenue constante, conduisent toutes à une courbe en forme de « cloche » (Figure 2- 29). Dans le but de caractériser les émissions pour chacun des paramètres testés, nous avons défini les grandeurs suivantes :

- V_p, la valeur maximale de COT mesurée ou Valeur Pic ;
- V_r, la valeur résiduelle de COT mesurée ;
- T_p, le temps correspondent à la valeur de pic ;
- T_T, le temps correspondent à la valeur résiduelle ;

Cette courbe en « cloche » correspond aux constatations réalisés dans le contexte d'analyse des rejets gazeux lors de la mise en œuvre des enrobés chauds [Jullien et al, 2006b]. Une analyse a donc été adaptée en fonction des résultats trouvés. A ces définitions, il faut ajouter le Potentiel d'Émission (PE), qui nous avons défini comme étant la capacité à émettre des COT dans un intervalle de temps fixé. Mathématiquement le Potentiel d'Émission est la surface sous la courbe d'émission de COT, délimitée par les temps initial et final de la mesure réalisée.

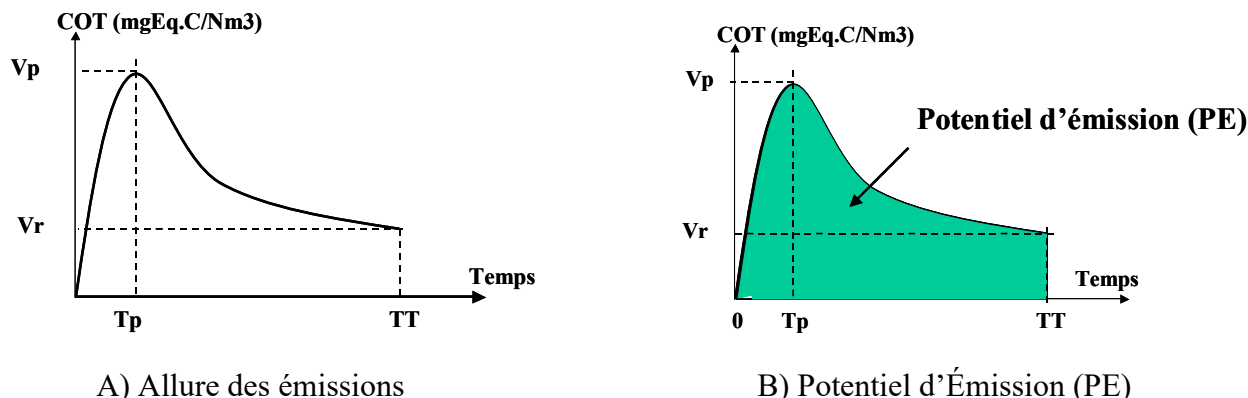


Figure 2- 29 Émissions de COT

Le calcul du Potentiel d'émission est réalisé par la méthode appelé « des trapèzes » où la valeur moyenne de deux mesures successives, multipliée par le temps consommé par l'analyseur pour réaliser ces mêmes mesures, est calculée pour toutes les mesures réalisées. Dans nos essais, les résultats partiels cumulés donnent le Potentiel d'émission selon l'équation suivante :

$$PE = \int_0^{TT} COT(t) \cdot dt \quad (2 - 24)$$

2.4 Retour sur l'échelle de départ

Compte tenu des deux échelles d'analyse envisagées, site industriel et laboratoire caractérisée chacune par un indicateur, l'attention sera portée sur le caractère intrinsèque ou non de ces indicateurs de manière à établir la possibilité de les corrélérer.

3 Conclusion du chapitre 2

La méthodologie de collecte de données développée dans le cadre de la thèse a été mise au point avec la centrale d'enrobage TSE fixe fonctionnant au gaz naturel, localisée à Blois et à partir de l'analyse de résultats de précédentes campagnes d'essais. Pour étudier les écarts et variations existants dans les centrales d'enrobage, des mesures en continu des émissions à l'air doivent être réalisées. Dans ce contexte, deux stratégies de mesures sur un site industriel « centrale d'enrobage » ont été prévues pour la thèse :

La campagne de mesures en conditions usuelles de fabrication est réalisée pour étudier les émissions de la centrale d'enrobage en conditions quelconques de fonctionnement. Dans ce cas, l'idée est de suivre une journée voire une semaine de production typique, y compris les arrêts, les démarrages, les changements de formules, des matériaux, de cadence et de température de production, pour établir les plages d'évolution des émissions gazeuse et des consommations énergétiques ;

La campagne de mesures en conditions dédiées de fabrication est réalisée pour étudier les émissions de la centrale d'enrobage en conditions maîtrisées de fonctionnement, de manière à étudier l'incidence d'un seul paramètre. Dans ce cas, l'idée est de ne rien altérer dans la consigne de production du départ (démarrage de la centrale) et d'analyser la production d'une seule formule. Les paramètres de fonctionnement les plus importants liés au procédé sont suivis en continu et les émissions dans la cheminée sont analysées, pour comparer des modalités de fabrication entre elles.

Par contre, l'analyse à l'échelle de l'année s'avère intéressante pour situer les campagnes d'expérimentations dédiées vis à vis du fonctionnement usuel et permet à la fin de rassembler tous les résultats. Les données collectées entre 1999 et 2003 montrent que les conditions météorologiques ont une influence directe sur la consommation en combustible via la température extérieure (saisons de l'année) ou l'humidité des granulats (teneur en eau) et, par conséquent sur les émissions engendrées.

Dans le cas des études en laboratoire, l'inconvénient principal est que nous ne sommes pas dans le même procédé qu'une centrale d'enrobage. En centrale, le procédé de malaxage est continu, avec renouvellement permanent du bitume. En laboratoire, ce procédé est discontinu, sans renouvellement du bitume. Il est nécessaire donc d'analyser les résultats de façon objective par rapport à la problématique initiale. Cependant, bien que cette fabrication en laboratoire soit discontinue, l'ensemble des réponses et facteurs étudiés permet de caractériser, à l'échelle des matériaux, une formulation donnée et de comprendre la relation entre les conditions de fabrication, les émissions et les propriétés du bitume.

CHAPITRE 3 - Étude du procédé TSE et de ses émissions

Introduction

L'étude des émissions réalisée dans ce chapitre nécessite d'effectuer des études paramétriques des conditions de fabrication. Dans ce but, les études de fabrications usuelles et de fabrications dédiées constituent deux stratégies de mesures complémentaires. Dans tous les cas les paramètres étudiés sont à la fois les formules d'enrobés à fabriquer, les paramètres de conduite de la centrale, les cadences de production et les températures d'élaboration.

Plus précisément, la campagne de mesures réalisée en conditions dédiées sur le TSE au gaz naturel avait comme objectif déterminer les plages d'émissions gazeuses pour les formules d'enrobés utilisant un liant classique 35/50, couramment utilisé par la profession, relever les consommations énergétiques et quantifier les rejets gazeux à l'atmosphère des polluants mentionnés dans l'arrêté du 2 février 1998.

Ensuite, les campagnes de mesures en conditions usuelles permettent d'étendre les réflexions englobant le problème du combustible. Par ailleurs, les résultats présentés sont ordonnés par ordre de finesse décroissante. Ainsi, la méthodologie d'analyse développée dans le cadre des conditions dédiées, comportant notamment l'évaluation de l'indicateur de combustion est appliquée aussi aux résultats obtenus en conditions usuelles.

1 Présentation des campagnes d'essais sur site

L'analyse de la combustion et des effets couplés matériaux/process a été entreprise d'abord sur le TSM 17 installé à poste fixe. Celle-ci a été ensuite poursuivie sur la centrale mobile du même type TSM 17. Les résultats de concentrations de polluants obtenus ont permis d'analyser, en relation avec le process, les plages d'émissions à l'atmosphère pour différentes fabrications d'enrobés utilisés en structures de chaussées. Les valeurs de flux sont quant à elles disponibles uniquement dans les conditions dédiées.

1.1 Enrobés produits lors des campagnes de mesures

1.1.1 Conditions dédiées de fabrication sur la centrale TSE fixe au gaz naturel

La formule retenue pour l'expérimentation réalisée sur cette centrale est une Grave Bitume 0/14 de classe 2 référencée dans le catalogue de production du Parc Routier de Blois, et dont la formulation est rappelée dans le Tableau 3 - 1 et sur la Figure 3-1 qui lui est associée.

Tableau 3 - 1 - Formule fabriquée en conditions dédiées (Grave bitume – GB 0/14)

Constituant	Pourcentage (%) en masse
Granulat 10/14	29,0
Granulat 6/10	18,0
Granulat 2/6	18,0
Sable 0/2	33,5
Filler	1,5
Total des granulats	100
Bitume 35/50	3,75

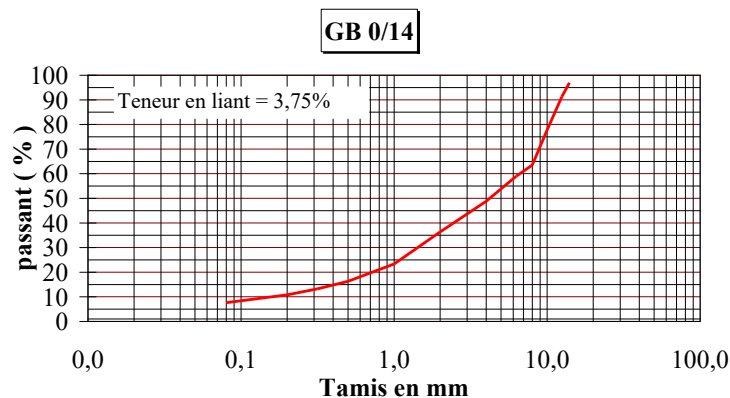


Figure 3 - 1- Granulométries des formules fabriquées en conditions dédiées

Pour s'affranchir de l'incidence des événements pluvieux sur la teneur en eau des sables fillerisés, qui sont les plus susceptibles à la pluviométrie, ceux-ci sont stockés à l'abri sur le site de Blois. Pour nos expérimentations, la teneur en eau de chaque composant granulaire est vérifiée en début de journée. La teneur en eau de l'ensemble de la formule en amont du sècheur est restée constante et égale à 1 % dans le cadre des conditions dédiées.

La qualité de l'enrobé fabriqué a été vérifiée par le LCPC en temps réel à partir de prélèvements réalisés en centrale (sortie des camions), avant transport vers le chantier. Parallèlement, des prélèvements de bitume d'apport ont été réalisés lors de son déchargement dans la cuve de la centrale d'enrobage, une semaine avant le début de la campagne de mesures. Les résultats obtenus à partir de ces prélèvements, 39 (1/10 mm) pour la pénétrabilité et 55 °C pour la TBA ont été considérés élevés et représentatifs d'un vieillissement du liant. Pour valider les mesures de pénétrabilité et TBA d'origine après transport et déchargement, des échantillons du même bitume ont été analysés à nouveau par le laboratoire de la raffinerie. Les résultats trouvés, 38 (1/10 mm) pour la pénétrabilité et 59,4 °C pour la TBA, ont confirmé les mesures réalisées par nos soins. Ces valeurs sont élevées pour un bitume routier frais. La seule explication possible des différences trouvées réside dans le transport, par camion, du bitume chaud, entre la raffinerie et la centrale d'enrobage. Il a été constaté que le bitume est arrivé à une température supérieure à 175 °C.

1.1.2 Conditions usuelles de fabrication sur les deux centrales

Pour la centrale fixe, les formules fabriquées lors des mesures ont été une Grave Bitume 0/14, un Béton Bitumineux Très Mince (BBTM) et quatre Béton Bitumineux Semi-Grenu BBSG 0/10, BBSG 0/14, BBSG 3D et BBSG 3G (nomenclature commerciale utilisée par le Parc Routier de Blois). Les courbes granulométriques de la Figure 3 - 2 et les formulations (Tableau 3 – 2) en sont rappelées ci-après. Ces formulations correspondent à des chantiers neufs et d'entretien.

Tableau 3 - 2 - Formules fabriquées en conditions usuelles

Constituant	Pourcentage (%) en masse						
	GB	GB	BBTM	BBSG 0/10	BBSG 0/14	BBSG 3D	BBSG 3G
	Gaz	Fuel	Gaz et fuel	Gaz et fuel	Fuel	Gaz	Gaz
Granulat 10/14	29,0	29,0	-	-	30,0	-	-
Granulat 6/10	18,0	18,0	73,0	43,0	17,0	49,0	42
Granulat 2/6	18,0	18,0	-	17,0	20,0	-	21
Recyclés (4,5% bitume)	-	-	-	10,0	-	-	-
Sable 0/2	33,5	33,5	23,5	28,5	30,5	48,0	35,5
Filler	1,5	1,5	3,5	1,5	2,5	3,0	1,5
Total des granulats	100	100	100	100	100	100	100
Bitume 35/50 classique	3,75	4,4	-	5,4	5,1	5,9	5,5
Bitume 10/40 polymère	-	-	5,40	-	-	-	-

Le bitume 35/50 utilisé est appelé « classique » par opposition au bitume 10/40 modifié par des polymères et utilisé lors des fabrications du BBTM. Dans le cas du bitume polymère analysé, il répond aux spécifications de la norme suisse SN 670 210.

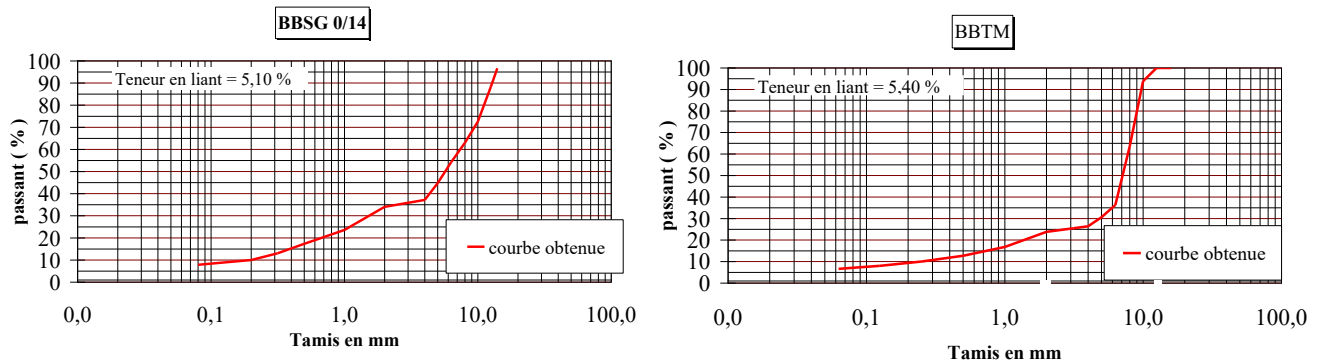


Figure 3 - 2 - Granulométries des formules fabriquées en conditions usuelles

Pour la centrale d'enrobage mobile aucun des granulats n'est à l'abri des intempéries et pendant les jours de nos expérimentations, la teneur en eau a varié, au gré des intempéries et des approvisionnements, de 1 à 1,4% (Tableau 3 - 3), ce qui constitue une petite amplitude de variation. Par ailleurs ces teneurs en eau sont similaires à celles des expérimentations en conditions dédiées.

Tableau 3 - 3 – Teneur en eau des formules utilisées (centrale mobile)

Formule	Teneur en eau (%)
GB0/14	1,1
BBSG 0/10	1,4
BBSG 0/14	1,3
BBTM	1,0

1.2 Présentation de l'instrumentation et déroulement des campagnes d'essai

1.2.1 Mesures réalisées

Comme détaillé dans le chapitre 2, l'ensemble des paramètres destinés à l'exploitation des résultats comprend le relevé des conditions de fonctionnement la centrale, les analyses de

gaz effectuées dans la cheminée d'évacuation à l'atmosphère, et les mesures des caractéristiques des rejets gazeux destinées aux conversions indispensables avant comparaison des volumes.

Les paramètres de conduite de la centrale sont relevés de façon ponctuelle dans la cabine de commande. Les informations concernant ces paramètres, les matériels utilisés et les lieux de prélèvements sont synthétisés dans le Tableau 3 - 4.

Tableau 3 - 4 – Ensemble de techniques de mesures des paramètres de fonctionnement

Type de mesure	Unités	Matériels utilisés	Lieu
Température des enrobés	°C	Mesure à l'aide d'un pyromètre infra rouge	Sortie tambour sécheur
Température du bitume	°C	Thermomètre	Avant injection dans le TSE
Température des rejets gazeux	°C	Thermomètre	Cheminée
Dépression au nez du brûleur	Pa	Capteur de pression différentielle à transformateur différentiel	Nez du brûleur (TSE)
Position du registre de l'exhausteur	%	Relevé manuel	Pupitre de contrôle
Allure du brûleur	%	Relevé manuel	Pupitre de contrôle

Le Tableau 3 - 5 synthétise les informations concernant les paramètres principaux, en matière d'analyse de gaz et de consommation en combustible, ainsi que le type de mesure et l'emplacement de la centrale où sont effectuées les mesures.

Tableau 3 - 5 – Ensemble de paramètres principaux

Mesure	Unités	Matériels utilisés	Lieu
CO ₂	Vol%	Analyseur Maihak – absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	Cheminée
CO	mg/Nm ³	Analyseur Maihak – absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	Cheminée
SO ₂	mg/Nm ³	Analyseur Maihak – absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	Cheminée
NO _x	mg/Nm ³	Analyseur Beckman Instruments – analyse par chimiluminescence	Cheminée
COT	mg/Nm ³	Analyseur JUM Engineering – détection des COV à l'aide d'un FID (Détecteur à Ionisation de Flamme)	Cheminée
CH ₄	mg/Nm ³	Analyseur JUM Engineering – détection du méthane à l'aide d'un FID (Détecteur à Ionisation de Flamme)	Cheminée
HAP	ng/I-TEQ Nm ³	Prélèvement iso cinétique des HAP effectué selon la méthode dite à sonde refroidie	Cheminée
Gaz naturel	m ³ /h	Émetteur d'impulsion et vérification manuelle	Compteur à gaz
O ₂	Vol%	Analyseur Maihak – absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	Cheminée
O ₂ , CO et NO _x	Vol% et mg/Nm ³	Analyseur du type combustion (ECOM)	Cheminée ou sortie

Les analyses de CO₂, CO, NO_x, O₂ et SO₂ sont réalisées sur des gaz secs car le matériel nécessite un dispositif de séchage des gaz. En revanche, les COT et le CH₄ sont mesurés sur les gaz humides, l'analyseur FID travaillant directement sur ces gaz humides. Il convient de préciser que les mesures indiquées à la cheminée correspondent aux dispositions réglementaires, et que ces mesures sont réalisées avec le matériel mentionné dans le Tableau 3 - 5. Il existe cependant des possibilités, selon les objectifs recherchés, de pratiquer certaines mesures à la sortie du sécheur, avec un analyseur portable du type « analyseur de combustion ». C'est avec ce type d'analyseur que sont effectuées les mesures indiquées à la sortie du sécheur.

Les caractéristiques des rejets gazeux sont indispensables pour la conversion et l'exploitation des résultats de mesures. Ces conversions sont relatives à l'expression des résultats en concentration ou en flux. Par ailleurs, les concentrations peuvent être rapportées aux conditions normalisées de température et de pression, et exprimées à une teneur en oxygène de référence. Le Tableau 3 - 6 présente l'ensemble des paramètres qu'il est nécessaire de calculer afin de convertir des concentrations volumiques en flux massiques horaires. Il mentionne notamment le calcul de valeurs moyennes des concentrations durant la période choisie comme stabilisée.

Tableau 3 - 6 - Paramètres calculés [Paranhos et al, 2005]

<i>Paramètres calculés</i>	<i>Unité</i>	<i>Remarques</i>
Vitesse des fumées	m/s	Calculée avec la pression dynamique mesurée avec un tube de Pitot sur les gaz aux conditions de service (cheminée)
Teneur en eau des fumées	kg/Nm ³	récupération de l'eau par prélèvement sur un condenseur, rapporté au volume prélevé, sec, normé à 0 °C, 1013 hPa (cheminée)
Masse volumique des fumées aux conditions normales	kg/Nm ³	Masse volumique et proportion de chaque constituant du mélange gazeux considéré: N ₂ , air, CO ₂ et CO, H ₂ O
Débit volumique humide	m ³ /h	Calculé en fonction de la vitesse et de la section de la cheminée
Débit volumique normé humide	Nm ³ /h	Valeurs de normalisation : 1013 hPa et 0 °C
Débit volumique normé sec	Nm ³ /h	Calculé en fonction du débit volumique normé humide et de la teneur en eau des fumées
Concentration volumique moyenne sur une période stabilisée	% ou mg/kg	Calculée en fonction des concentrations mesurées en continu
Concentration calculée à une teneur en oxygène de référence	mg/Nm ³	Calculée en fonction de la mesure en oxygène et de la teneur en oxygène de référence
Calcul de la concentration en CO ₂ pour l'analyseur ECOM	%	Calculée, pour une combustion complète, à partir de la teneur en oxygène mesurée

1.2.2 Centrale fixe au gaz naturel

Les deux zones d'intervention (A et B) concernées par les mesures d'émissions sur la centrale sont indiquées dans la Figure 3 - 3. Les différences essentielles en matière de caractéristiques des rejets gazeux et des prélèvements sont :

- La zone A – les sondes de prélèvements sont installées au niveau d'une plate-forme existante à environ 10 m de hauteur, soit environ à la moitié de la hauteur de la cheminée. Une bride normalisée (25 cm x 40 cm) est disponible sur la cheminée pour la

réalisation des mesures environnementales permettant le passage de l'appareillage, selon la norme française NF X 44-051. (Figure 3 - 4). Par rapport à la sortie du sécheur, cette zone est caractérisée par des gaz en surpression, par un niveau plus bas d'émissions de particules solides puisqu'en aval du filtre à manches, par une quantité plus importante d'air parasite puisqu'en aval du décolmatage pneumatique de ce filtre à manches, et par une température plus basse des rejets gazeux ;

- La zone B – La sonde de prélèvement a été placée à la sortie du sécheur/malaxeur (Figure 3 - 5) en amont du filtre à manches, exactement après l'enrobage et le déchargement de l'enrobé vers le silo. Les caractéristiques spécifiques de cette zone (par rapport à la zone A) sont : une zone en dépression, un niveau plus haut de particules solides (en amont du filtre à manches), un niveau plus bas de l'air parasite et un niveau plus haut de température des gaz. Ces mesures ont été réalisées lors du réglage du brûleur par l'organisme ARGUMAT et par le LCPC, avec l'équipement ECOM, pour les expérimentations réalisées postérieurement au réglage du brûleur. La fréquence d'échantillonnage retenue avec l'analyseur ECOM a été de 4 minutes. Le Tableau 3 - 7 récapitule l'utilisation des zones de prélèvement et les différentes campagnes réalisées.

Tableau 3 - 7 – Utilisation de zones de prélèvements par les différentes campagnes d'essais

Zone	Lieu du prélèvement	Réglage brûleur	Campagne de mesures	
			Conditions dédiées	Conditions usuelles
A	Cheminé	-	Eurofins ²	LCPC ³
B	Sortie du sécheur	Argumat/CBS ¹	LCPC ³	LCPC ³

¹ Société fabricant des brûleurs ² Organisme agréé ³ LCPC/TGCE/SDD – Section Développement Durable

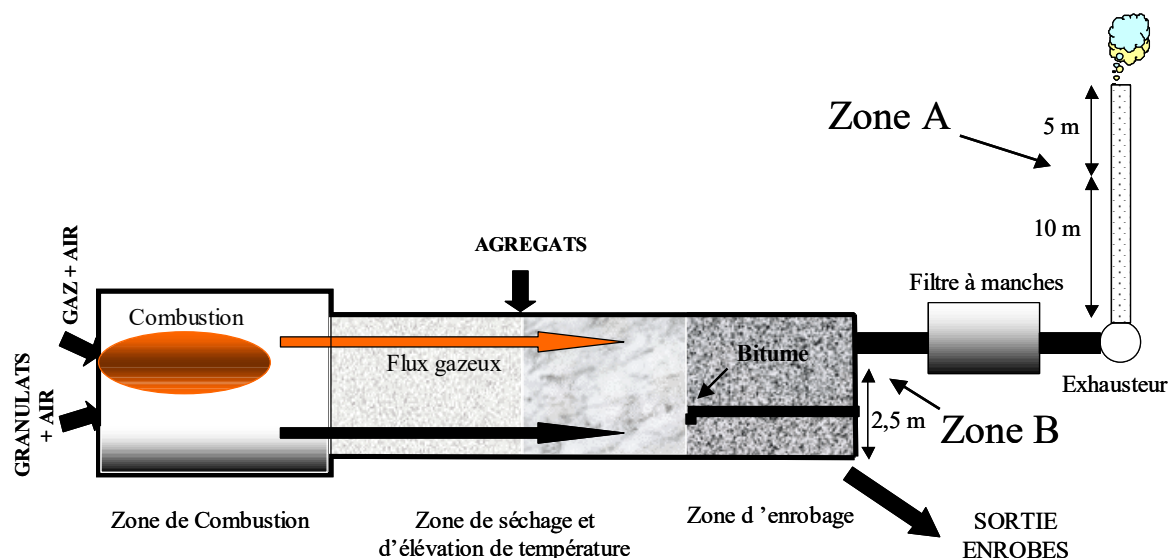


Figure 3 - 3- Schéma général de la centrale avec les deux zones d'intervention (A et B)



Figure 3 - 4 – Cheminée et plate-forme de prélèvements



Figure 3 - 5 –Emplacement des prélèvements à la sortie du sécheur

L'implantation de la sonde dans la zone B a été déterminée en fonction des possibilités d'accessibilité et pour être au plus proche de la zone du brûleur. Ces critères sont retenus au détriment de l'obtention d'un écoulement turbulent au lieu du prélèvement. Cependant, le flux gazeux sera considéré comme homogène en composition et dès lors l'emplacement de la sonde ne conditionne pas la réponse de l'analyseur.

Les objectifs de cette intervention en parallèle concernaient :

- La mise en évidence de la pertinence de mesures réalisées avec un appareillage portable, facilement mis en œuvre et permettant de suivre des fabrications à une échelle de temps plus longue que dans le cas de l'intervention programmée et limitée en temps d'un organisme agréé ;
- Fournir des compléments, voire des confirmations, aux résultats des mesures réalisées par EUROFINS ;
- Maîtriser l'instrumentation pour faire des mesures sur d'autres centrales.

1.2.3 Centrale mobile au fuel lourd

Pour cette expérimentation, et compte tenu des disponibilités limitées en matière de nombre d'analyseurs, seulement la zone A d'intervention a été concernée par les mesures d'émissions (Figure 3-6).

Compte tenu du caractère mobile de la centrale et des dispositions spécifiques limitant la hauteur de la cheminée, la bride normalisée est placée beaucoup plus près de l'exhausteur que dans le cas précédent. Il en résulte des difficultés en matière d'écoulement gazeux et d'obtention d'un écoulement turbulent propre aux mesures précises de vitesse de gaz.

Les deux analyseurs utilisés sont un FID et l'analyseur ECOM du CORIA dont les caractéristiques principales sont présentées en annexe (3.1 et 3.2). L'analyseur de combustion ECOM a été placé à côté du lieu de prélèvement (bride sur la cheminée). La sonde de prélèvement est restée positionnée à l'intérieur de la cheminée pendant toute la période de mesurage. Des mesures d'O₂, CO, NO_x, température de l'air ambiant et température des rejets gazeux ont été réalisées de façon régulière, environ toutes les 4 min. Par ailleurs le relevé de l'automate (toutes les 4 min) renseigne sur les conditions de marche de la centrale.

Conformément aux dispositions en matière de mesures sur les gaz humides, l'analyseur FID installé nécessairement au pied de la cheminée, est placé en aval d'une ligne de prélèvement chauffée. Pour ce type d'installation, soit la pompe de l'analyseur est capable

d'assurer le prélèvement gazeux par l'ensemble de la ligne de prélèvement, soit il est nécessaire d'installer une pompe intermédiaire.

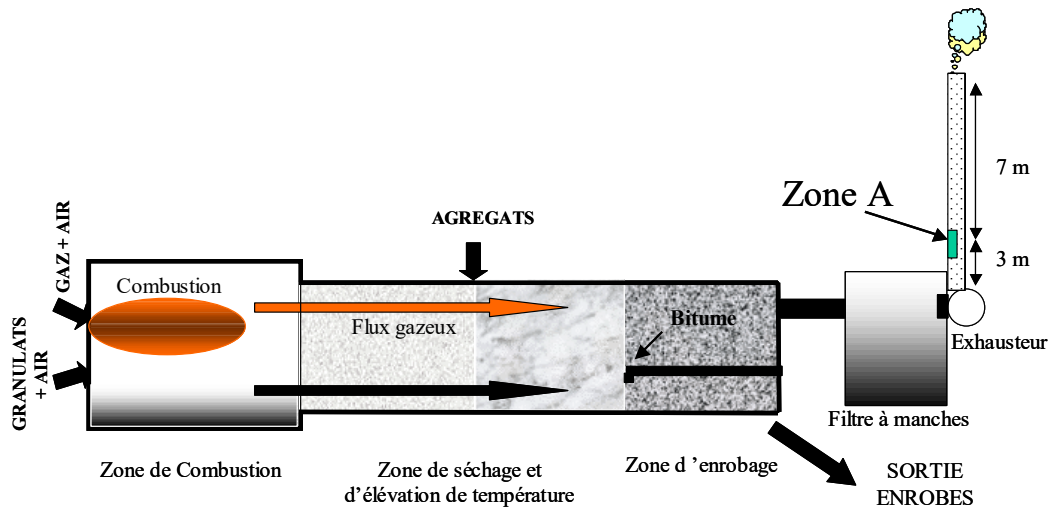


Figure 3 - 6- Schéma général de la centrale avec la zone A d'intervention

Un compresseur a été donc installé à côté du camion, pour aspirer les fumées jusqu'aux appareils de mesures situés dans le camion. Un système de « T » est installé et l'analyseur FID est raccordé en amont du compresseur. Encore une fois, la pompe de l'analyseur n'est pas assez puissante pour aspirer les fumées qui passent vers le compresseur. Il a été constaté que le compresseur aspire aussi dans l'analyseur FID. La seule solution possible a été prise : brancher l'analyseur en sortie de l'échappement du compresseur. Compte tenu de l'existence de deux échappements, un dispositif adapté à cette situation a été installé pour permettre le branchement de l'analyseur FID. La conséquence de cette installation est que les gaz prélevés sont partiellement déshumidifiés au contact du compresseur, qu'il était impossible de chauffer et maintenir la température.

Deux thermo-couples type K ont été installés, un pour la température ambiante, et l'autre pour la température des gaz dans la cheminée. La mise en place d'un tube de Pitot dans la cheminée a été effectuée pour permettre le calcul de la vitesse des rejets gazeux.

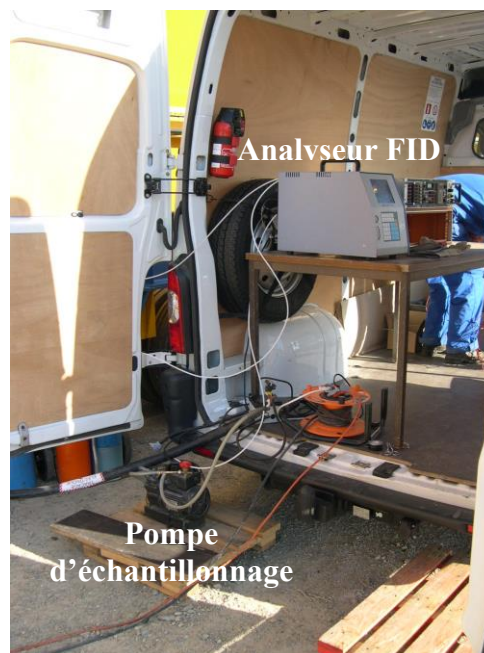
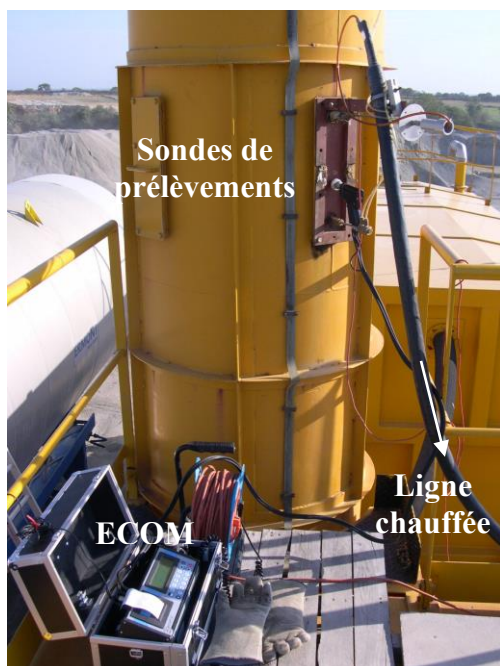


Figure 3 - 7 – Lieu de prélèvements (zone A) et analyseurs au pied de la cheminée

2 Étude en conditions dédiées

2.1 Réglage préliminaire de la combustion (brûleur)

La vérification du réglage du brûleur devrait être périodiquement opérée par l'utilisateur pour faire des économies d'énergie [de Sars, 2006]. Dans le cas de nos expérimentations (campagne de mesures), le réglage assure la qualité des données obtenues au niveau de la combustion. Selon les conditions météorologiques du jour du réglage, pour une plage de travail donnée, la minimisation des émissions de CO est recherchée par le biais d'un indicateur de qualité de combustion : I_{CO/CO_2} tel que défini au chapitre 2. Sachant que l'analyse de la combustion est réalisée en utilisant un analyseur portable de combustion, la teneur en CO_2 est calculée à partir de la teneur en O_2 et de la teneur maximale en CO_2 pour une combustion complète.

2.1.1 Conditions de réglage sur la centrale TSE fixe de Blois

Dans le cas de la centrale étudiée, il s'agit d'un brûleur à soufflante automatique à régulation de puissance modulante pour combustion au gaz naturel, avec une puissance thermique utile de 10,6 MW, soit $\approx 7m^3$ de gaz naturel par tonne d'enrobé fabriqué. La soufflante d'air de combustion est placée avec les volets d'aération sur la face supérieure du boîtier. Un régulateur composite mécanique (Figure 3 - 8) sert à régler progressivement le débit du gaz naturel constituant le combustible, de même que celui de l'air de combustion. La régulation de la puissance a lieu par un clapet de réglage, actionné par un levier articulé et un tambour de réglage séparé dans la composite mécanique.

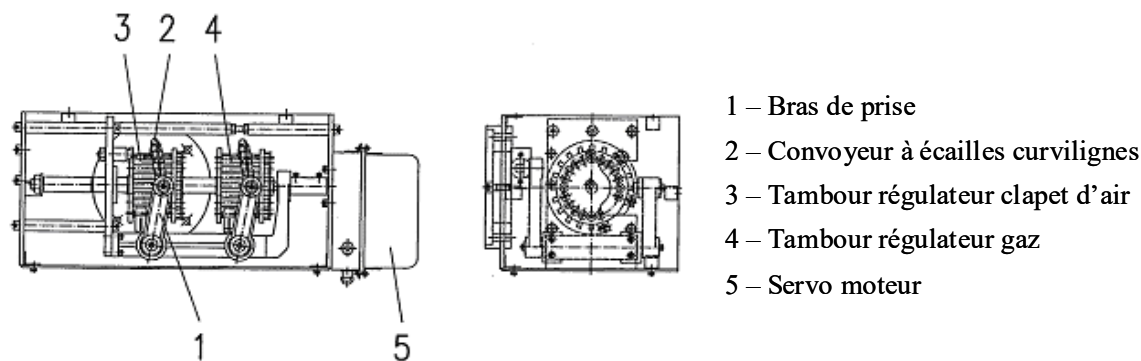


Figure 3 - 8 – Régulateur composite mécanique Oertli existante sur le TSE au gaz naturel

Pour le réglage de la flamme en charge de base, la puissance minimum au gaz est réglée sur le tambour régulateur pour le clapet de gaz. La pression de gaz après le régulateur de gaz est d'environ 0,01 MPa et au nez du brûleur est d'environ 0,0001 – 0,0003 MPa. En revanche, pour le réglage à pleine charge, la plage restante peut avoir lieu par montée en régime pas-à-pas avec le régulateur composite et par réglage linéaire de l'augmentation de puissance sur le tambour de clapet de gaz, en ajoutant chaque fois l'air de combustion sur le tambour régulateur des volets d'aération. A pleine charge, une pression d'environ 0,01 MPa s'ajustera au nez du brûleur.

Le rapport air/combustible est établi en fonction de la masse et non du volume. Il faudrait contrôler la masse d'air fourni à la masse de combustible utilisée. Comme la masse volumique de l'air change selon la température et la pression, il faudrait donc intervenir sur les commandes du brûleur en fonction de la température journalière ou saisonnière. De plus, la masse de gaz naturel circulant dans les canalisations change avec la pression d'alimentation. Il faut donc une pression constante, ce qui est réalisé sur les centrales d'enrobage.

Compte tenu de l'importance de la combustion vis-à-vis des émissions engendrées, il a été décidé de faire procéder au réglage du brûleur juste avant le début des expérimentations en conditions dédiées.

2.1.2 Méthodologie de réglage

La plage de fonctionnement d'un brûleur correspond à la variation possible d'allure du brûleur en conditions usuelles de fonctionnement tout en conservant une combustion optimale. Le réglage consiste à optimiser les émissions en utilisant le CO comme gaz à minimiser. La réduction de CO s'opère par dilution de fumées (augmentation du taux d'O₂), tout en minimisant l'excès d'air.

L'analyse de gaz de combustion s'effectue à l'aide d'un analyseur portatif dont la sonde de prélèvements est placée en sortie de sécheur (entrée d'air parasite minimisée et zone proche du brûleur). Les teneurs de O₂, CO et NO_x sont mesurées et la teneur en CO₂ est calculée. La collecte des données se poursuit en parallèle dans la cabine de contrôle de la centrale où y sont relevés :

- 1 – la cadence (t/h);
- 2 – la formule fabriquée ;
- 3 – la teneur en eau des matériaux, en pourcentage ;
- 4 – la température de l'enrobé, en °C ;
- 5 – l'intensité du sécheur, en ampères ;

- 6 – la position de la vanne d'injection du gaz combustible (donnée appelée allure du brûleur), en pourcentage entre 0 – 100 % ;
- 7 – la pression d'alimentation du gaz naturel ;
- 8 – le débit estimé de gaz naturel, en m³/h ;
- 9 – la température des fumées (cheminée), en °C ;
- 10 – la dépression au nez du brûleur ;
- 11 – la position du registre de l'exhausteur, en pourcentage ;
- 12 – l'intensité de l'exhausteur, en ampères ;

2.1.3 Résultats du réglage effectué

Préalablement aux expérimentations, le déroulement de la journée de réglage (31/08/2004) s'est passé dans les conditions de fabrication suivantes :

- Production de Grave Bitume (GB) à une cadence de 105 t/h ;
- Production d'un Béton Bitumineux (BBBSG) à différentes cadences (130, 140, 150 et 160 t/h) ;
- Collecte, pour toutes les fabrications, des paramètres listés dans le paragraphe méthodologie de réglage. Ces paramètres sont recueillis au niveau de l'automate de la centrale ;
- Mesures à la sortie du sécheur (Zone B) des teneurs en O₂, CO, NO_x et des imbrûlés solides.

Les mesures d'émission réalisées, avant et après les interventions de réglage et dans toutes les plages de cadence, sont dans le Tableau 3 - 8.

Les difficultés de réglage pour toute la plage d'utilisation du brûleur, qui se traduisent par une plage étroite d'allure du brûleur (position brûleur tableau 3-8) ont été mises en évidence par ce premier suivi de réglage réalisé à Blois, avec des conséquences inconnues en matière de consommations énergétiques et des rejets à l'atmosphère. En fonction des réglages réalisés, deux hypothèses sont possibles lors d'une journée réelle de production, intégrant les contraintes des chantiers. Si la plage de réglage du brûleur est respectée lors des fabrications, les consommations en gaz naturel et les émissions sont minimisées. En revanche, dans l'hypothèse, par exemple, d'une augmentation de la teneur en eau des granulats, suite à une météo défavorable, le maintien d'une même cadence de production peut conduire à sortir de la plage de réglage initiale. Dans ce cas, il faudrait impérativement baisser la cadence de production et ce malgré une bonne qualité des enrobés fabriqués, pour rester dans la plage de réglage et éviter les conséquences incontrôlés (pics d'émissions gazeuses et surconsommation).

Tableau 3 - 8- Valeurs prise en compte avant et après les interventions de réglage du brûleur sur le TSE fixe au gaz naturel à Blois

Date du réglage: 31/08/2004		Formules															
		GB		BBSG		BBSG		BBSG		BBSG		BBSG		BBSG		BBSG	
	Unités	Cadence 105 t/h		Cadence 130 t/h		Cadence 140 t/h		Cadence 150 t/h		Cadence 160 t/h		Cadence 130 t/h					
O2	%	11,2	13,8	12,9	14,8	12,8	14,5	12,8	14,5	13,3	15,0	13,7	15,0				
CO	ppm	766	257	32	29	229	86	223	127	71	62	41	44				
CO sous 17% O2	ppm	313	143	16	19	112	53	109	78	37	41	22	29				
CO sous 3% O2	ppm	1407	643	71	84	503	238	490	352	166	186	101	132				
rapport CO/CO2/100	(ppm/%)	1,37	0,63	0,07	0,08	0,49	0,23	0,47	0,34	0,16	0,18	0,10	0,13				
CO2	%	5,6	4,1	4,6	3,5	4,7	3,7	4,7	3,7	4,4	3,4	4,1	3,4				
NOx	ppm	31	21	26	19	34	23	30	18	19	13	17	14				
Intensité sécheur	A	55		61		62		64		69		62					
Teneur en eau des granulats	%	0,9		0,9		0,9		0,9		0,9		0,9					
Température enrobé	°C	173		150		153		150		154		148					
Température fumées pupitre	°C	139		128		130		128		130		129					
Température fumées mesurée	°C	172		154		156		145		152		148					
Position exhausteur	%	48		42		45		43		47		39					
Intensité exhausteur	A	134		129		130		130		133		127					
T, sortie filtre mesurée	°C	119		116		119		119		115		118					
Perte de charge indiquée	mmCE	63		64		65		63		63		63					
Position bruleur	%	55		53		57		58		62		47					
Intensité ventilateur brûleur	A	36		35		36		36,5		37		34					
Pression alim. gaz	Mpa	0,029		0,029		0,029		0,029		0,029		0,029					
Consommation	m3/h			645		725		750		820		588					

2.1.4 Indicateur de combustion après réglage

Pour affiner le réglage de la combustion, il faut modifier le réglage d'air primaire/secondaire et combustible au niveau du brûleur en s'appuyant sur des vis de réglage. Après chaque ajustement de réglage, l'analyse des gaz de combustion est réalisée à nouveau et le rapport CO/CO_2 recalculé.

Le procédé réglage de la combustion (brûleur) est réalisé en fonction de son allure, c'est-à-dire la position de la vanne d'injection du gaz naturel. L'allure du brûleur, quant à elle, est fonction de la teneur en eau des granulats, de la cadence et de la température de production et est proportionnelle à la consommation en gaz combustible. Comme dans la plupart des cas la teneur en eau des granulats ne varie pas assez (par exemple teneur en eau de 0,9 % le 31/08/2004) pour permettre une variation importante de l'allure de ce brûleur, le brûleur a été réglé dans la plage de 47 % à 62 % de son allure sur une échelle de 0 à 100 %. En dehors de cette plage, compte tenu de la non linéarité des paramètres et des émissions, il est probable que les valeurs soient moins satisfaisantes.

L'analyse du réglage réalisé en 2004 indique qu'après chacune des interventions réalisées, la qualité de la combustion s'améliore systématiquement, avec une baisse du rapport CO/CO_2 . En revanche, cela s'accompagne toujours d'une augmentation de la teneur en O_2 qui se situe entre 13,5 % et 15 % à la fin du réglage (Figure 3-9).

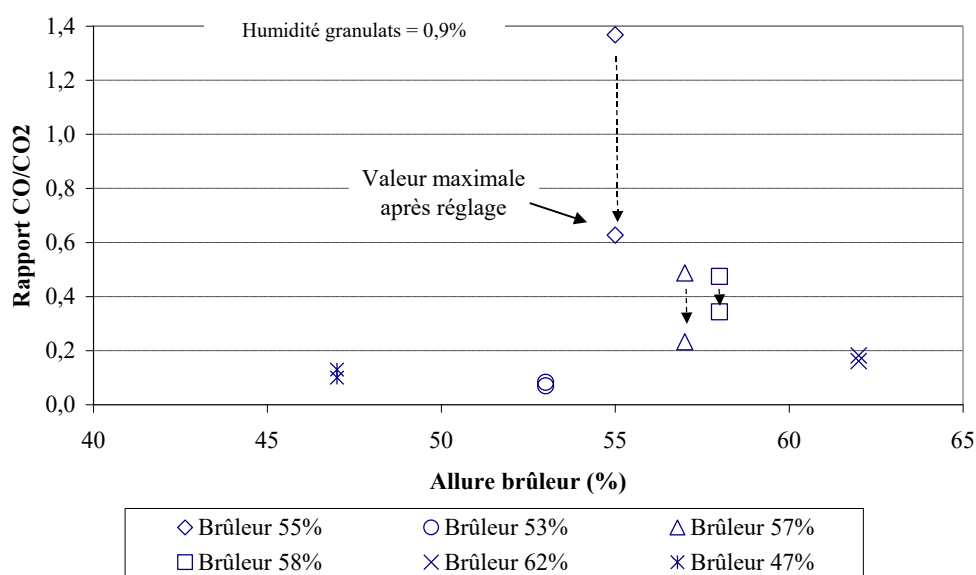


Figure 3 - 9 – Évolution du rapport CO/CO_2 lors du réglage du brûleur sur le TSM au gaz naturel selon l'allure du brûleur

Si l'on s'appuie sur le réglage exécuté, la valeur maximale du rapport CO/CO_2 de 0,63 peut être prise comme seuil entre une bonne ou une mauvaise combustion lors du traitement des données. Ainsi les données stabilisées obtenues (qualité bonne – rapport $\text{CO}/\text{CO}_2 \leq 0,63$) sont parfaitement exploitables pour une étude fine des conditions de production de l'enrobé et des comparaisons entre les productions. Toutes les autres valeurs (qualité mauvaise – rapport $\text{CO}/\text{CO}_2 > 0,63$) sont utilisées pour étudier les écarts de production et les amplitudes de variations susceptibles d'intervenir.

2.2 Plan d'expérimentations en conditions dédiées

2.2.1 Plan d'essais – modalités de fabrication

La réalisation de sept modalités a été prévue sur une journée de fabrication, avec trois modalités pour le matin et quatre modalités pour l'après-midi. Le déroulement des fabrications (modalités) a été le suivant (Tableau 3 - 9):

Tableau 3 - 9 Modalités de fabrication

Modalités de fabrication	Formule fabriquée	Température des enrobés (°C)	Cadence du poste (t/h)	Remarque
M1	GB	160	120	Influence de la cadence
M2	GB	160	140	
M3	GB	160	160	
M4	GB	140	140	Influence de la température
M5	GB	160	140	
M6	GB	180	140	
M7	GB sans bitume et fines	160	140	Influence du bitume

La représentation graphique du domaine expérimental étudié est schématisée selon la Figure 3 - 10, où les paramètres de fonctionnement étudiés ont été : la cadence du poste et la température des enrobés fabriqués. A l'exception du paramètre teneur en eau des granulats, dont la variation volontaire est impossible à l'échelle de la journée, les deux paramètres pris en compte sont les plus importants, et facilement modifiables, pour conditionner la consommation en gaz naturel.

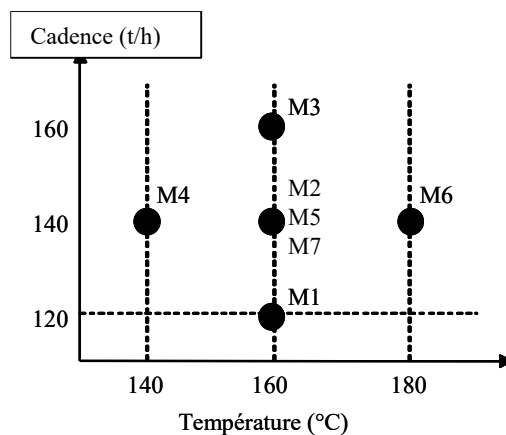


Figure 3 - 10 – Domaine expérimental étudié en centrale

Il faut noter que les modalités 2 et 5 ont les mêmes niveaux de température et de cadence et sont utilisées pour donner un ordre de grandeur de la répétabilité des fabrications. Ces niveaux ont été choisis par des raisons pratiques, car ils s'approchent des consignes les plus couramment utilisées lors des fabrications quotidiennes par cette centrale.

La modalité 7 a été réalisée sans l'introduction de liant (bitume) mais au même niveau de cadence et température de production que pour les modalités 2 et 5. L'objectif était, pour un débit de combustible donné, de quantifier la part des émissions due uniquement à la combustion. Des aménagements ont été nécessaires dans la conduite de la centrale pour permettre le bon déroulement de cette modalité. Il s'agit de deux mesures principales : le

retour des fines du dépoussiéreur vers le TSE a été coupé et l'introduction des sables fillerisés a été aussi supprimée. Ces modifications ont été nécessaires pour limiter la quantité de particules solides dans le circuit de dépoussiérage et éviter le colmatage rapide du dépoussiéreur.

Exceptée pour la modalité sans bitume (M7), cette expérimentation a été réalisée dans des conditions réelles de fabrication et les 1000 tonnes d'enrobé fabriqués ont été utilisés dans un chantier du Département (DDE 41), localisé à 5 km de la centrale de Blois. L'augmentation de la température des enrobés pouvant *a priori* conduire à des dégradations des enrobés fabriqués, le plan d'expérience prévoyait la possibilité de ne pas mettre en œuvre les enrobés fabriqués selon la modalité M6.

2.2.2 Conformité du plan d'expérience

La journée de production s'est parfaitement déroulée et aucun dysfonctionnement n'a perturbé les sept modalités fabriquées. La représentation graphique du domaine expérimental réel étudié, avec les couples de mesures cadence/température des enrobés est disponible sur la Figure 3 - 11, en intégrant la dispersion constatée pour la température des enrobés.

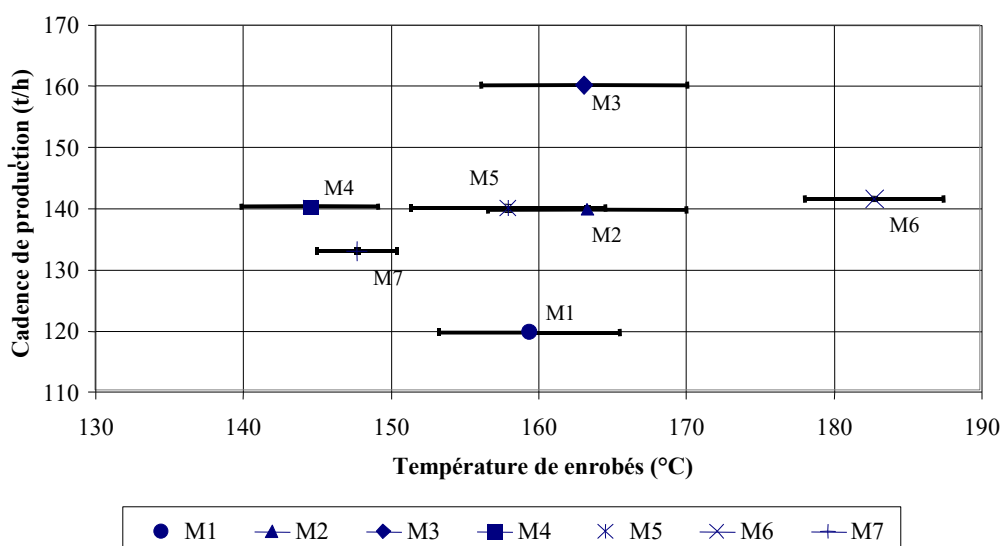


Figure 3 - 11 – Domaine expérimental réel étudié

La complexité d'une telle campagne de mesures est déjà mise en évidence par les différences trouvées dans les domaines expérimentaux – voulu (Figure 3 - 10) et réel. Toutefois, la Figure 3 - 11 montre que les difficultés de « stabilisation » sont plus importantes au niveau des températures des enrobés qu'au niveau des cadences de production, car rien ne perturbe la cadence en dehors d'un manque de matériaux. Ces différences sont visualisées à l'aide des coefficients de variation (écart type/moyenne) qui ont été calculés sur les 333 valeurs prises en compte (Figure 3 - 12).

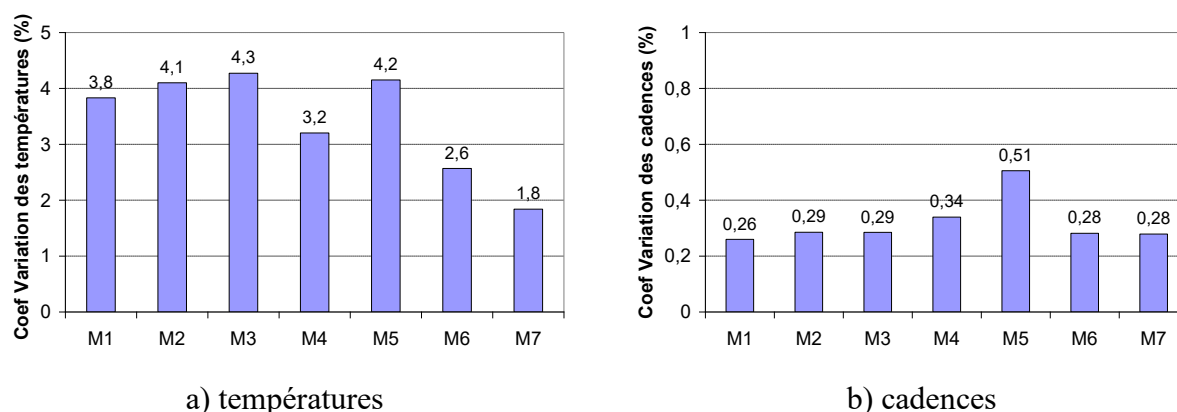


Figure 3 - 12 – Coefficients de variation de la température des enrobés et de la cadence de production lors des expérimentations à Blois (données brutes)

D'après les données obtenues, les coefficients de variation moyens sont environ 10 fois plus importants pour les températures des enrobés que pour les cadences de production. Il reste cependant indispensable de vérifier que les dispersions constatées sur les températures ne sont pas issues de problèmes de mesures lors du déchargement des enrobés vers le skip : transformation de données discontinues en continues.

2.3 Résultats bruts

2.3.1 Caractéristiques du flux gazeux

Les vitesses et les températures de l'effluent gazeux ont été mesurées en début des sept modalités en un point unique de la cheminée. Les caractéristiques du flux gazeux dans la cheminée sont reportées dans le Tableau 3 - 10 .

Tableau 3 - 10 – Caractéristiques du flux gazeux selon la modalité fabriquée

	Résultats par modalité de fabrication							
	Unité	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7
Cadence production	t/h	120	140	160	140	140	140	140
Température enrobés	°C	160	160	160	140	160	180	160
Pression atmosphérique	Pa	100900	100900	101000	101000	101000	101000	101000
Température extérieure	°C	18,1	18,1	22,5	29,2	29,8	32,2	32,2
Température du flux	K	391	387	387	378	385	399	388
Vitesse des fumées	m/s	12,5	12,9	14,5	13,0	13,1	14,0	13,0
Pression dans le conduit	Pa	101000	101000	101100	101100	101100	101100	101100
Taux d'humidité des fumées (zone A)	kg/Nm ³	0,089	0,101	0,108	0,074	0,088	0,097	0,076
Teneur en oxygène	%Vol sec	14,8	14,1	13,5	14,8	13,9	12,8	13,3

Compte tenu de la nécessité de comparer les modalités fabriquées en terme de flux émis pour chaque polluant dans la cheminée, les différents débits pris en compte sont dans le Tableau 3 – 11.

Tableau 3 - 11 – Débits des rejets gazeux dans la cheminée

	Unité	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7
Débit volumique humide	m ³ /h	28620	29536	33199	29765	29994	32054	29765
Débit volumique normé humide	Nm ³ /h	19930	20780	23380	21461	21233	21895	20908
Débit volumique normé sec	Nm ³ /h	17944	18461	20611	19652	19138	19538	19102

Les débits gazeux mesurés dans la cheminée sont corrélés aux cadences et aux températures de production des enrobés. Il est intéressant de constater la variation trouvée entre les modalités M2 et M5, d'environ 1,5 %. Ces modalités de production sont identiques en termes de consigne de production (cadence et température de fabrication) et les résultats montrent une bonne répétabilité des essais.

2.3.2 Comparaison des valeurs moyennes de concentrations entre zones A et B

La validation des mesures d'émissions réalisée avec l'analyseur de combustion du type ECOM s'effectue par comparaison de plages d'émissions en zone A (maîtrise de l'utilisation de l'analyseur) et en zone B (mesures en parallèle). Le mode opératoire des prélèvements a été basé sur le mode opératoire défini pour les mesures avec EUROFINS (organisme agréé). Les mesures avec l'analyseur ECOM sont effectuées dans des plages de fabrication stabilisées, c'est-à-dire pour lesquelles le régime du brûleur est établi et les paramètres de fonctionnement de la centrale sont stables. La stabilité de la fabrication est vérifiée préalablement au démarrage des mesures par la vérification de la température des enrobés (conformité à la valeur de consigne et stabilité de la température mesurée). Une synthèse des résultats obtenus est présentée dans le Tableau 3 - 12 pour les valeurs mesurées en cheminée (EUROFINS Zone A) et dans le Tableau 3 - 13 pour les valeurs mesurées en sortie du sécheur (ECOM Zone B).

Tableau 3 - 12 – Valeurs moyennes zone A pour les différentes modalités de fabrication

		<i>Valeurs moyennes ± 1 Ecart type</i>					
Facteurs	Unités ²	Modalité 1	Modalité 2	Modalité 3	Modalité 4	Modalité 5	Modalité 6
O ₂	%	14,8±0,11	14,1±0,4	13,5±1,2	14,8±0,66	13,9±0,09	12,8±0,04
CO ¹	mg/Nm ³	75±4,7	277±418	3548±989	388±868	46±25,0	3790±204
CO ₂	%	3,3±0,1	3,7±0,3	3,7±0,6	3,2±0,4	3,7±0,1	4,0±0,1
NO _x	mg/Nm ³	13±1,2	41±4	42±7,6	31±6,7	48±2,5	55±1,1
Temp gaz	°C	117±0,3	116±0,7	119±0,7	105±0,6	117±0,8	132±0,7

¹Saturation de l'analyse en CO pour M3 et M6 ; ²Les valeurs sont toutes rapportées à des gaz secs.

Tableau 3 - 13 - Valeurs moyennes zone B pour les différentes modalités de fabrication

		<i>Valeurs moyennes ± 1 Ecart type</i>					
Facteurs	Unités ¹	Modalité 1	Modalité 2	Modalité 3	Modalité 4	Modalité 5	Modalité 6
O ₂	%	13,5±0,4	13,0±0,4	11,7±0,3	14,2±1,0	12,9±0,2	11,6±0,2
CO ²	mg/Nm ³	72±31,4	223±356	4600±1060	803±1697	42±19,1	4951±145
CO ₂	%	4,2±0,2	4,5±0,2	5,2±0,0	3,8±0,5	4,6±0,1	5,3±0,1
NO _x	mg/Nm ³	39±8,7	49±4,5	48±8,5	27±3,8	48±4,1	21±4,6
Temp gaz	°C	149±3,4	146±3,3	146±1,5	130±5,1	146±5,1	165±1,7

¹Les valeurs sont toutes rapportées à des gaz secs ; ²Saturation de l'analyse en CO pour M3 et M6.

Température des gaz de combustion : La comparaison des températures des gaz entre la sortie du sécheur et la cheminée est présentée sur la Figure 3 - 13. Logiquement, les températures des gaz au niveau de la cheminée d'évacuation à l'atmosphère sont inférieures à celles à la sortie du tambour sécheur : les pertes sont dues aux passages dans les conduites et dans le système de dépoussiérage. L'écart est d'environ 30 °C, et cet écart est pratiquement identique quelle que soit la modalité.

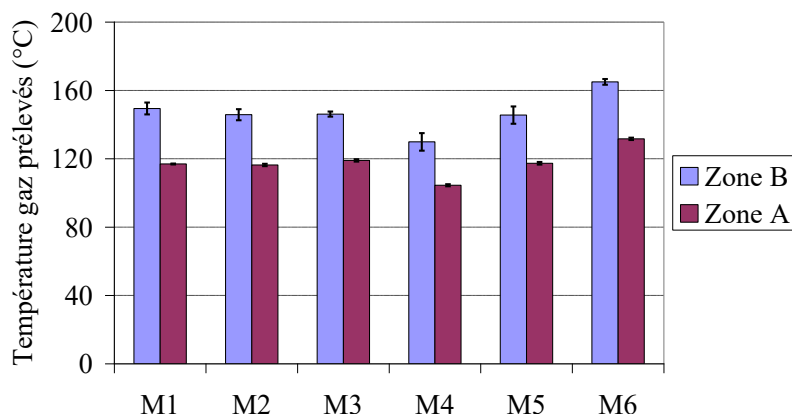


Figure 3 - 13 - Comparaison des résultats des températures de gaz de combustion (°C)

Concentration en O₂ : la comparaison des analyses d'O₂ réalisées dans les deux zones A et B, pour les différentes modalités, est présentée sur la Figure 3-14. Les concentrations mesurées avec l'analyseur ECOM (Zone B) sont systématiquement inférieures à celles obtenues avec EUROFINS (Zone A). Ceci apparaît tout à fait normal dans la mesure où les prélèvements EUROFINS intègrent l'air extérieur utilisé pour le décolmatage périodique du filtre à manches. Les différences sont cependant variables (de 0,5 % à 1,5 % en valeurs absolues) et dépendent de la dilution obtenue au niveau du sécheur. En effet, pour des cycles de décolmatage équivalents, l'air parasite admis pour ce décolmatage est constant. Ainsi, la différence minimale est obtenue sur la modalité 4, c'est-à-dire pour la fabrication caractérisée par la dilution la plus importante au niveau du sécheur.

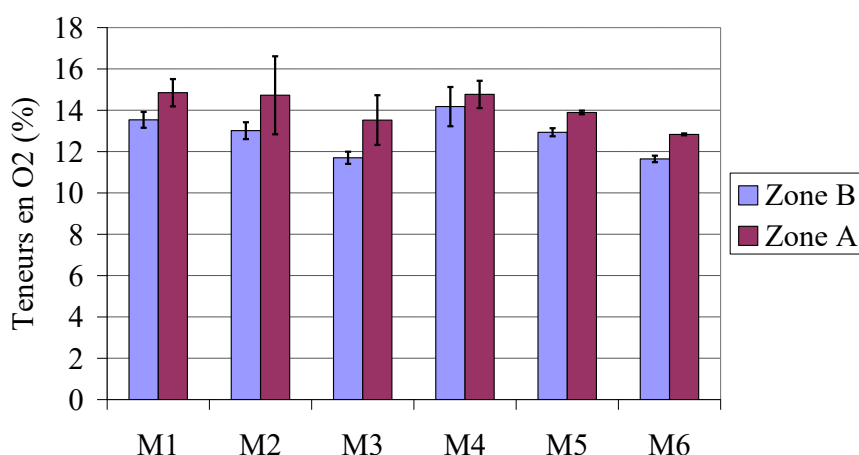


Figure 3 - 14 - Comparaison des résultats de O₂

Concentration en CO : pour le CO, la comparaison des résultats est présentée sur la Figure 3 - 15.

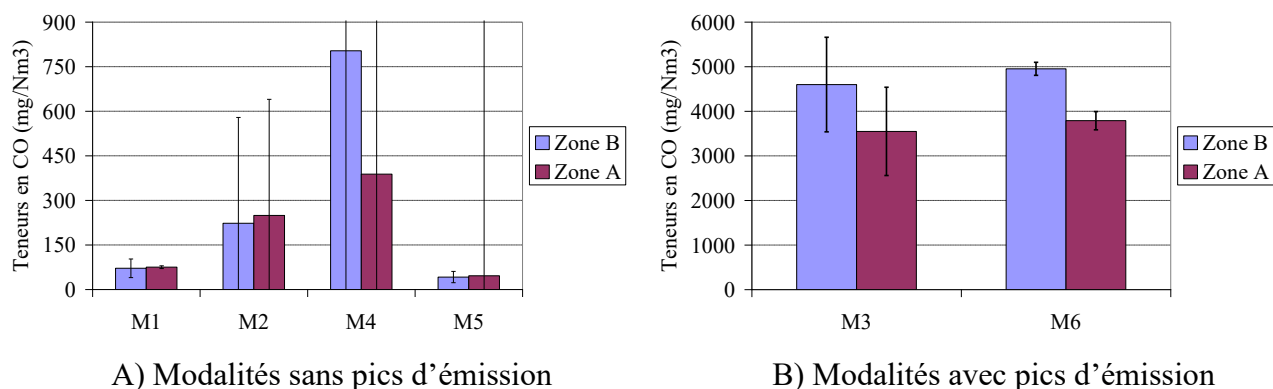


Figure 3 - 15 - Comparaison des résultats de CO

Les valeurs relatives aux modalités 3 et 6, extrêmement élevées, ont été obtenues en dehors de la plage de réglage du brûleur. Les analyses effectuées avec l'analyseur de combustion ECOM (Zone B) confirment celles effectuées dans la cheminée (Zone A). Les modalités 3 et 6 se caractérisent par des émissions très importantes de CO, qui se traduisent par une saturation des analyseurs. En dehors des modalités 3 et 6, les analyses dans les deux zones A et B conduisent à la même relation d'ordre entre les modalités. A part la modalité M4, il n'y a pas d'écart manifeste.

Concentration en NO_x : La comparaison des résultats est présentée sur la Figure 3 - 16. Compte tenu des dispersions, les résultats trouvés sont quasiment identiques entre les modalités M2 à M5 entre les zones A et B. L'écart est cependant relativement important pour les modalités M1 et M6. Par ailleurs, la modalité M1 se signale par une concentration ECOM (Zone B) supérieure à celle d'EUROFINS (Zone A), contrairement à la modalité M6. A partir des informations disponibles, ces constatations restent sans explication. Il faut cependant noter que les modalités M1 et M6 présentent les dispersions les plus importantes parmi toutes modalités analysées par l'ECOM (zone B).

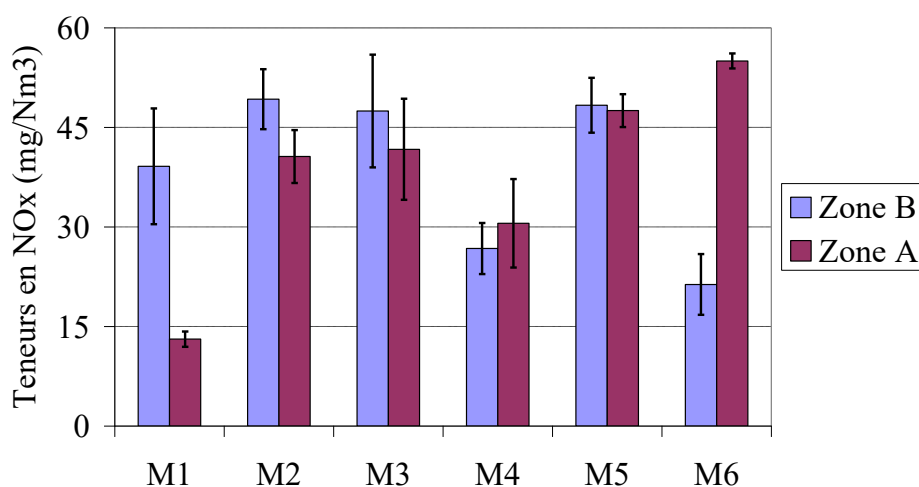


Figure 3 - 16 - Comparaison des résultats de NO_x

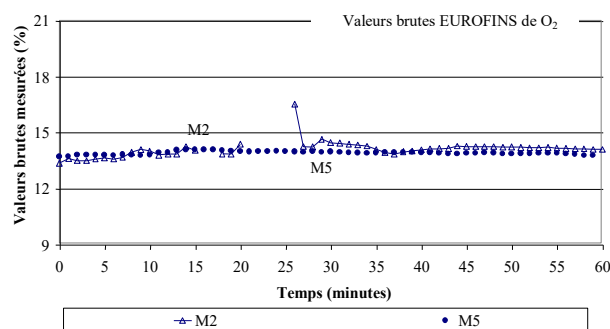
Les conclusions de l'utilisation d'analyseur ECOM (Zone B) pendant une campagne de mesures réalisés par un organisme agréé (Zone A) sont les suivantes :

- Les résultats des mesures obtenues par le LCPC en utilisant l'analyseur ECOM et ceux de l'entreprise EUROFINS avec du matériel spécifique sont globalement cohérents entre eux. Cependant, nous avons trouvé une incohérence, en tenant compte des plages de variation, entre les mesures de NO_x pour les modalités M1 et M6, qui malgré l'existence de dispersions importantes, est inexplicable pour l'instant ;
- D'une façon générale les écarts types obtenus par l'analyseur ECOM/LCPC sont plus importants que ceux obtenus avec l'appareillage utilisé par EUROFINS. L'origine des ces écarts provient vraisemblablement de la méthode de mesures, car les mesures d'EUROFINS ont été prélevées en continu et les mesures effectuées avec l'analyseur ECOM ont été réalisées d'une façon discontinue (environ toutes les 4 min) ;
- L'analyseur de combustion ECOM apparaît adapté au suivi systématique des émissions de la centrale en matière de dilution de gaz, d'analyse des imbrûlés de type CO, ainsi que des émissions de NO_x, c'est-à-dire pour ce qui concerne la combustion proprement dite, à l'exception des imbrûlés méthane (avec le gaz naturel) et des composés organiques volatils pour lesquels un analyseur FID doit être utilisé ;
- La procédure de réglage du brûleur s'avère extrêmement importante, et en dehors de la plage de réglage, les émissions de CO sont considérablement augmentées, de même que la dispersion des émissions de NO_x. Avec le réglage réalisé pour l'expérimentation, les émissions dues au fonctionnement du brûleur ne sont pas maîtrisées lorsque la cadence est ≥ 160 t/h et/ou la température des enrobés est ≥ 180 °C. Proche de ces conditions de fonctionnement, les émissions de CO sont supérieures à la valeur limite réglementaire.

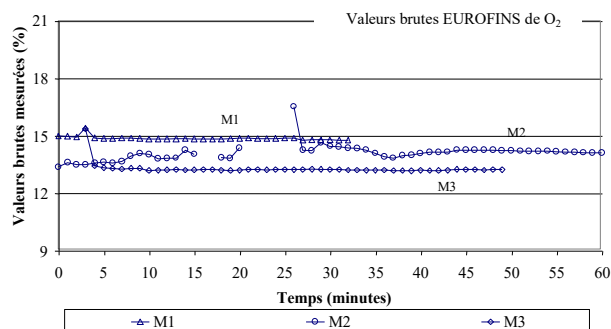
2.3.3 Concentrations de O₂, CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT et CH₄

Les mesures de concentrations réalisées en fonction du temps ont été tracées pour chaque modalité de fabrication, afin de mettre en évidence d'éventuelles variations et/ou les tendances des différents polluants gazeux émis.

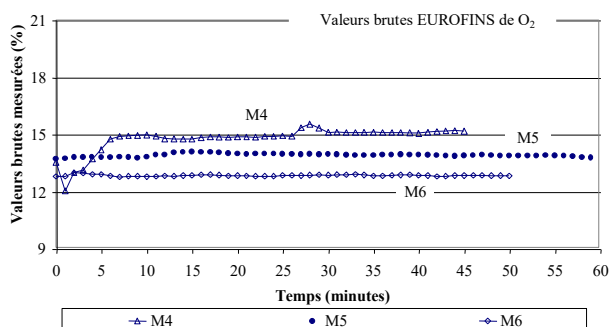
Les valeurs de O₂ (Figure 3 - 17) sont stables. D'une façon générale, la concentration en O₂ varie entre 13 et 15 %. Les modalités M2 et M5 montrent une bonne répétabilité (figure a). On peut noter aussi une baisse des valeurs mesurées selon la cadence (M1 à M3 figure b) et selon les températures de production (M4 à M6 figure c). Une remarque concerne la modalité M2, où toutes les émissions mesurées ont montré un pic entre 15 et 25 min. Nous avons pris l'hypothèse que la sonde de prélèvement a été retirée de l'écoulement gazeux pendant cette période, les teneurs en oxygène étant dans ce cas remontées à la valeur de 21 %, soit la teneur dans l'air. Ces valeurs ont donc été enlevées des graphiques présentés. La modalité M7 n'appelle pas de commentaire particulier.



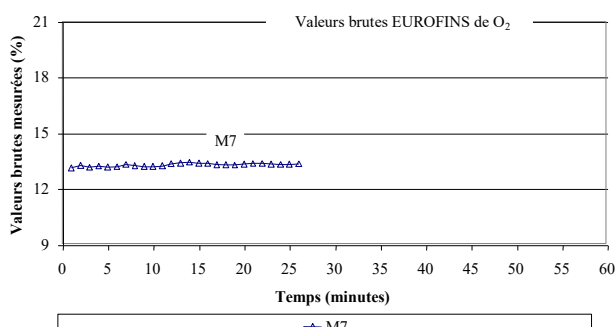
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



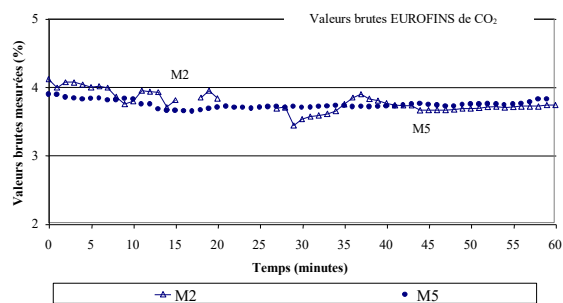
c) modalités à températures variables



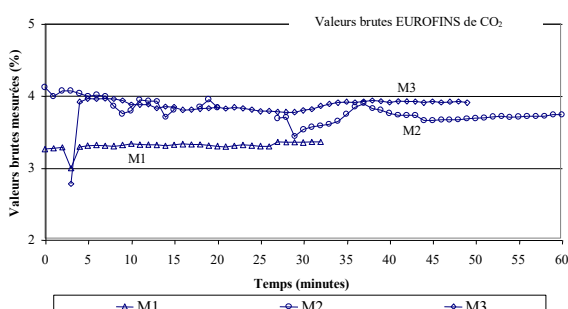
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 17 – Résultats bruts de O_2

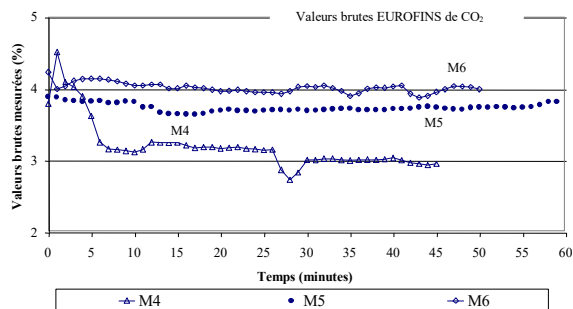
Comme pour l'oxygène, les valeurs des émissions de CO_2 sont stables (Figure 3 - 18). Les concentrations varient entre 3,5 et 4%. Les modalités M2 et M5 montrent une bonne répétabilité (Figure 3 - 17 a). On peut noter aussi une augmentation des valeurs mesurées selon la cadence (M1 à M3 Figure 3 - 17 b) et selon les températures de production (M4 à M6 Figure 3 - 17 c).



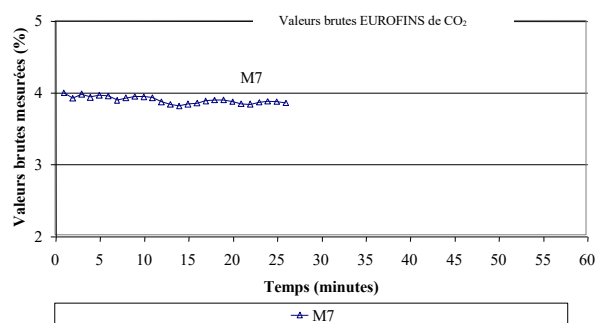
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



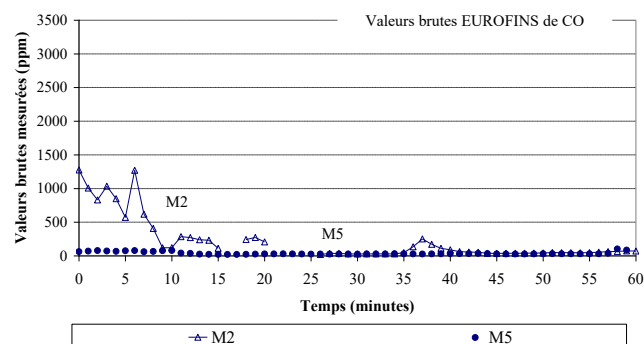
c) modalités à températures variables



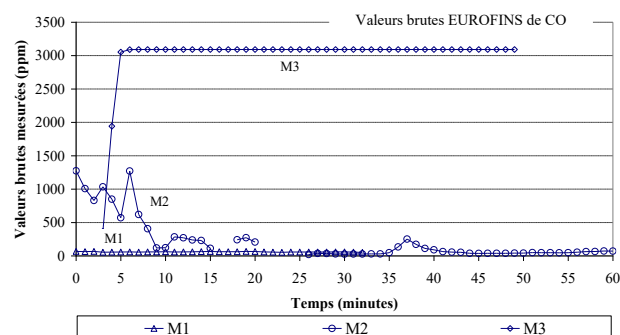
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 18 – Résultats bruts de CO_2

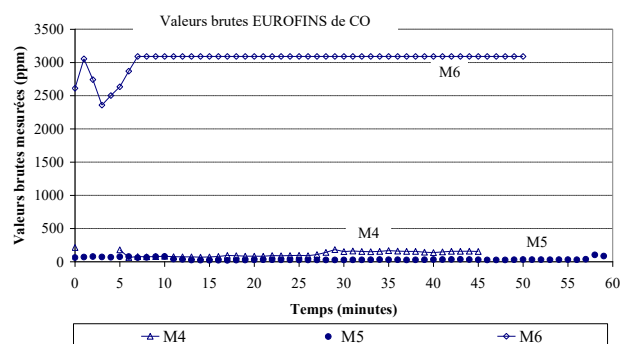
Les émissions brutes de CO (Figure 3 - 19) montrent des valeurs extrêmes obtenues pour les modalités M3 et M6, pendant toute la période de mesures. Le problème du réglage optimal du brûleur et de sa plage de travail est donc mise en évidence, les modalités M3 et M6 ayant été réalisées hors de la plage de réglage du brûleur. Les valeurs extrêmes trouvées sont peut-être encore plus importantes, car les mesures ont été limitées par la saturation de l'analyseur (environ 3000 mg/kg).



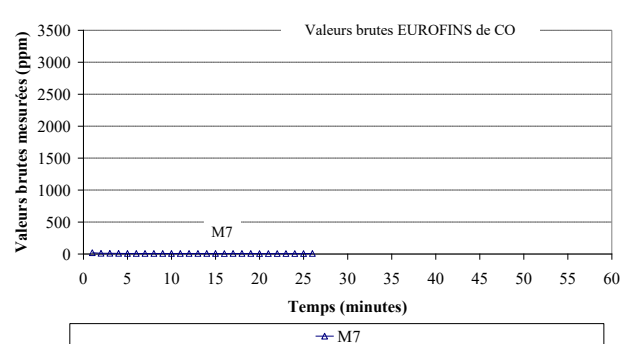
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



c) modalités à températures variables

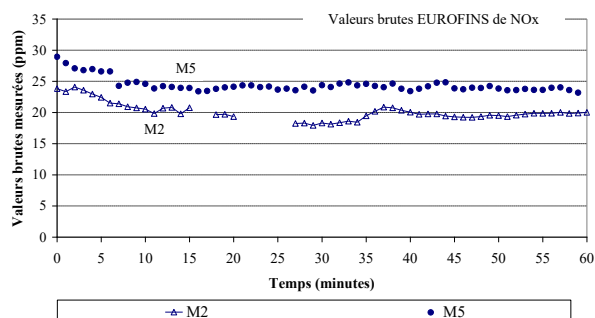


d) modalité sans bitume

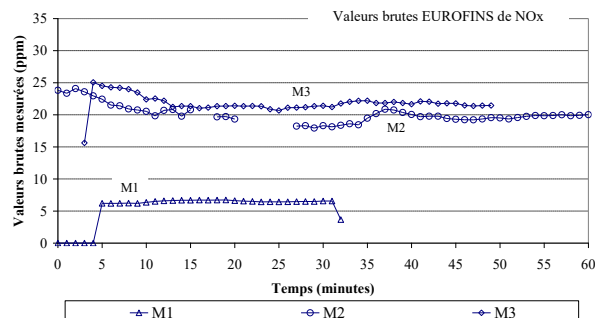
Figure 3 - 19 – Résultats bruts de CO

Les émissions brutes de NO_x (Figure 3 - 20) augmentent selon la cadence (Figure 3 - 20 b) et la température (Figure 3 - 20 c) et reflètent directement les besoins énergétiques. La répétabilité est moins bonne que pour les gaz cités précédemment. La modalité 7, caractérisée par une fabrication sans bitume et sans fines, présente le plus haut niveau d'émission de NO_x .

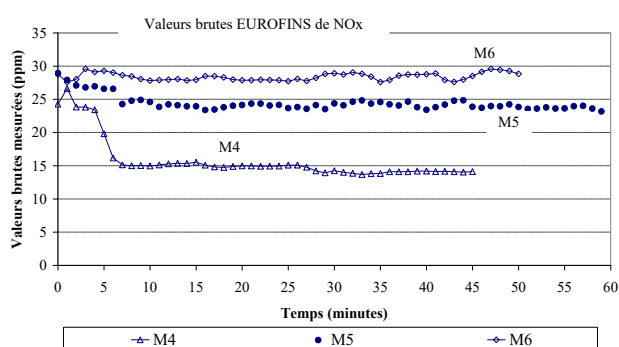
Ceci peut s'expliquer par la conséquence du manque de bitume sur les écoulements gazeux à l'intérieur du TSE et non par l'incidence directe de l'absence du bitume, puisque les NO_x sont liés uniquement à la combustion.



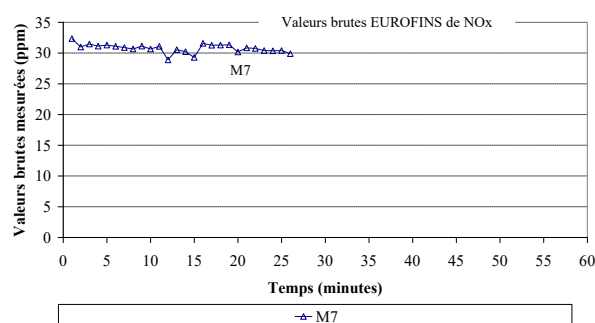
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



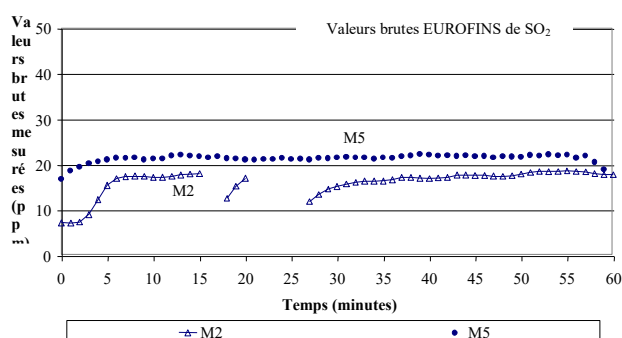
c) modalités à températures variables



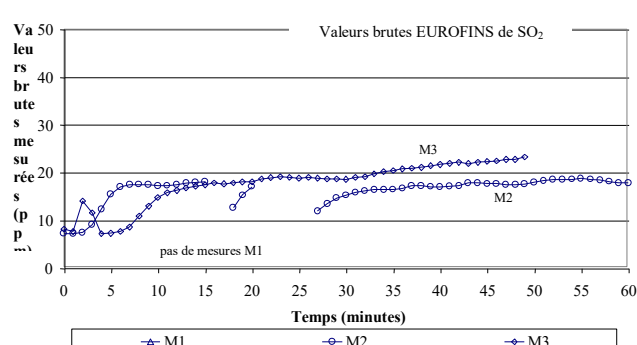
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 20 – Résultats bruts de NO_x

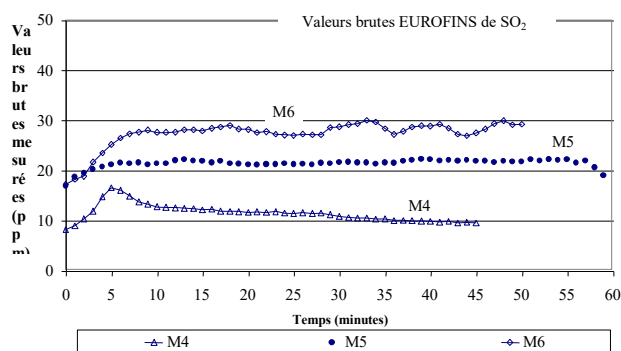
Les émissions brutes de SO_2 (Figure 3 - 21) suivent les évolutions de la consommation en gaz naturel. La répétabilité n'est pas parfaite (écart de 24 %) et explicable en partie seulement par les différences de consommation constatées (6 %) entre les deux modalités (M2 et M5).



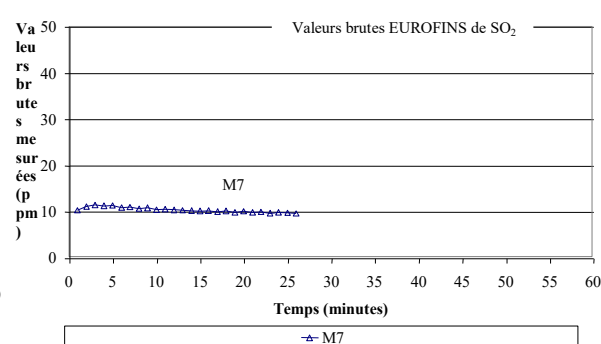
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



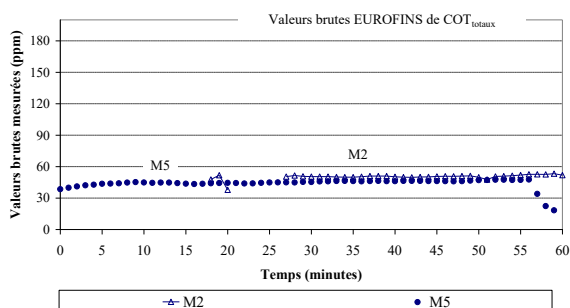
c) modalités à températures variables



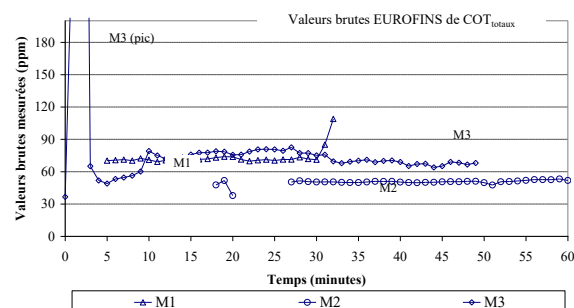
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 21 – Résultats bruts de SO_2

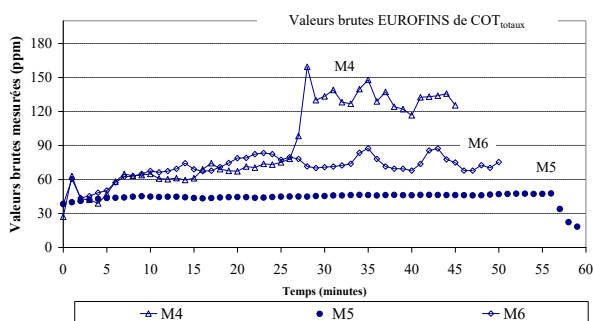
Les évolutions des émissions brutes de composés organiques totaux (COT) sont présentées dans la Figure 3 - 22, et doivent être analysés conjointement avec les émissions de méthane (CH_4) (Figure 3 - 23). En effet, ce sont les composés organiques volatils non méthaniques (COVMN) qui sont pris en compte par la législation en vigueur. Il faut noter que les émissions de COT ont leurs origines dans les réactions de combustion mais aussi dans le chauffage du bitume. Les résultats bruts montrent l'influence de la combustion et du bitume sur les émissions de COT. La modalité 7 (exécutée sans bitume) présente le niveau de COT le plus faible parmi toutes les modalités. Les modalités M2 et M5 font apparaître une bonne répétabilité pour les COT et le CH_4 . Les résultats obtenus sur l'ensemble de modalités ne permettent pas de dégager de tendances en fonction de la cadence et de la température. La variabilité des mesures semble très différente d'une modalité à l'autre : stabilité pour la modalité M5, variabilité plus importante (coefficient de variation de 15 %) pour la modalité M6, et présence de deux populations pour la modalité M4.



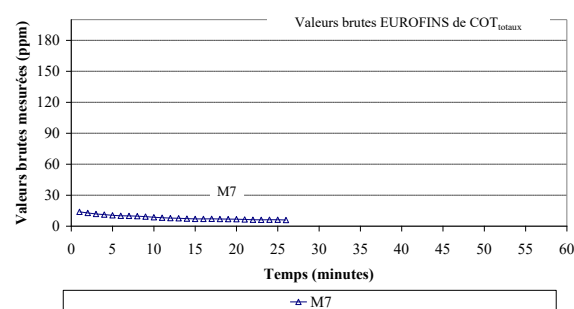
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



c) modalités à températures variables



d) modalité sans bitume

Figure 3 - 22 – Résultats bruts de COT

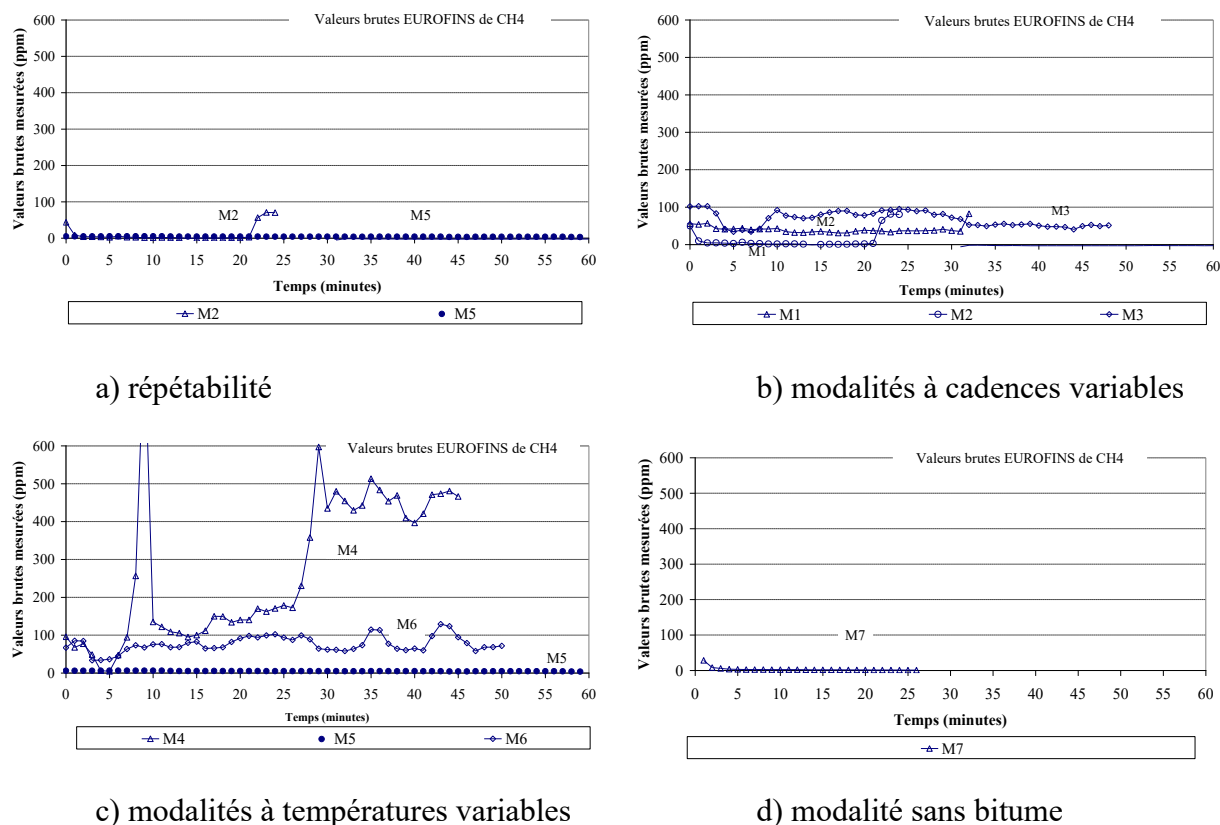


Figure 3 - 23 – Résultats bruts de CH_4

2.3.4 Identification des HAP

Compte tenu de la méthode d'échantillonnage et d'analyse des HAP (par prélèvements), les résultats d'analyse exprimés sous la forme d'une valeur moyenne établie pour une période de fabrication présumée stabilisée, on parle uniquement d'une émission totale cumulée sur une durée donnée, et non de valeurs brutes et d'évolution dans le temps. Une description de l'échantillonnage et de l'analyse des HAP est présentée en annexe 3.3.

Le choix de la période stabilisée a du être effectué en cours d'expérimentation, et non a posteriori comme les mesures en continu. Le choix s'est basé sur les paramètres de fonctionnement de la centrale, contrôlés au niveau du pupitre de contrôle. Dans ces périodes, la cadence du poste et la température de fabrication des enrobés sont restés stables. Dans nos expérimentations, les périodes de prélèvements des HAP, par modalité, ont été les suivantes : M1 (8h32min à 9h04min), M2 (10h00min à 10h30min), M3 (11h17min à 11h43min), M4 (14h06min à 14h35min), M5 (15h20min à 15h50min), M6 (16h47min à 17h17min) et M7 (17h36min à 18h08min).

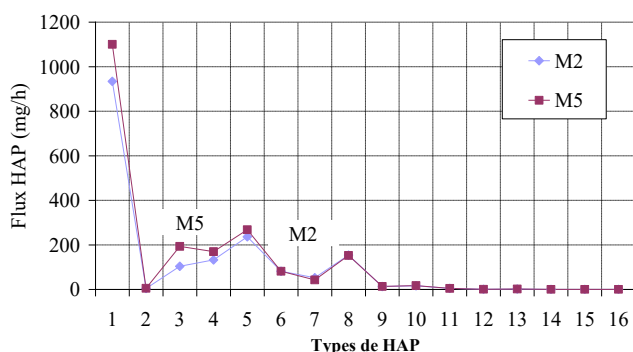
Pour s'affranchir des problèmes de dilution et de dilatation des gaz dans la cheminée, seules les masses émises rendent possibles des comparaisons entre les modalités fabriquées. Les résultats obtenus par modalité de fabrication, par type de HAP (liste des plus recherchées d'après EPA) et exprimés sous la forme de flux horaires, sont présentés dans le Tableau 3 – 14.

Tableau 3 - 14 – Identification par type de HAP prélevés lors des fabrications

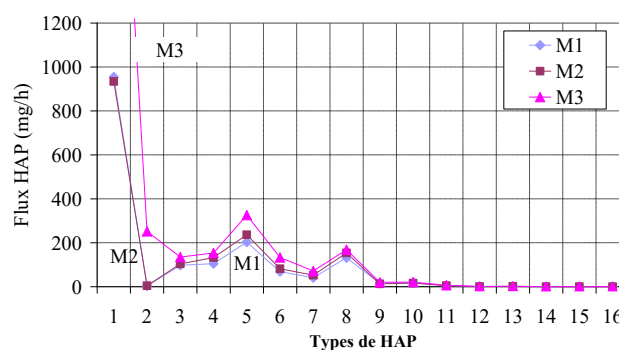
Type de HAP en mg/h	Modalités de fabrication						
	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7
	8h32 à 9h04	10h00 à 10h30	11h17 à 11h43	14h06 à 14h35	15h20 à 15h50	16h47 à 17h17	17h36 à 18h08
1 - naphthalène	954,6	934,1	2823,7	823,4	1100,4	2051,5	91,5
2 - acénaphthylène	3,0	4,2	251,5	4,7	5,1	209,1	14,5
3 - acénaphthène	97,1	103,8	134,8	148,4	193,3	140,5	10,8
4 - fluorène	104,8	132,4	153,6	103,0	169,6	232,5	29,0
5 - phénanthrène	202,8	236,3	325,7	123,8	267,9	484,5	89,6
6 - anthracène	68,7	81,6	133,2	36,8	81,5	244,2	30,0
7 - fluoranthène	40,9	52,2	71,3	17,6	42,7	132,3	39,2
8 - pyrène	131,7	154,0	168,4	56,8	152,5	375,1	130,3
9 - benzo[a]anthracène	14,7	12,9	19,7	7,6	13,3	51,0	30,8
10 - chrysène	18,3	16,39	21,02	8,73	17,2	49,2	28,1
11 - benzo[b,j]fluoranthène	5,02	4,74	6,55	2,14	4,8	12,1	5,8
12 - benzo[k,j]fluoranthène	0,45	0,5	0,7	0,2	0,6	1,1	0,6
13 - benzo[a]pyrène	1,7	1,38	2,02	0,75	1,7	4,5	2,2
14 - dibenzo[a,h]anthracène	0,07	0,09	0,08	0,14	0,13	0,25	0,13
15 - benzo[ghi]pérylène	0,07	0,09	0,08	0,14	0,13	0,31	0,36
16 - indéno[1,2,3-cd]pyrène	0,07	0,09	0,08	0,14	0,13	0,25	0,15
Total	1644	1735	4112	1334	2051	3988	503

Une première comparaison peut être réalisée entre les modalités M1 à M6 et la modalité M7, réalisée sans injection de bitume. Elle donne des résultats importants pour valider l'existence d'émissions mélangées (combustion + bitume), mais sont cependant insuffisantes pour avancer sur le « poids » de chaque partie. La modalité 7 présente le flux total de HAP le plus faible parmi toutes les modalités fabriquées. On retrouve par ailleurs cette même tendance dans les émissions organiques totales (COT).

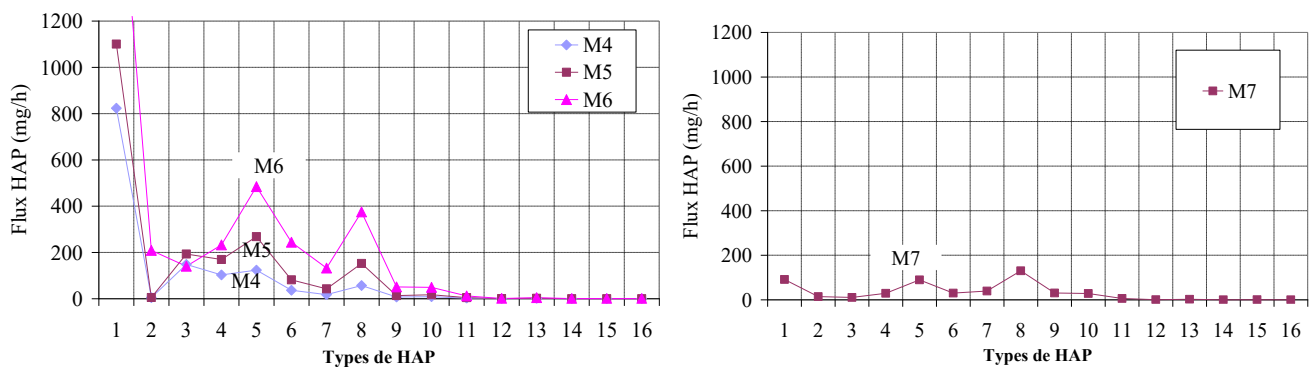
Quantitativement, les émissions les cinq plus importantes concernent respectivement le naphthalène, le phénanthrène, le pyrène, le fluorène et l'acenaphtène. Ces résultats sont à comparer à ceux trouvés par Gonzalez [Gonzalez et al, 2000] lors des mesures réalisées sur les résidus pétroliers, où on retrouve les mêmes HAPs mesurés en centrale d'enrobage. La Figure 3 - 24 présente les flux horaires des 16 HAP de façon à mettre en valeur la répétabilité, l'influence de la cadence, de la température et du bitume.



a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



c) modalités à températures variables

d) modalité sans bitume

Figure 3 - 24 – Résultats des 16 HAP plus mesurés selon les modalités de fabrication

Pour les modalités M1 à M6 (avec bitume), le naphthalène et le phénanthrène se détachent, avec 58 % et 11 % des émissions respectivement. Pour la modalité M7 (sans bitume), ce sont le pyrène et le naphthalène qui se détachent, avec 26 % et 18 % respectivement.

Les analyses des HAP étant sélectives, la Figure 3 - 25 représente une somme de l'ensemble des HAP recherchés par modalité. Le flux total des HAP croît avec la température (M4 à M6) et augmente de façon moins régulière pour la cadence (M1 à M3).

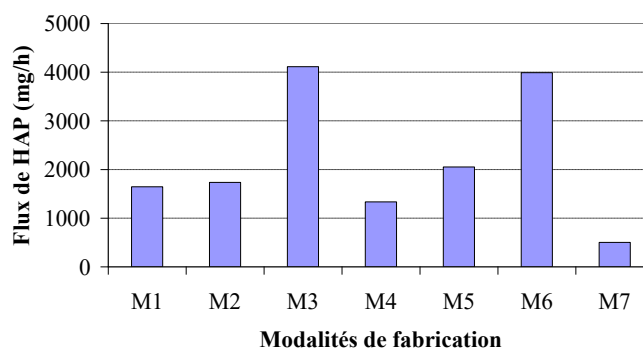


Figure 3 - 25 – Résultats du flux des HAP selon la modalité de fabrication

2.3.5 Consommation de gaz naturel

Initialement prévues en continu, les mesures de consommation en gaz naturel ont été perturbées par des problèmes de parasitage dus au variateur de commande du moteur du skip. La résolution de ce problème de parasitage n'ayant pas pu être réalisée pendant l'expérimentation, les résultats retenus pour les consommations (Figure 3-26) sont obtenus à partir des relevés (fréquence d'échantillonnage = 4 min environ) effectués sur le compteur à gaz. On constate que l'évolution des consommations en gaz naturel suit l'évolution de la cadence (M1 à M3) et de la température (M4 à M6). Par ailleurs on constate aussi que les modalités M2 et M5 ont été répétables en termes de consommation en gaz. La modalité M4 présente la plus faible consommation, la plage de consommation pouvant varier d'un facteur 2.

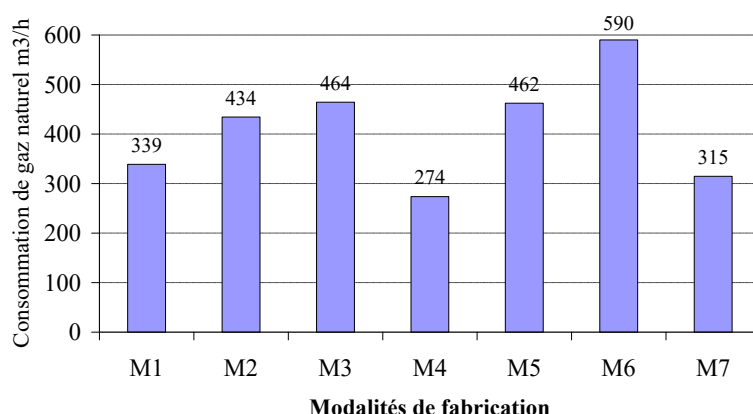


Figure 3 - 26 – Résultats de consommation en gaz naturel selon les modalités de fabrication – relevé manuel sur compteur

2.3.6 Discussions sur les fluctuations des émissions

A partir des valeurs brutes de mesures en continu de O₂, CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT, CH₄ les valeurs moyennes et les écart-types calculés pour chaque modalité sont présentés dans le Tableau 3 - 15, et les coefficients de variation dans le Tableau 3 - 16.

Tableau 3 - 15 – Valeurs moyennes et dispersions de O₂, CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT et CH₄

Modalités	Valeurs moyennes $\pm$ 1 Écart-type						
	O ₂ %	CO ₂ %	CO mg/kg	NO _x mg/kg	SO ₂ mg/kg	COT mg/kg	CH ₄ mg/kg
M1	14,8 $\pm$ 0,1	3,3 $\pm$ 0,1	60 $\pm$ 3,8	6 $\pm$ 0,6	-	62 $\pm$ 27	40 $\pm$ 10
M2	14,1 $\pm$ 0,4	3,7 $\pm$ 0,3	222 $\pm$ 334	20 $\pm$ 1,9	16 $\pm$ 3,0	51 $\pm$ 1,7	6 $\pm$ 12,3
M3	13,5 $\pm$ 1,2	3,7 $\pm$ 0,6	2840 $\pm$ 791 ^b	21 $\pm$ 3,7	18 $\pm$ 4,6	93 $\pm$ 129	68 $\pm$ 21
M4	14,8 $\pm$ 0,7	3,2 $\pm$ 0,3	313 $\pm$ 695	16 $\pm$ 3,2	11 $\pm$ 1,7	91 $\pm$ 37	270 $\pm$ 197
M5	13,9 $\pm$ 0,1	3,7 $\pm$ 0,1	39 $\pm$ 20	24 $\pm$ 1,1	21 $\pm$ 0,9	44 $\pm$ 1,7	5 $\pm$ 0,6
M6	12,8 $\pm$ 0,1	4,0 $\pm$ 0,1	3035 $\pm$ 163 ^b	28 $\pm$ 0,6	27 $\pm$ 2,7	70 $\pm$ 11	77 $\pm$ 21
M7	13,3 $\pm$ 0,2	3,9 $\pm$ 0,1	20 $\pm$ 63	31 $\pm$ 1,6	10 $\pm$ 0,5	9 $\pm$ 5,9	31 $\pm$ 141

^a Modalité M1 : 8h32min à 9h05min ; Modalité M2 : 9h29min à 10h29min ; Modalité M3 : 10h57min à 11h46min ; Modalité M4 : 13h50min à 14h35min ; Modalité M5 : 15h03min à 16h02min ; Modalité M6 : 16h26min à 17h16min et Modalité M7 : 17h36min à 18h07min.

^b Valeur limitée par la saturation de l'analyseur

Les valeurs moyennes n'appellent pas de commentaires particuliers, à l'exception des valeurs de CO, pour les modalités 3 et 6, et de la valeur de CH₄, pour la modalité 4. Ces constituants, spécifiques de problèmes de combustion, mettent en évidence une dysfonctionnement de la qualité de cette combustion, dont le facteur prépondérant apparaît être le réglage du brûleur.

Tableau 3 - 16 – Coefficients de variation des mesures d'émission réalisées, en %

Modalités	O ₂	CO ₂	CO	NO _x	SO ₂	COT	CH ₄
M1	0,8	1,9	6,3	8,8	-	44,3	24,7
M2	3,1	7,1	150,4	9,5	18,6	3,4	193,7
M3	8,9	17,1	27,9	17,8	26,1	140,0	30,5
M4	4,5	10,8	222,2	20,3	15,3	40,5	73,2
M5	0,6	1,6	50,7	4,7	4,3	4,1	11,7
M6	0,3	1,7	5,4	2,0	10,0	15,3	27,1
M7	1,1	2,9	313,3	5,2	5,1	62,4	461,7

Les dispersions calculées permettent de quantifier la stabilité des émissions mesurées. En effet une période stabilisée de fabrication n'implique pas nécessairement stabilité des émissions de polluants pendant ces périodes de fabrication.

2.4 Traitement des données selon la méthodologie développée

Selon la méthodologie décrite (chapitre 2), il s'agit d'effectuer des corrections par rapport:

- Au matériel – correction des dérives des analyseurs lors d'une journée de mesures ;
- Aux unités – les valeurs mesurées en mg/kg sont ramenées à des mg/Nm³ secs ou humides ;
- Au temps – il est nécessaire d'appliquer une synchronisation pour tous les appareils de mesure ;
- A une teneur en oxygène de référence – compte tenu que les mesures ont été effectuées avec des teneurs en oxygène différentes, selon la modalité de fabrication, il faut exprimer les résultats à une teneur de référence pour les rendre comparables ;
- A des périodes stabilisées – détermination des périodes de fabrication stabilisées pour minimiser les dispersions dans le calcul des valeurs moyennes ;
- A la prise en compte de l'indicateur de la combustion.

2.4.1 Synchronisation des acquisitions de données

Les données provenant de sources différentes, comme les analyseurs d'émissions gazeuses (O₂, CO₂, NO_x, CO, COT, CH₄), les logiciels d'acquisition de données (ADLINE) et le pupitre de commande de la centrale, une règle simple s'impose: toutes ces données acquises doivent être prises dans le même temps pour être comparables. Il faut donc effectuer une synchronisation pour pouvoir présenter les évolutions selon la même échelle de temps.

2.4.2 Corrections pour une teneur en oxygène de référence

La teneur en oxygène a été mesurée selon la norme NF X 43-300. La réglementation en vigueur (arrêté du 2 février 1998) préconise que c'est l'arrêté d'autorisation qui précise la teneur en oxygène des gaz résiduels, à laquelle sont rapportées les valeurs limites. Selon de Sars [de Sars, 2006], le pourcentage d'oxygène de référence utilisé en Europe (Allemagne, Belgique et Pays-Bas) est de 17 %. Cette teneur en oxygène est fondamentale car une mesure rapportée à une teneur en oxygène de 17 % sera doublée si elle est rapportée à une teneur en oxygène de 13 %.

Pour l'harmonisation des résultats de mesures, un facteur taux d'oxygène de référence est nécessaire. Pour la présentation des données, nous avons donc retenu la valeur de 17 % comme teneur en oxygène de référence, ce qui conduit à multiplier l'ensemble des concentrations en polluant par le facteur suivant :

$$FN = \frac{(21-17)}{(21 - \text{teneurO}_2)} \quad (3-1)$$

Dans le cas de la modalité M1, $FN = \frac{(21-17)}{(21-14,85)} = 0,647$. Pour l'ensemble des modalités fabriquées, les facteurs de normalisation en oxygène calculés sont dans le Tableau 3-17.

Tableau 3 - 17 – Facteurs de normalisation en oxygène pour les modalités fabriquées

	<i>Modalités</i>						
	<i>M1</i>	<i>M2</i>	<i>M3</i>	<i>M4</i>	<i>M5</i>	<i>M6</i>	<i>M7</i>
Facteur de normalisation d'O ₂ à 17%	0,647	0,585	0,513	0,678	0,563	0,490	0,520

2.4.3 Exploitation des données

Les connaissances acquises lors des campagnes de mesures antérieures, soit au niveau des émissions, soit au niveau des paramètres de fonctionnement de la centrale, ont permis la mise en place de la méthodologie d'analyse de données développée dans le chapitre 2, où les objectifs sont de pouvoir étudier les variabilités des mesures réalisées et de donner des valeurs environnementales aux fabrications des différentes formules d'enrobés.

Suite à la validation des données, la deuxième étape d'exploitation des données est liée à la conformité du produit selon la Norme NF P 98-150. Pour toutes les modalités fabriquées (M1 à M7), l'enrobé est considéré conforme selon :

- Le dosage des matériaux (granulats, sables et bitume) : La conformité est assurée à partir du relevé automatique des dosages effectués pendant la fabrication et des analyses (granulométrie et teneur en liant) effectuées sur des enrobés prélevés sur chantier ;
- La température de l'enrobé : Il s'agit d'assurer que les températures de fabrication respectent la température du bitume selon leur classe. Cette exigence n'est pas applicable pour toutes les modalités, notamment pour la modalité M6, compte tenu du niveau de température (180 °C) prévu dans le plan d'expérience développé.

Les démarrages, les arrêts et les variations maximales de température de l'enrobé (± 5 °C) ont constitué les seuls critères pour rendre « non conforme » plusieurs mesures réalisées dans nos expérimentations.

Le passage de la conformité à la stabilité est lié au rapport de la plage de réglage du brûleur et la cadence de production. Un résumé statistique de l'application de la méthodologie développée et appliquée sur les données brutes est dans le Tableau 3 - 18. Compte tenu du mode opératoire des mesures des HAP, les résultats concernant ces constituants échappent aux dispositions précédentes.

Tableau 3 - 18- Bilan statistique des périodes conformes et stabilisées de fabrication

Modalité de fabrication	Quantité de mesures brutes	Période de fabrication définie comme			
		Conforme		Stabilisée	
		% de mesures	Quantité de mesures	% de mesures	Quantité de mesures
M1	33	60,6%	20	57,6%	19
M2	61	36,1%	22	36,1%	22
M3	50	36,0%	18	0,0%	0
M4	46	47,8%	22	45,7%	21
M5	60	43,3%	26	43,3%	26
M6	51	45,1%	23	0,0%	0
M7	32	84,4%	27	81,3%	26
<i>Total</i>	<i>333</i>	<i>47,4 %</i>	<i>158</i>	<i>34,2%</i>	<i>114</i>

On constate que pour une base de données composée de 333 mesures, 158 mesures (47,4 % du total) ont été considérées conformes et seulement 114 mesures (34,2 % du total) ont été considérées stables. Par rapport à l'ensemble des données mesurées, cette faible quantité de données définies comme stables n'était pas du tout prévue au départ. Cette restriction des données disponibles est la conséquence de la prise en compte de la définition des périodes stabilisées et de l'application de la méthodologie d'analyse de données développée.

La dernière étape préconisée par la méthodologie d'analyse de données définit l'utilisation des données en référence à un indicateur de combustion. A ce moment, l'analyse de la qualité de la combustion à partir de l'indicateur de qualité de combustion (I_{CO/CO_2}) est donc utilisée. Lors du réglage de la combustion exécuté avant l'expérimentation et réalisé pour une fourchette d'allure du brûleur comprise entre 47 et 62 %, la valeur maximale du rapport CO/CO_2 a été égale à 0,63. Cette valeur a été prise comme seuil d'une bonne ou mauvaise combustion. Les données exploitables obtenues avec une bonne qualité de combustion ($I_{CO/CO_2} \leq 0,63$), constituent la base de données pour une étude fine des conditions de production de l'enrobé. Le Tableau 3 - 19 récapitule les périodes finalement exploitables.

Tableau 3 - 19- Bilan statistique des périodes exploitables de fabrication

Modalité de fabrication	Quantité de mesures brutes	Période de fabrication définie comme exploitable	
		% de mesures	Quantité de mesures
M1	33	57,6%	19
M2	61	19,7%	12
M3	50	0,0%	0
M4	46	45,7%	21
M5	60	43,3%	26
M6	51	0,0%	0
M7	32	81,3%	26
Total	333	31,2%	104

2.4.4 Indicateur de la combustion

La qualité de la combustion peut être évaluée par l'indice I_{CO/CO_2} obtenu à partir des mesures réalisées. Ce rapport est par ailleurs toujours utilisé lors du réglage de la combustion où, en augmentant la teneur en oxygène, on diminue la teneur en CO. Le fait d'augmenter la quantité d'air qui ne participe pas directement aux réactions de combustion, fait baisser la teneur en CO_2 . En conséquence, le rapport CO/CO_2 , indicateur de la qualité de la

combustion, augmente. Les évolutions des indices I_{CO/CO_2} , par modalité de fabrication, sont présentées sur la Figure 3 - 27, pour les différentes modalités.

Ces résultats ont été obtenus en période conforme de production et dans la plage de réglage du brûleur pour les modalités M1, M2, M5 et M7 et en dehors la plage de réglage pour les modalités M3, M4 et M6. Les indices obtenus pour les modalités M3 et M6 sont très supérieurs aux autres indices, leur présentation a nécessité un changement d'échelle. Pour la modalité M4, bien que hors plage de réglage, l'indice n'est que très légèrement supérieur aux indices obtenus dans la plage de réglage. La modalité M4 est donc présentée avec la même échelle que les modalités M1, M2, M5 et M7.

Pour les modalités M3 et M6, la variation I_{CO/CO_2} est due uniquement à la variation du CO_2 , puisque l'analyseur de CO était saturé. Pour les autres modalités, l'indice est resté stable durant les fabrications.

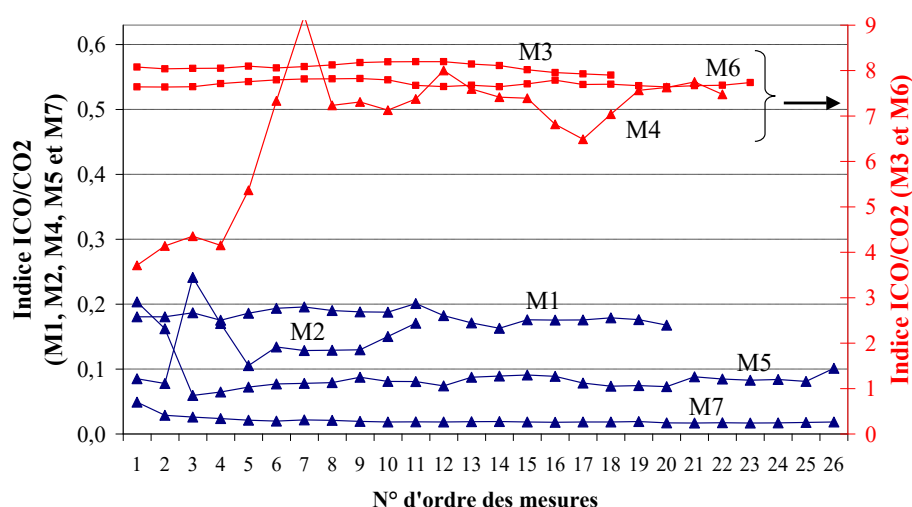


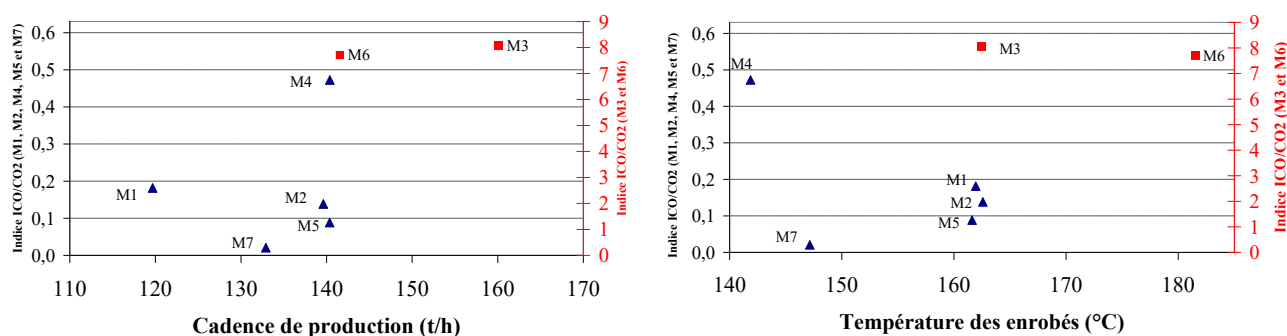
Figure 3 - 27 – Évolution de l'indice I_{CO/CO_2} selon les modalités de fabrication

Le tableau ci-après présente les indices moyens obtenus à partir des données précédentes pour chaque modalité de fabrication.

Tableau 3 - 20 – Indice I_{CO/CO_2} selon les modalités de fabrication

Modalité	Cadence de production (t/h)	Température des enrobés (°C)	Indice moyen I_{CO/CO_2} (mg/kg/%)	Allure brûleur (%)
M1	120	160	0,18	47,2
M2	140	160	0,39	49,2
M3	160	160	8,08	64,1
M4	140	140	0,47	37,7
M5	140	160	0,09	51,7
M6	140	180	7,71	68,6
M7	140	160	0,02	49,4

L'évolution de l'indice moyen I_{CO/CO_2} obtenu lors de la campagne en conditions dédiées de fabrication sur le TSE fixe au gaz naturel est présentée sur la Figure 3 - 28 .



a) selon les cadences de fabrication

b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 28 – Évolution de l'indice ICO/CO₂ selon les cadences et les températures de fabrication

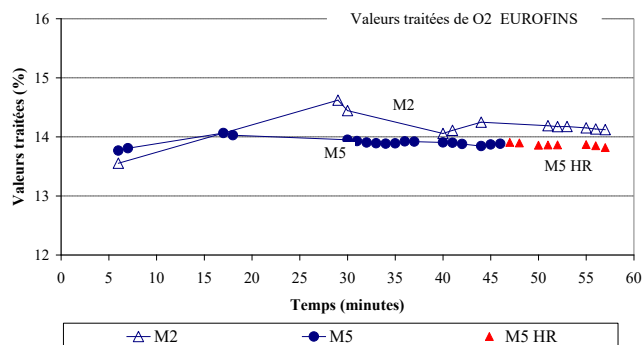
Compte tenu des résultats, aucune relation en fonction soit de la cadence soit de la température ne peut être établie pour l'indice ICO/CO₂ obtenu dans la plage de réglage de la combustion. Malgré le faible nombre de valeurs moyennes disponibles, cette constatation est conforme aux attentes dans la mesure où le réglage de la combustion est réalisé pour minimiser et rendre constant ce rapport CO/CO₂. Pour les modalités hors plage de réglage, la très grande différence entre l'indice de la modalité M4 et les indices des modalités M3 et M6 montrent que l'absence de réglage est très importante pour le fonctionnement à haut régime (allure) du brûleur (Tableau 3 - 20).

2.5 Résultats d'émissions après traitement de données

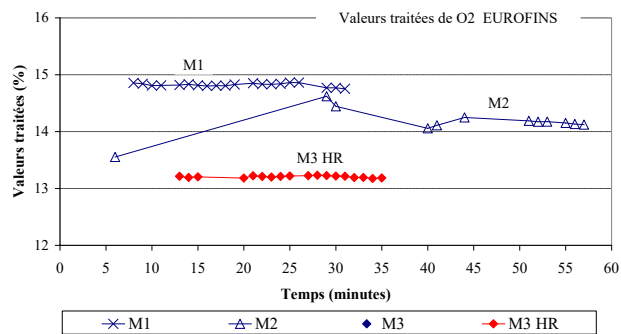
2.5.1 Concentrations de O₂, CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT, CH₄ en période stabilisée

De la même manière que pour les données brutes, les évolutions des mesures de concentration en fonction du temps ont été tracées pour chaque modalité de fabrication. Bien que ne faisant pas partie des données à analyser, les valeurs obtenues hors plage de réglage figurent sur les graphiques, pour montrer l'incidence importante de ce réglage de combustion. Ces valeurs hors réglage sont cependant représentées avec un indice noté « HR » (couleur rouge).

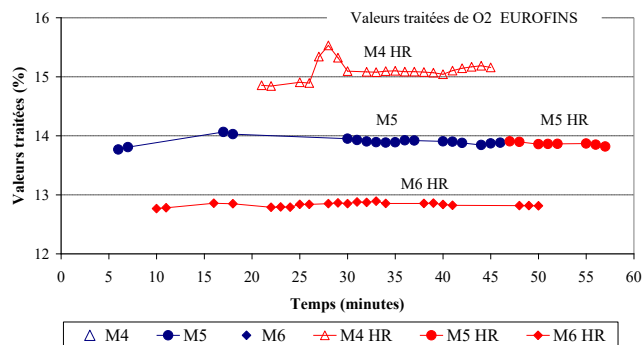
Les valeurs de O₂ (Figure 3 - 29) et de CO₂ (Figure 3 - 30) sont stables et n'appellent pas de commentaire particulier par rapport à l'interprétation des données brutes. Les modalités M2 et M5, identiques en termes de consigne de production, ont des ordres de grandeur similaires, indiquant une bonne répétabilité. L'influence de la cadence et de la température est nettement visualisée. Les % en O₂ sont plus faibles pour les cadences et les températures plus élevées à l'inverse des émissions de CO₂. Comme les résultats sont exprimés en concentration volumique, lorsque l'oxygène augmente, le volume total d'air augmente et les concentrations rapportées au volume total de gaz, telle la concentration en CO₂, diminuent.



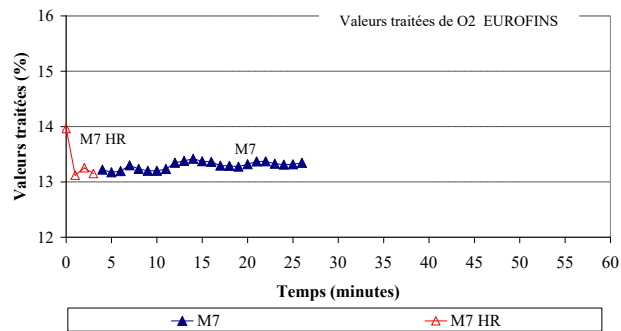
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables

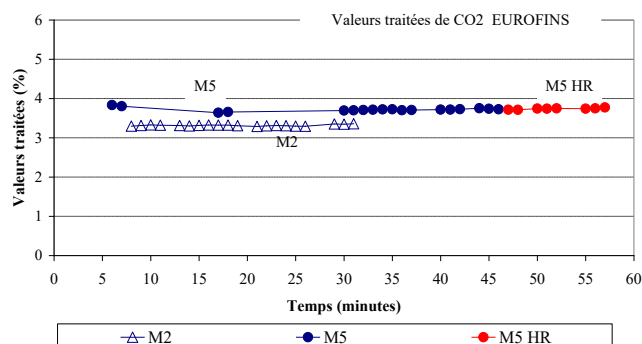


c) modalités à températures variables

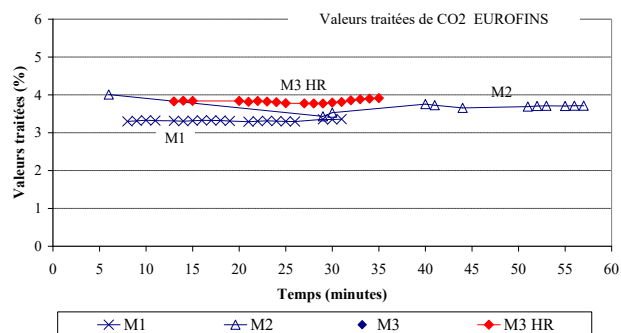


d) modalité sans bitume

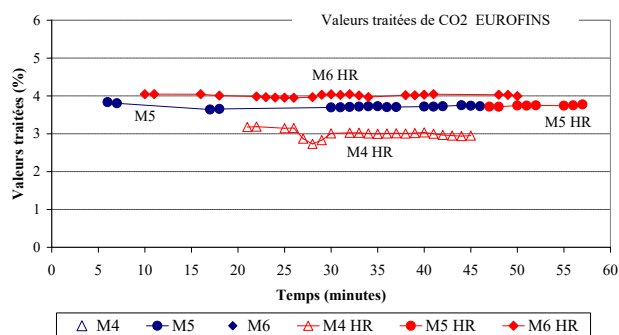
Figure 3 - 29 – Résultats de O₂ (obtenus en période stabilisée de production)



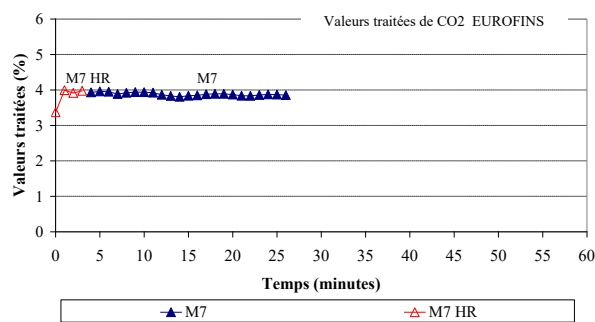
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



c) modalités à températures variables



d) modalité sans bitume

Figure 3 - 30 – Résultats de CO₂ (obtenus en période stabilisée de production)

Les évolutions des émissions de CO recalculées pour un taux d'oxygène de référence de 17 % sont présentées sur la Figure 3 - 31. En dehors de la plage de réglage du brûleur, les émissions de CO sont très fortes et montrent l'existence d'une mauvaise combustion. Dans les plages de réglage, les émissions sont inférieures à 50 mg/Nm³. On détache la modalité M7, qui présente le niveau le plus bas parmi toutes les modalités (11 mg/Nm³). Cette modalité se distingue, parmi les modalités comprises dans la plage de réglage de la combustion, par la plus faible consommation en gaz naturel (tableau 3 –25). Les modalités M2 et M5, malgré une stabilité moins bonne pour la modalité M2, ne montrent pas de problème notables de répétabilité.

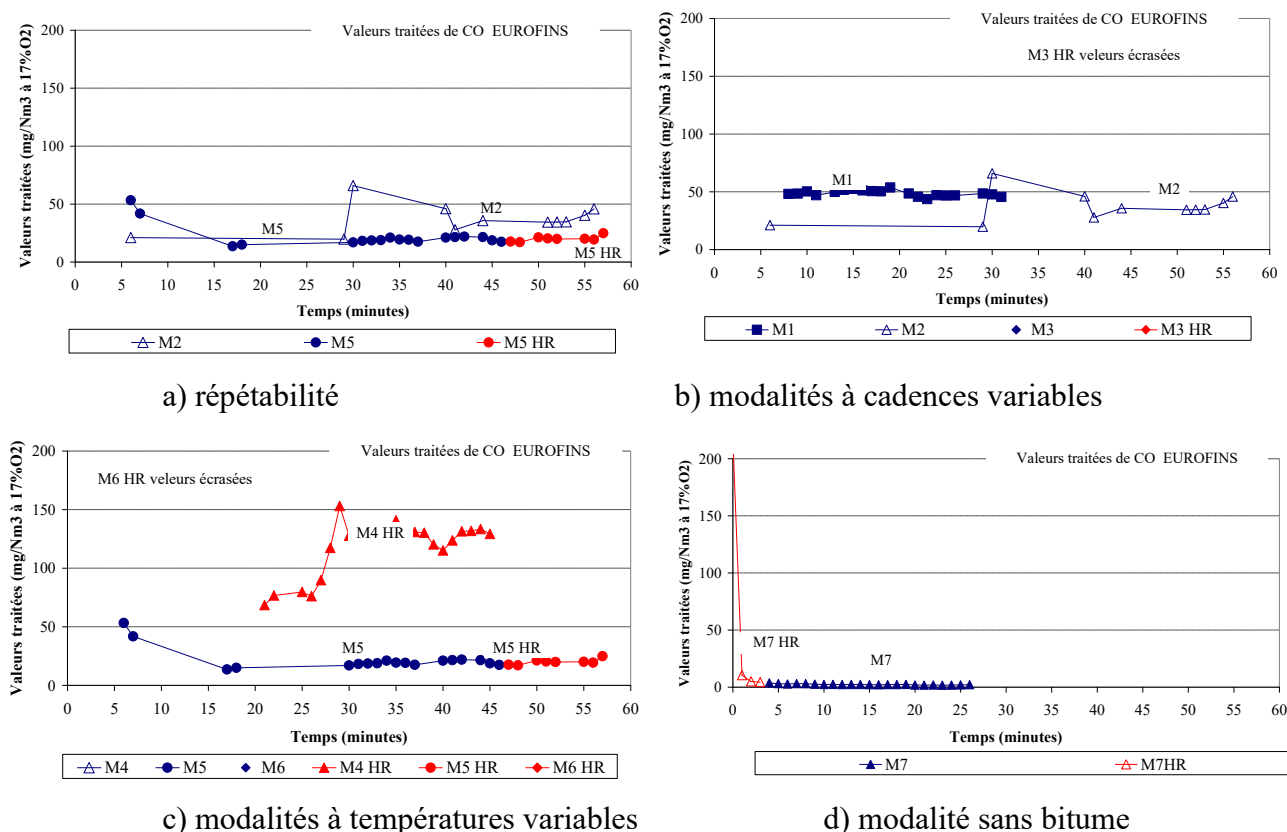
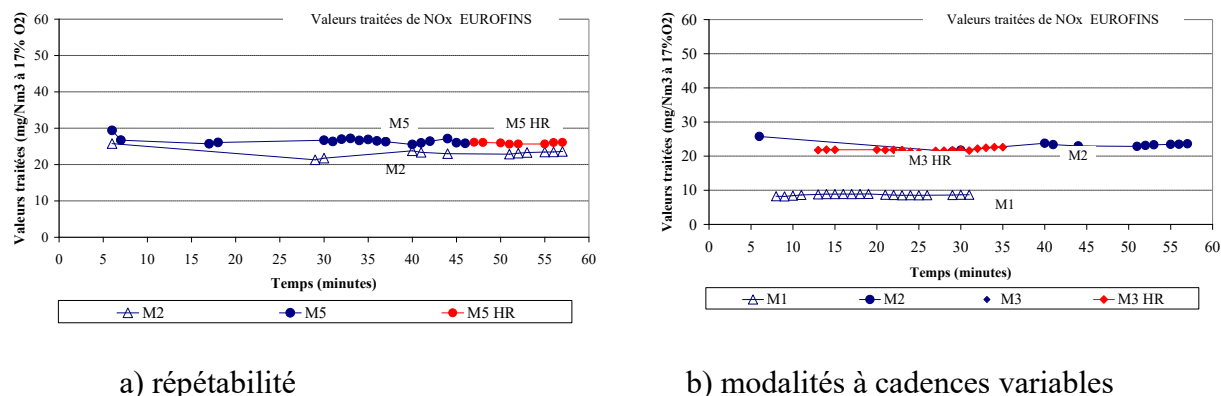
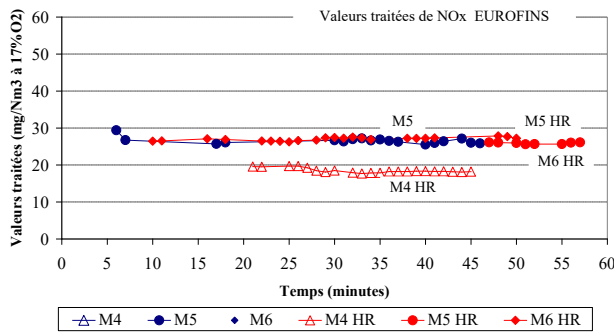


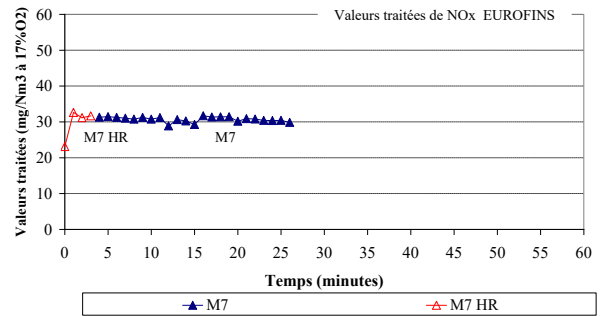
Figure 3 - 31 – Résultats de CO (obtenus en période stabilisée de production)

Les émissions de NO_x sont présentées dans la Figure 3 - 32. Contrairement aux émissions de CO, les émissions de NO_x, pour les modalités hors plage de réglage, ne présentent pas de valeurs extrêmes. Toutes les mesures sont inférieures ou égales à 30 mg/Nm³, donc très largement inférieures à la limite réglementaire (tableau 1-21). La modalité M7 ne présente logiquement pas de différence attribuable au bitume.





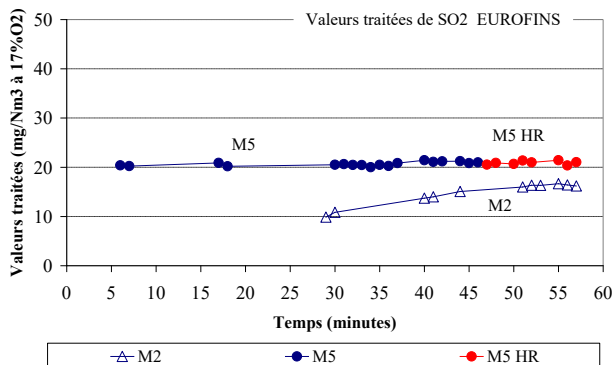
c) modalités à températures variables



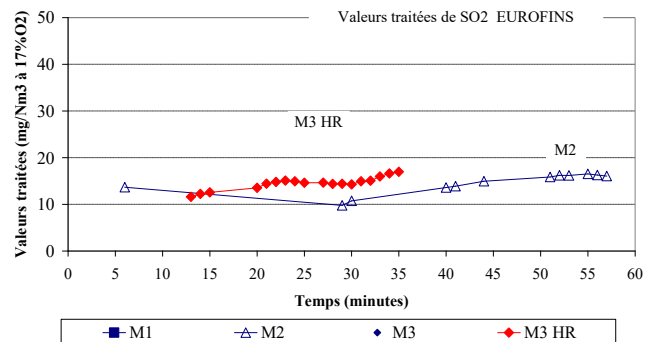
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 32 – Résultats de NO_x (obtenus en période stabilisée de production)

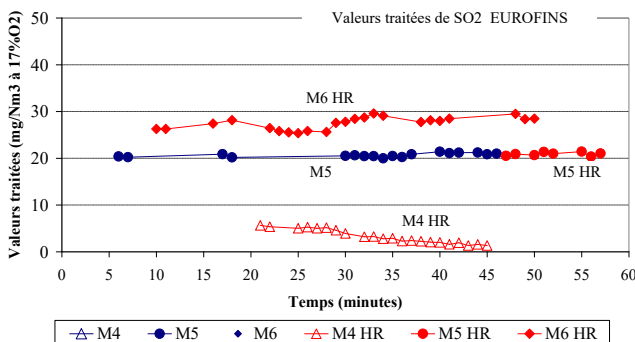
Les évolutions des émissions de SO₂ sont présentées dans la Figure 3 - 33. Malgré le manque de connaissance antérieure dans ce domaine, la répétabilité ne semble pas bonne, l'écart constaté ne pouvant pas être expliqué par la faible différence de consommation (tableau 3-25). Bien que les données hors plage de réglage soit théoriquement exclues de l'interprétation, il semble cependant, en les prenant en compte, que l'évolution des concentrations en SO₂ suive l'évolution des consommations. Par ailleurs, on constate que la modalité M7 présente la plus faible concentration, ce qui pourrait être en partie expliqué par l'absence de bitume.



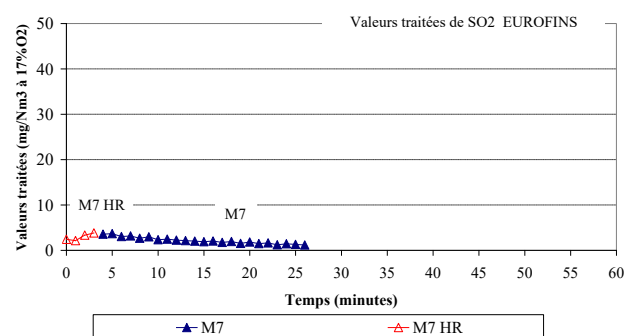
a) répétabilité



b) modalités à cadences variables



c) modalités à températures variables



d) modalité sans bitume

Figure 3 - 33 – Résultats de SO₂ (obtenus en période stabilisée de production)

Les évolutions des émissions de méthane sont présentées dans la Figure 3 - 34. Les concentrations pour les modalités dans la plage de réglage du brûleur sont restées très faibles (inférieures à 15 mgEq.C/Nm³). La modalité M4, hors réglage, se distingue par la présence

importante d'imbrûlés gazeux, qui se traduit par une concentration 10 fois supérieure en méthane.

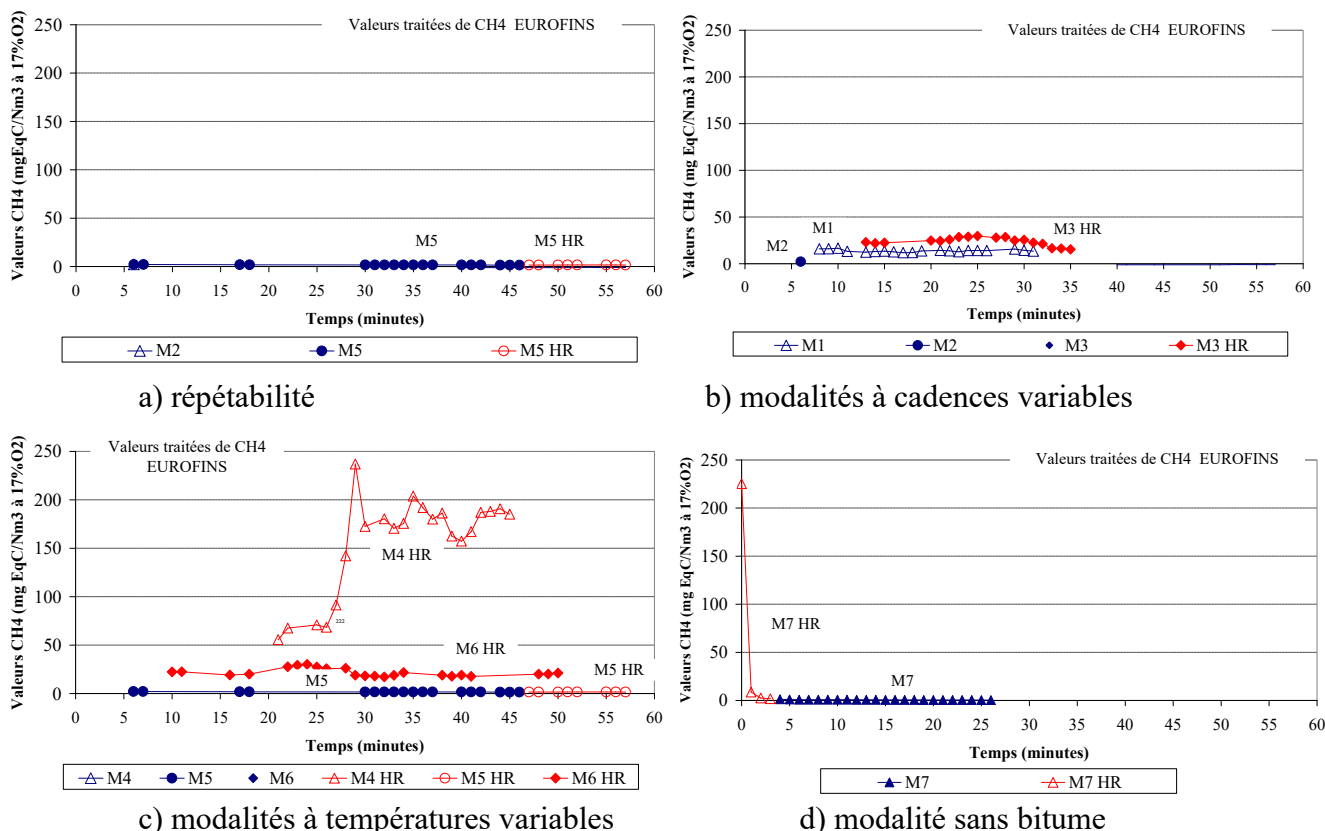
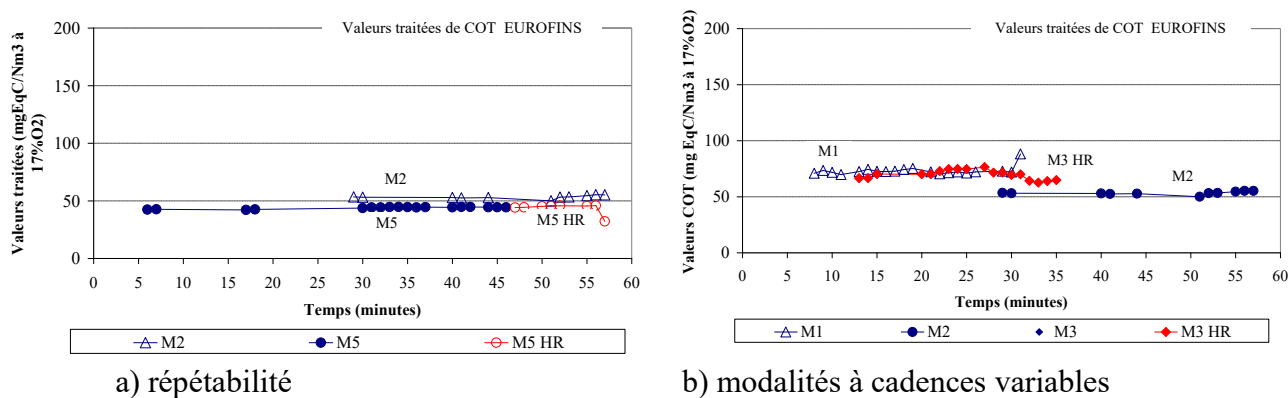
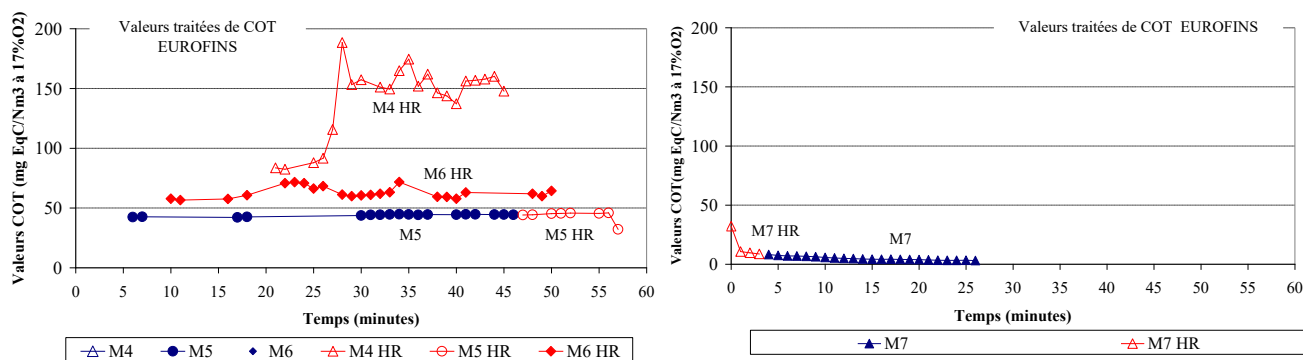


Figure 3 - 34 – Résultats de CH_4 (obtenus en période stabilisée de production)

Les évolutions des émissions organiques totales (COT) sont présentées sur la Figure 3 - 35. Pour la modalité M7, la concentration en COT est beaucoup plus faible que pour les autres modalités, ce qui laisse supposer une influence importante du bitume sur ce rejet gazeux. Parmi les modalités hors réglage, seule la modalité M4 présente des valeurs de concentration très supérieures à celles des autres modalités. Compte tenu de la remarque précédente, concernant l'influence du bitume, cette modalité M4 (température enrobé 140 °C) ne devrait pas se distinguer de la sorte par rapport à la modalité M6 (température enrobé 180 °C). Il en ressort que la combustion a vraisemblablement une influence importante sur ces émissions de COT, la modalité M4 étant caractérisée par une présence importante de méthane, comptabilisée dans les émissions de COT. A partir des données disponibles, il n'est pas possible de vraiment distinguer la part bitume de la part combustion.





c) modalités à températures variables

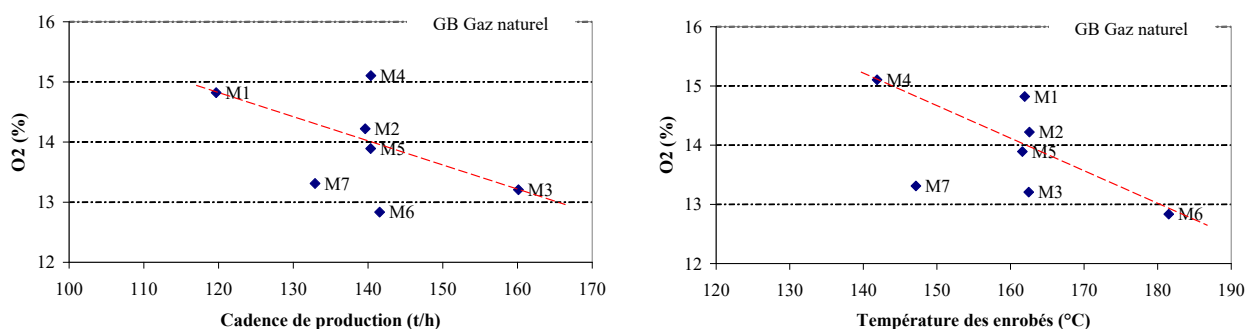
d) modalité sans bitume

Figure 3 - 35 – Résultats de COT (obtenus en période stabilisée de production)

2.5.2 Détermination des plages d'émissions moyennes en périodes stabilisées

Pour chaque constituant gazeux pris en compte, les valeurs moyennes des émissions en période stabilisée sont présentées les figures 3 – 36 à 3 – 42.

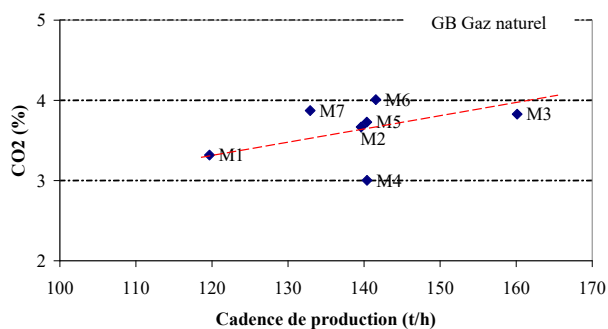
La concentration en oxygène diminue lorsque la cadence de production augmente (M1, M2 et M3 figure 3–36 a) et lorsque la température des enrobés augmente (M4, M5 et M6 figure 3 –36 b). En fait, l'évolution de la concentration en oxygène est liée à l'évolution de la consommation en combustible. Ceci s'explique car pour une augmentation de la consommation le maintien constant de la dépression au nez du brûleur, qui constitue une consigne de fonctionnement de la centrale, assure une constance du volume d'air parasite (chapitre 1).



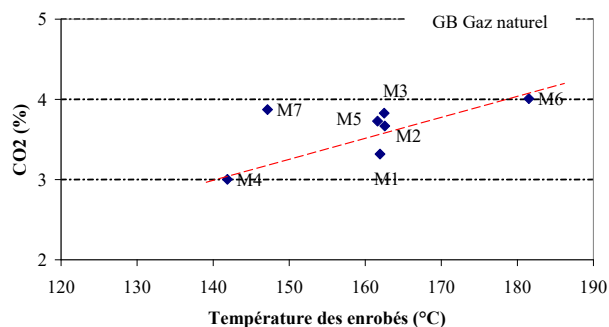
a) selon les cadences de production

b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 36 – Tendence de l'émission d'O₂ (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)



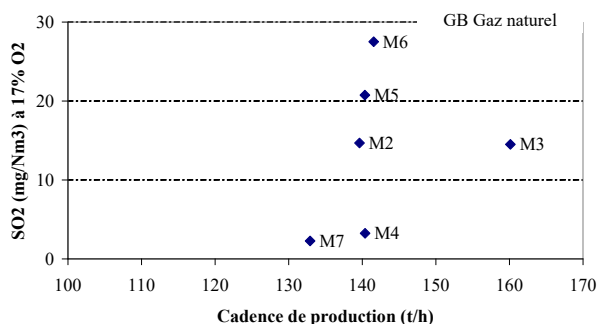
a) selon les cadences de production



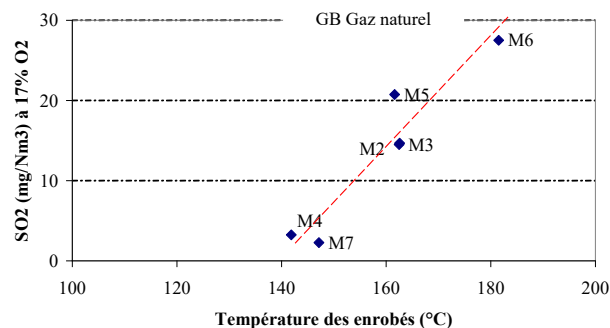
b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 37 – Tendance de l'émission de CO₂ (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

De façon systématique, la teneur en CO₂ augmente avec la cadence et la température de fabrication donc avec la consommation en combustible.



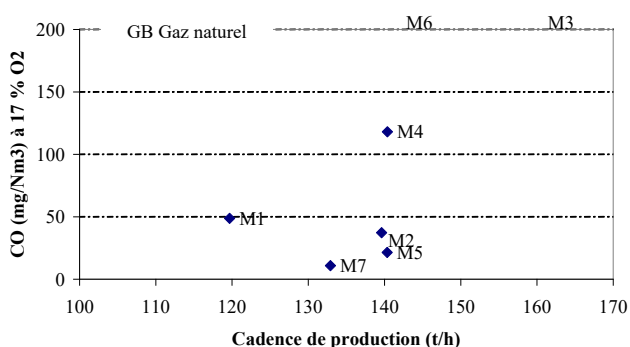
a) selon les cadences de production



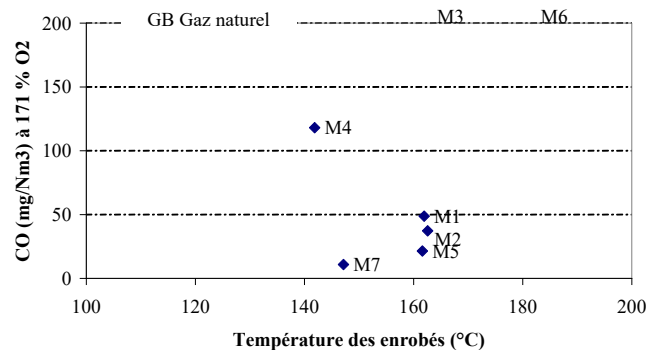
b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 38 – Tendance de l'émission de SO₂ (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

L'émission la plus faible de SO₂ est obtenue avec la modalité sans bitume. Par ailleurs, la température des enrobés est importante puisqu'il semble que les émissions de SO₂ augmentent avec la température des enrobés.



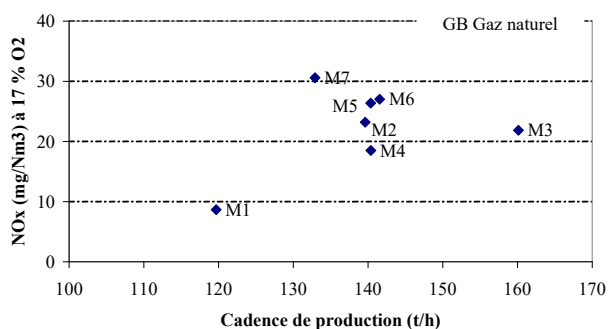
a) selon les cadences de production



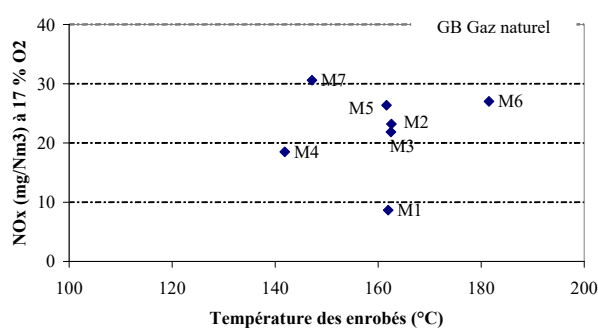
b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 39 – Tendance de l'émission de CO (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

Compte tenu des résultats présentés, il n'est pas possible de dégager de tendances d'évolution en fonction des paramètres cadence et température des enrobés.



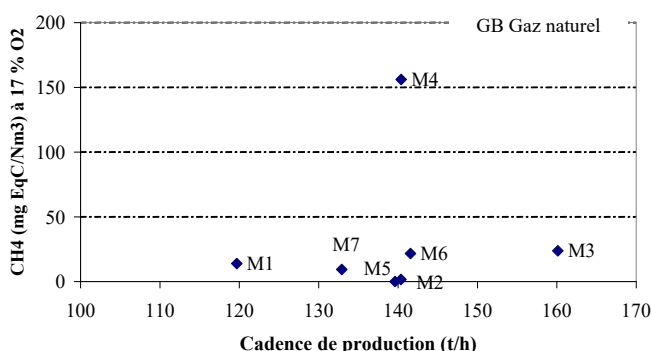
a) selon les cadences de production



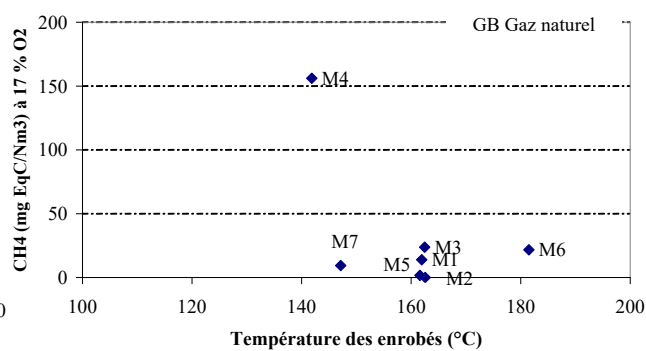
b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 40 – Tendence de l'émission de NO_x (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

La cadence de production et la température des enrobés ne constitue pas les paramètres principaux dans la constitution de NO_x, puisque les résultats ne montrent pas de tendance notable.



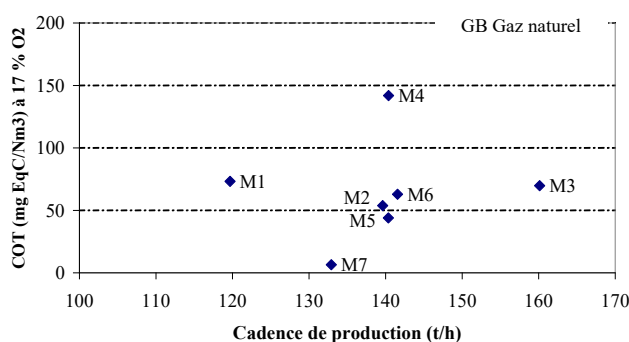
a) selon les cadences de production



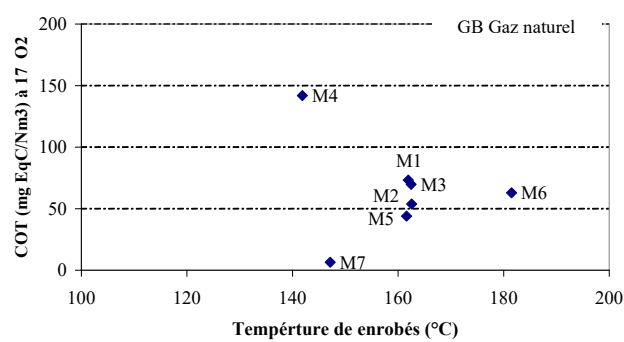
b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 41 – Tendence de l'émission de CH₄ (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

La modalité M4 présente la plus forte concentration en CH₄. Cette modalité a été réalisée hors plage de réglage de la combustion mais pour une allure faible du brûleur (faible consommation).



a) selon les cadences de production



b) selon les températures des enrobés

Figure 3 - 42 – Tendence de l'émission de COT (TSE fixe au gaz naturel en période stabilisée)

L'émission la plus faible de COT est obtenue avec la modalité sans bitume (M7). Par ailleurs, la modalité M4 présente la plus forte concentration en COT, certainement influencée par la présence de CH₄ comme expliqué précédemment.

En résumé, et selon l'objectif recherché, les valeurs moyennes et les dispersions des analyses en continu de O₂, CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT, CH₄, rapportées à une valeur d'oxygène de référence de 17 %, sont présentées :

- dans le Tableau 3 - 21, pour les données conformes, qui traduisent le fonctionnement de la centrale lors de la fabrication d'un enrobé conforme à la norme produit concernée ;
- dans le tableau 3 – 22, pour les données stabilisées qui permettent, pour des conditions de fonctionnement identiques incluant la vérification de la plage de réglage du brûleur, la comparaison des rejets gazeux en fonction de paramètres dédiées (cadence, température, liant) ;
- dans le Tableau 3 - 23 pour les données exploitables qui permettent, à partir des données stabilisées obtenues pour un bon indice de combustion, de vérifier l'incidence de cette combustion sur les rejets gazeux générés lors de la fabrication ;
- dans le tableau 3 – 24, pour la modalité sans bitume, à fin d'observer l'incidence du bitume sur les rejets générés.

Le fonctionnement habituel des centrales d'enrobage pouvant conduire à des dépassements de la plage de réglage de la combustion, le Tableau 3 - 21 montre les valeurs moyennes obtenues en conditions réelles de fonctionnement.

Tableau 3 - 21 – Valeurs moyennes et écart-types de CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT et CH₄, en mg/Nm³ rapportées à 17% d'O₂, en période conforme de fabrication

	Consommation en combustible m ³ /h	Valeurs moyennes ± 2 Écart-type						
		O ₂ %	CO ₂ %	SO ₂ mg/Nm ³	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³	COT mgEqC/Nm ³	CH ₄ mgEqC/Nm ³
M1	339	14,8±0,1	3,3±0,1	-	49±5,1	9±0,4	73±7,6	13,9±2,7
M2	434	14,2±0,3	3,7±0,2	15±4,7	37±26,0	23±1,6	53±2,9	0,0
M3	464	13,2±0,1	3,8±0,1	15±2,7	1982±0,1	22±0,8	70±8,3	23,8±0,1
M4	274	15,1±0,3	3,0±0,2	3±3	118±47,0	19±1,3	142±60,0	156,0±0,1
M5	462	13,9±0,1	3,7±0,1	21±0,8	21±16,4	26±1,6	44±5,2	1,7±0,3
M6	590	12,8±0,1	4,0±0,1	28±2,7	1891±0,2	27±9,0	63±9,6	21,6±8,0

Les modalités qui correspondent au fonctionnement stabilisé tel que défini dans la méthodologie sont regroupées dans le tableau 3 – 22. Les modalités M3, M4 et M6 sont considérées non stabilisées en dehors de la plage de réglage de la combustion. Pour la modalité M5, les différences de valeurs moyennes entre données conformes et stabilisées s'expliquent par des écarts de cadence horaire. La détermination de périodes stabilisées selon la méthodologie de traitement de données développée autorise l'élaboration des plages d'émission selon des paramètres de fonctionnement tels que la température des enrobés et la cadence de production, ainsi que la consommation en combustible.

Tableau 3 - 22 – Valeurs moyennes et écart-types de CO₂, SO₂, CO, NO_x, COT et CH₄, en mg/Nm³ rapportées à 17% d'O₂, en période stabilisée de fabrication

		<i>Valeurs moyennes ± 2 Écart-type</i>						
	Consommation en combustible m ³ /h	O ₂ %	CO ₂ %	SO ₂ mg/Nm ³	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³	COT mgEqC/Nm ³	CH ₄ mgEqC/Nm ³
M1	339	14,8±0,1	3,3±0,1	-	49±5,1	8,7±0,4	73,2±7,6	13,9±2,7
M2	434	14,2±0,3	3,7±0,2	15±4,7	37±26,0	23,2±1,6	53,8±2,9	0,0
M5	462	13,9±0,1	3,7±0,1	21±0,8	22±19,6	26,6±1,8	44,1±1,8	1,7±0,4

Par ailleurs, la prise en compte d'un indice de combustion permet de sélectionner des périodes stabilisées caractérisées par un bon indice de combustion ($I_{CO/CO_2} \leq 0,63$ conforme § II.1.4) (Tableau 3 - 23).

Tableau 3 - 23 – Plages de consommation en combustible et des émissions de CO₂, CO, NO_x, COT et CH₄ en période exploitable de production

		<i>Valeurs moyennes ± 2 Écart-type</i>						
	Consommation en combustible m ³ /h	O ₂ %	CO ₂ %	SO ₂ mg/Nm ³	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³	COT mgEqC/Nm ³	CH ₄ mgEqC/Nm ³
M1	339	14,8±0,1	3,3±0,1	-	48,7±5,1	8,7±0,4	73,2±7,6	13,9±2,7
M2	434	14,2±0,3	3,7±0,2	14,5±4,7	36,9±26,0	23,2±1,6	53,8±2,9	0,0
M5	462	13,9±0,1	3,7±0,1	20,7±0,8	22,0±19,6	26,6±1,7	44,1±1,8	1,7±0,4

Il n'existe aucune différence entre les résultats présentés dans les Tableaux 3 – 22 et 3 – 23. Cette constatation est parfaitement logique puisque ces deux tableaux sont constitués à partir d'une bonne combustion définie soit avec le critère plage de réglage, soit avec le critère indice de combustion I_{CO/CO_2} . Ceci montre que l'indice de combustion est bon à l'intérieur de la plage de réglage de la combustion. Cette remarque est importante puisque lors d'une intervention sur site, il n'est pas toujours possible de disposer du procès verbal de l'essai de réglage et donc de connaître la plage d'allure du brûleur concernée par ce réglage. Dans ce cas, c'est l'indice de combustion calculé avec les valeurs de O₂ et de CO₂ mesurées qui constitue le critère de qualité de la combustion.

Par contre, le fait d'être hors plage de réglage de la combustion n'a pas pour conséquence systématique un mauvais indice de combustion calculé. Ceci a été le cas de la modalité M4, réalisée hors plage de réglage de la combustion, et pour laquelle l'indice de la combustion est bon. Pour cette raison, la modalité M4 n'apparaît pas dans le Tableau 3 - 23.

En complément du problème de la combustion, l'exploitation des résultats de la modalité M7 (tableau 3 – 24) permet l'approche de l'incidence du bitume sur les émissions gazeuses. L'absence du bitume se traduit par une baisse de la concentration en SO₂. Par ailleurs, la concentration en COT est largement inférieure (rapport environ 10) à celle des modalités M2 et M5, comparables en conditions de fonctionnement de la centrale. Il est par contre impossible d'attribuer intégralement cette baisse à l'absence du bitume puisque la concentration en CO baisse aussi, sans que le bitume puisse en être la cause.

Tableau 3 - 24 – Plages des émissions de CO₂, CO, NO_x, COT et CH₄ en période exploitable pour la modalité sans bitume

		<i>Valeurs moyennes ± 2 Écart-type</i>						
	Consommation en combustible m ³ /h	O ₂ %	CO ₂ %	SO ₂ mg/Nm ³	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³	COT mgEqC/Nm ³	CH ₄ mgEqC/Nm ³
M7	315	13,3±0,1	3,9±0,1	2±1,5	2±1,0	31±1,4	5±3,0	1±0,4

Pour l'établissement de liste d'inventaire dans le cadre de l'analyse environnementale globale d'un chantier, les émissions gazeuses à l'atmosphère sont comptabilisées sous la forme de flux horaire. Le Tableau 3 - 25 regroupe les flux obtenus pour chaque modalité de fabrication.

Tableau 3 - 25 - Flux horaire pour chaque modalité

Modalité	CO ₂	CO	NO _x	COT	CH ₄	SO ₂
	kg/h	g/h	g/h	g Eq.C/h	g/h	g/h
M1	1174	1351	239	1616	391	-
M2	1350	1468	740	1697	< 18,5	497
M3	1613	> 79632*	911	1896	827	724
M4	1185	3133	582	0	3801	159
M5	1400	688	945	1491	57	742
M6	1537	> 75494*	1139	1693	978	1130
M7	1469	192	1205	243	38,5	127

* Saturation de l'analyseur de CO. La valeur réelle est supérieure à la valeur indiquée

2.5.3 Discussion sur les résultats dédiés TSE gaz naturel

- Sur l'application de la méthodologie de traitement de données

L'application de la méthodologie de traitement des données nous amène impérativement à un domaine expérimental plus strict et à une baisse du nombre des données à analyser. Cette réduction n'était pas prévisible au moment des expérimentations sur le site.

Les phases transitoires de fabrications ont été enlevées des analyses présentées, cependant la méthodologie permettrait d'analyser ces phases en supprimant le critère phase transitoire de l'étape 1. Cette analyse correspondrait à l'ensemble du fonctionnement de la centrale d'enrobage.

- Sur la qualité de la combustion

L'indice de la qualité de la combustion (I_{CO/CO2}) est un indicateur toujours disponible à partir des mesures sur site. Il est par ailleurs plus pertinent que la prise en compte de la plage de réglage de la combustion. En effet, il est prouvé expérimentalement que l'on peut être hors plage de réglage et avoir un bon indice de combustion. Par ailleurs, être à l'intérieur de la plage de réglage correspond toujours à avoir un bon indice de la combustion. Pour les expérimentations futures et pour les mesures des émissions gazeuses à l'atmosphère, cet indicateur I_{CO/CO2} constitue un critère pratique et performant d'appréciation de la qualité de la combustion.

- Sur les émissions à l'atmosphère

La moyenne des résultats obtenus sur l'ensemble des modalités (M1 à M6) (Tableau 3 - 26) renseigne sur les émissions obtenues dans le contexte de fabrication suivant :

- 50 % du temps avec un très bon indice de combustion ($I_{CO/CO_2} < 0,63$) dans la plage de réglage de cette combustion ;
- 15 % du temps avec un bon indice de combustion (I_{CO/CO_2} proche de 0,63) et hors plage de réglage ;
- 35 % du temps avec un mauvais indice de combustion ($I_{CO/CO_2} > 0,63$)

Tableau 3 - 26 – Valeurs moyennes, maximales, minimales et écart-types des concentrations, rapportées à 17% d'O₂, pour l'ensemble des périodes conformes de fabrication

	CO ₂	SO ₂	CO	NO _x	COT	CH ₄
Unités	%	mg/Nm ³			mgEqC/Nm ³	
Moyenne	3,6	14	698	21	75	43
Maximale	4,0	30	1982	29	188	237
Minimale	2,7	1	14	8	32	1
Ecart type	0,4	9,7	893,3	6,4	35,8	62,0
Coef. de variation	9,9	71,2	128,1	30,3	47,6	144,4

Ces résultats sont représentatifs d'un fonctionnement de la centrale d'enrobage pour un réglage de la combustion effectué sur une partie seulement de la plage de l'allure du brûleur. Ceci est la conséquence d'une seule intervention annuelle.

Les valeurs moyennes calculées dans le Tableau 3 - 27 peuvent être considérées comme représentatives des émissions à l'atmosphère pour une centrale dans un contexte de réglage optimal. Ce contexte minimise considérablement les émissions de CO. A un degré moindre les émissions de COT et CH₄, en termes de valeurs moyennes et des dispersions, sont aussi minimisées, bien que les dispersions obtenues ne permettent pas statistiquement de différencier les valeurs moyennes. Par contre, les émissions de NO_x et de SO₂ restent quasiment inchangées.

Tableau 3 - 27 – Valeurs moyennes, maximales, minimales et écart-types des concentrations, rapportées à 17% d'O₂, pour l'ensemble des périodes stabilisées de fabrication

	CO ₂	SO ₂	CO	NO _x	COT	CH ₄
Unités	%	mg/Nm ³			mgEqC/Nm ³	
Moyenne	3,5	11	36	19	58	8
Maximale	3,8	22	67	29	88	17
Minimale	3,3	1	14	8	42	1
Ecart type	0,2	8,5	14,6	8,4	13,4	6,3
Coef. de variation %	5,6	75,9	40,1	45,4	23,0	77,1

3 Étude en conditions usuelles

3.1 Réglage du brûleur

Comme expliqué précédemment pour les deux centrales d'enrobage étudiées, les brûleurs sont réglés une fois par an, selon la recommandation du fabricant. Ces interventions n'étant pas imposées par la réglementation, elles ne donnent pas lieu nécessairement à un procès verbal d'essais très détaillé. Dans ces conditions les plages exactes de réglages n'étaient pas connues pour la centrale d'enrobage fonctionnant au fuel lourd.

3.2 TSE mobile au fuel lourd

Cette campagne de mesures sur le TSE industriel mobile installé dans une carrière, qui produit des enrobés destinés à la mise en œuvre sur une route départementale (2 x 2 voies), a permis d'étudier des fabrications en conditions usuelles. Les paramètres à étudier sont à la fois les formules d'enrobés à fabriquer, y compris le type de bitume, les cadences de production et les températures d'élaboration (enrobés et bitumes).

3.2.1 Plan d'expérimentation

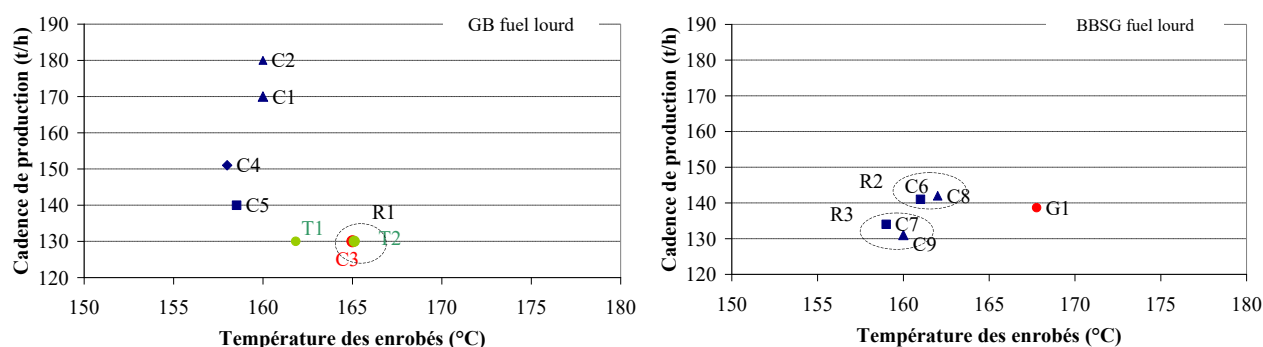
Les analyses de la combustion et des effets couplés émissions/process qui ont été entreprises sur ce site industriel sont par ailleurs complémentaires à celles déjà obtenues lors de la campagne de mesures menée à Blois, en 2004, sur le TSE fixe en conditions dédiées de fabrication. Il faut préciser que la même méthode et le même matériel d'analyse de combustion a été utilisé lors des deux campagnes de mesures et que les seules différences existantes entre les deux centrales étudiées sont le combustible utilisé (fuel lourd ou gaz naturel) et le type d'installation (mobile ou fixe).

Il s'agit d'une campagne de mesures en conditions normales de fabrication. La centrale d'enrobage devait fonctionner normalement pendant les jours de mesures et les interventions du LCPC ne devaient pas avoir d'influence sur la conduite de la centrale dans les travaux réalisés. Pour chaque journée de fabrication, il était prévu d'effectuer des mesures d'émission de polluants au niveau de la cheminée de la centrale couplés à des informations relatives à la fabrication des enrobés au niveau de l'automate de la centrale (pupitre de commande). Cette méthode de travail a déjà été utilisée dans le TSE fixe au gaz naturel. Par contre, les enrobés fabriqués (formules et types de liants), les cadences et les températures de production utilisées n'ont pas été choisies : il a fallu réorganiser a posteriori les données obtenues pour permettre une analyse comparable à celle d'une campagne en conditions dédiées et l'ensemble des interventions est synthétisée dans le Tableau 3 - 28.

Tableau 3 - 28 – Ensemble du programme d'intervention

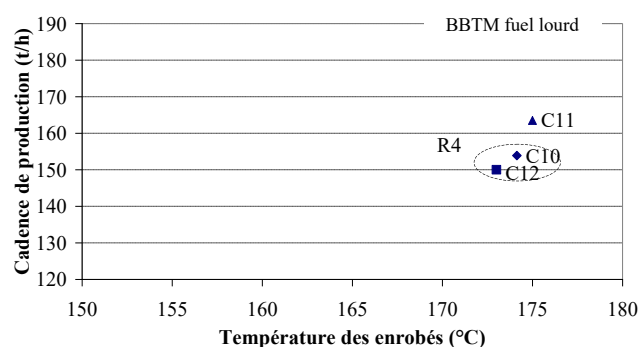
Dates des mesures (2006)	Enrobé fabriqué	Température des enrobés °C	Cadence de production t/h	Type de liant	Notation (modalités)	
12 juillet	GB0/14	160	170	35/50	C1	
		160	180		C2	
26 juillet	GB0/14	165	130	35/50	C3	R1
27 juillet	GB0/14	158	151	35/50	C4	
		159	140		C5	
21 sept	GB0/14	162	130	35/50	T1	
		165	130		T2	R1
28 juillet	BBSG 0/10	161	141	35/50	C6	R2
		159	134		C7	R3
31 juillet	BBSG 0/10	162	142	35/50	C8	R2
		160	131		C9	R3
1 août	BBSG 0/14	168	139	35/50	G1	
2 août	BBTM	174	154	10/40 Styrelf	C10	R4
		175	164		C11	
3 août	BBTM	173	150	10/40 Styrelf	C12	R4

Grâce à une réorganisation des résultats nous avons identifié des productions répétables, notées R1 à R4, des productions à cadences variables notées C1 à C12 et celles à température variables T1 et T2. Une représentation graphique des fabrications en termes de cadence et de température des enrobés selon la notation adoptée (C1 à C12, T1, T2 et G1 du tableau 3-23), pour chaque enrobé (GB, BBSG et BBTM) est détaillée dans la Figure 3 - 43.



a) Modalités avec de la GB

b) Modalités avec du BBSG



c) Modalités avec du BBTM

Figure 3 - 43 –Plans de fabrications réels : GB, BBSG et BBTM

Il convient de noter que dans le cas de conditions usuelles, la température des enrobés ne peut présenter de différences notables pour une même formule fabriquée, puisque cette température constitue un impératif à respecter pour la fabrication. Les caractéristiques du flux gazeux et les informations sur les fabrications obtenues sont présentées, pour deux journées, dans l'annexe 4.

3.2.2 Résultats bruts d'émissions de O₂, CO, NO_x et COT

Les mesures de concentrations réalisées en fonction du temps ont été tracées pour chaque modalité de fabrication : pour la GB (Figure 3-44), pour le BBSG (Figure 3 - 45) et pour le BBTM (Figure 3 - 46). Les valeurs présentées concernent des phases de fabrication qui excluent les phases transitoires constituées par les arrêts et les démarrages.

Enrobés GB : Malgré les modalités fabriquées à différentes cadences (130 à 180 t/h), la concentration en O₂ a faiblement évolué, restant entre 12 et 13,5 %. L'influence de la cadence, cependant peut être visualisée par les concentrations de NO_x et COT, où les émissions sont proportionnelles aux cadences. Les émissions de CO ont été plus instables et plus élevées ($\pm 50\%$) pour les cadences faibles (130 t/h).

Enrobés BBSG : Comme pour la GB, la concentration en O₂ a évolué avec la même amplitude de variation, entre 12 et 13 %. Les évolutions graphiques des concentrations en NO_x et COT ne traduisent pas d'incidence de la cadence horaire.

Enrobés BBTM : Comme pour les autres formules, la concentration en O₂ n'a pas changé, restant entre 12 et 13 %.. L'influence de la cadence n'a pas pu être visualisée par l'analyse des émissions de NO_x. La modalité C11 (fabriquée à 164 t/h) présente la plus faible émission en CO parmi toutes les modalités fabriquées.

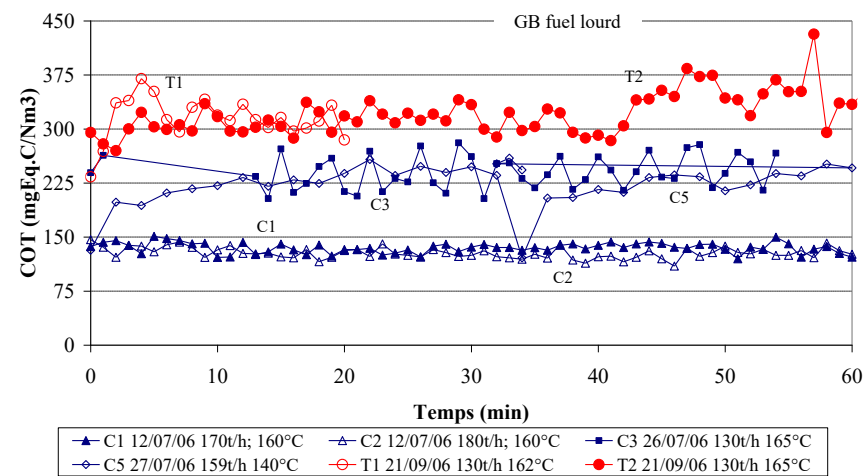
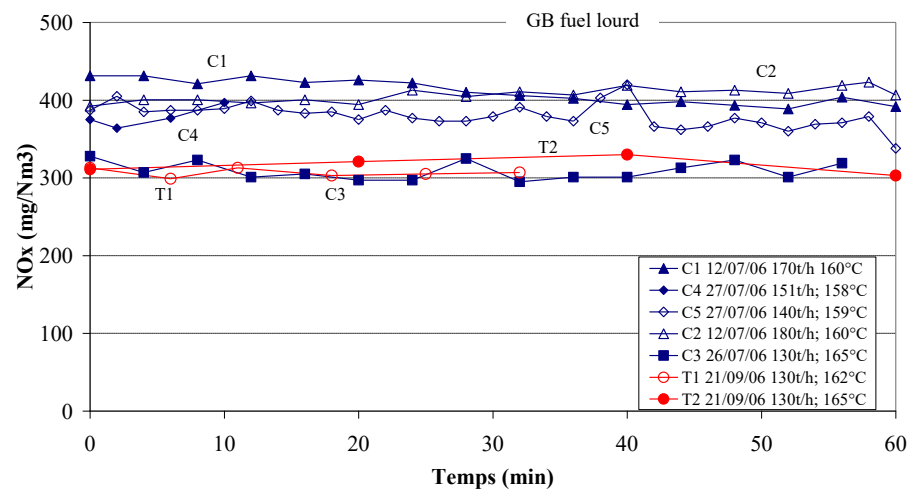
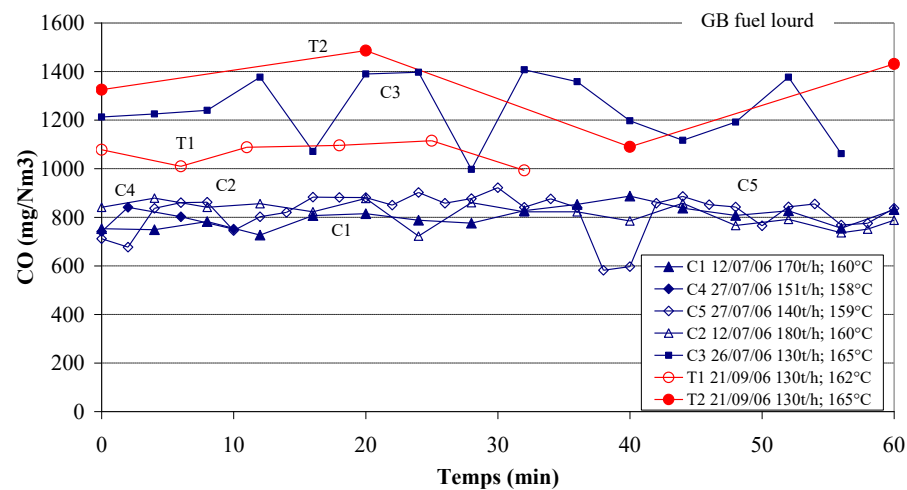
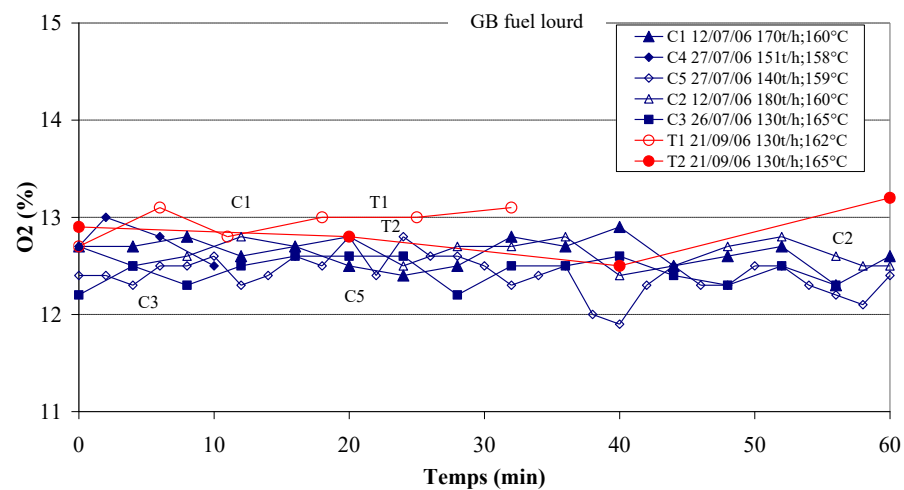


Figure 3 - 44 – Résultats bruts d'émission de la GB – TSE fuel lourd en période conforme

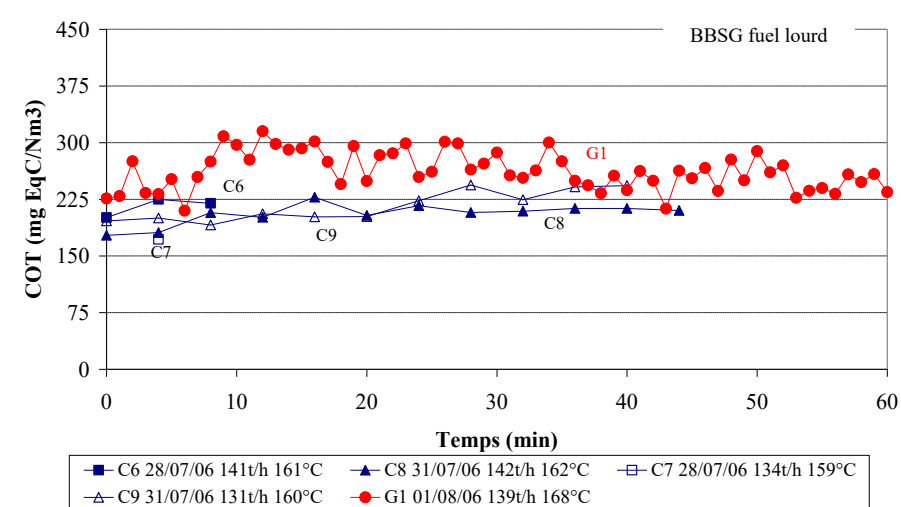
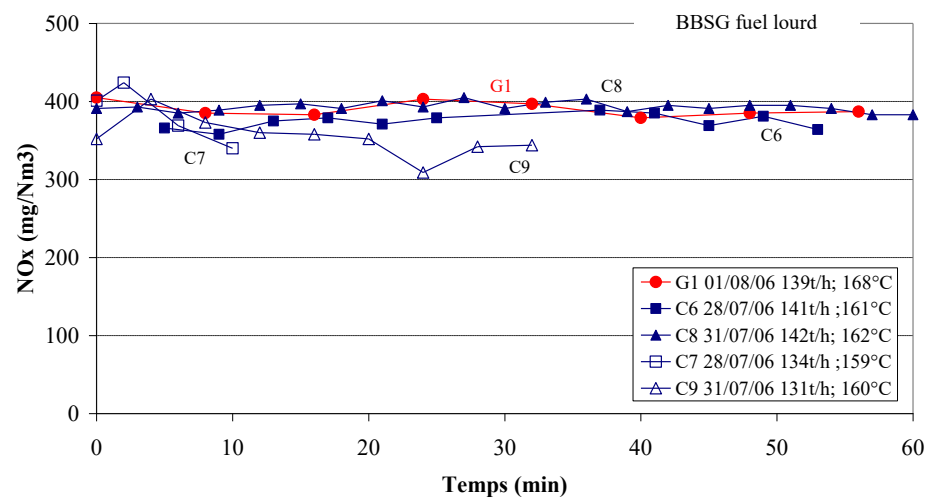
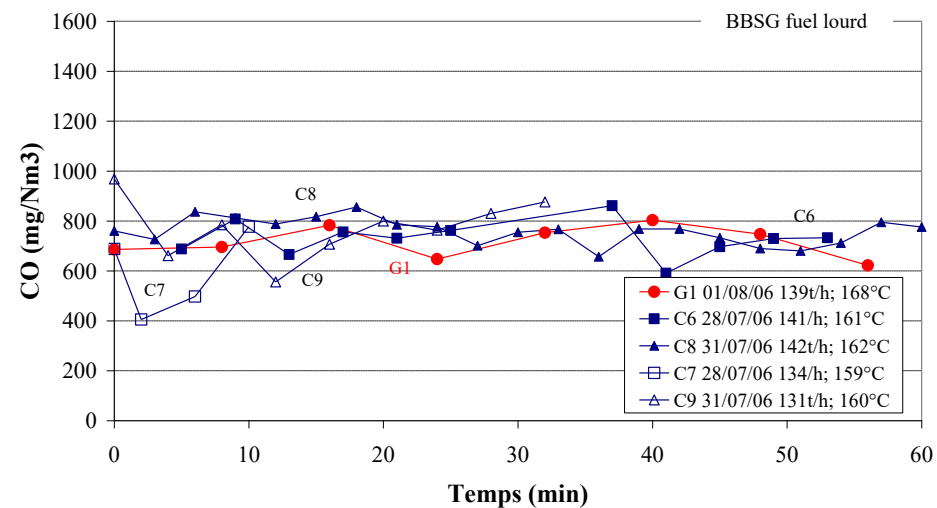
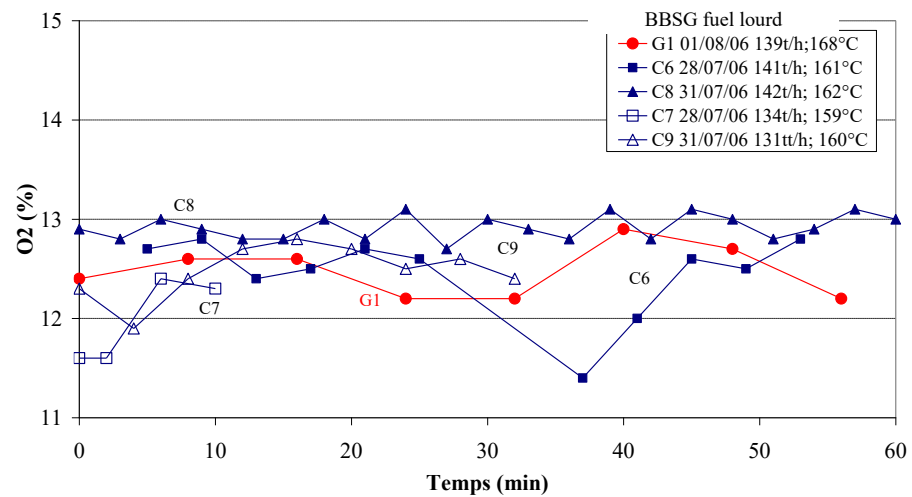


Figure 3 - 45 – Résultats bruts d'émission du BBSG – TSE fuel lourd en période conforme

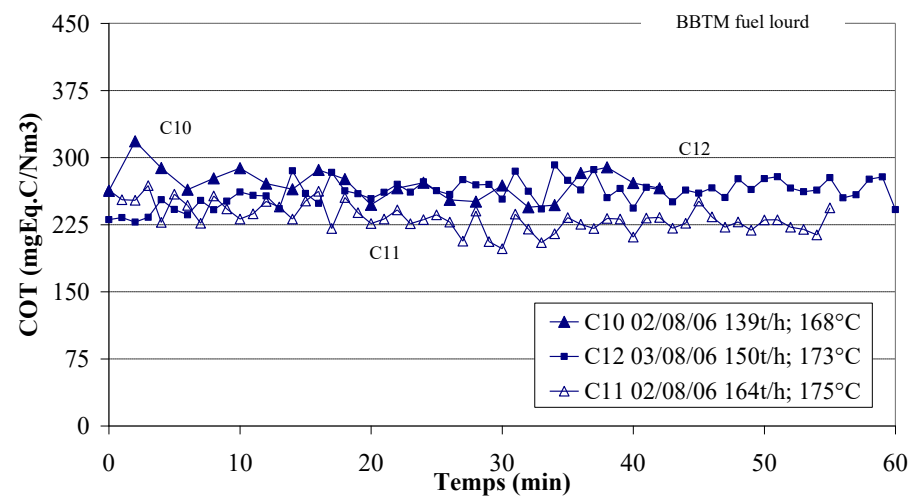
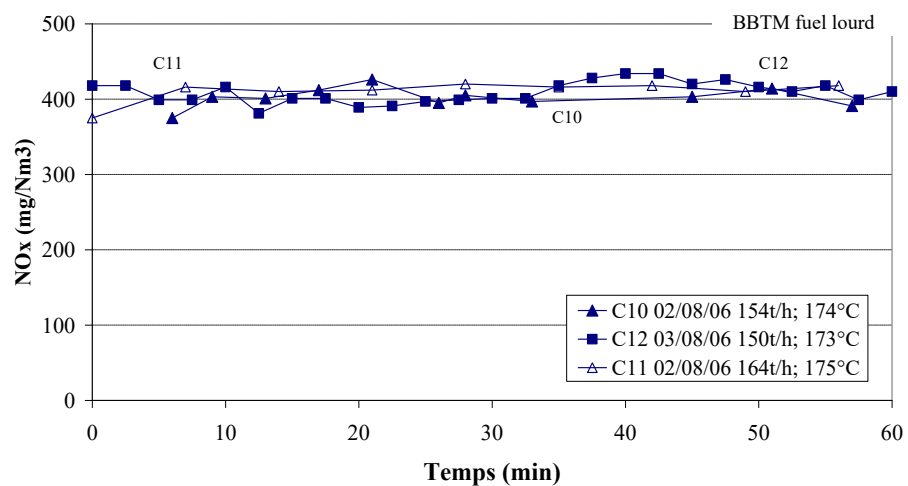
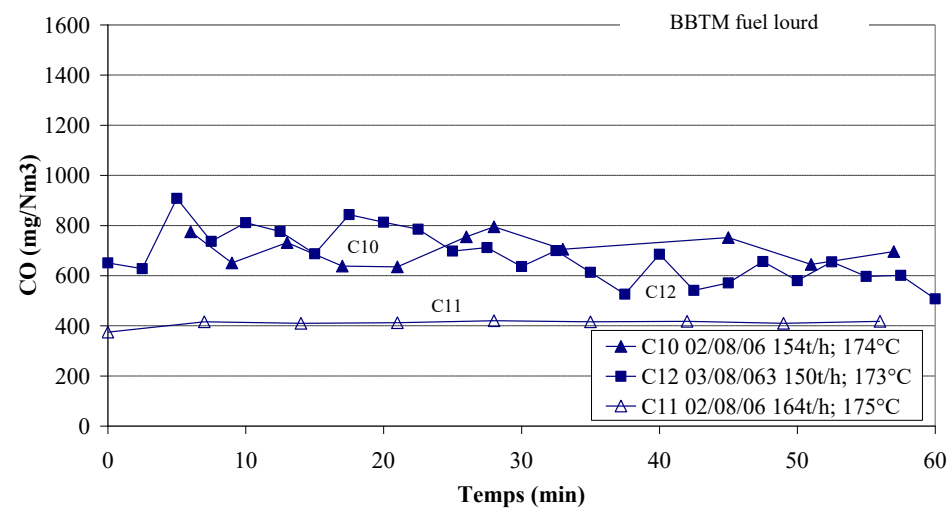
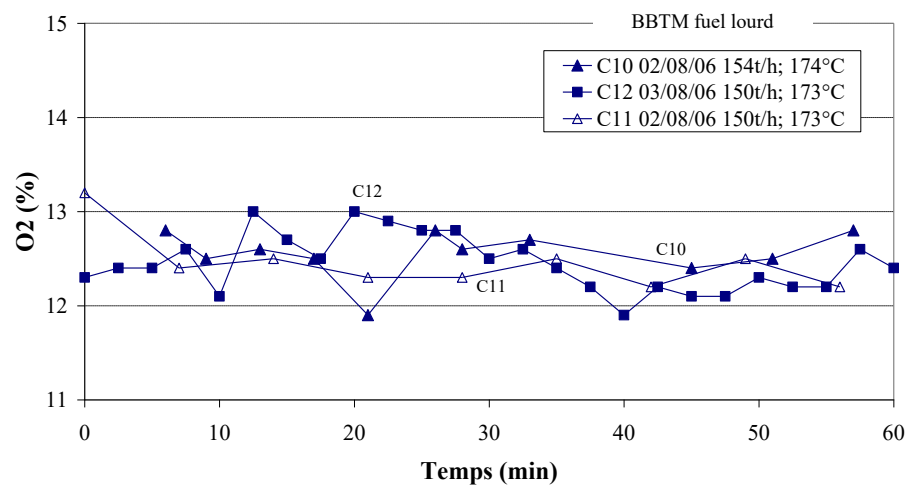


Figure 3 - 46 – Résultats bruts d'émission du BBTM – TSE fuel lourd en période conforme

3.2.3 Analyse de fluctuations des mesures brutes

Pour des pages de fabrication dont les évolutions graphiques des mesures de concentration ont été présentées précédemment, les résultats du calcul des valeurs moyennes et des dispersions sont présentés dans le Tableau 3 - 29. Le premier groupe concerne la GB, le deuxième le BBSG et le troisième le BBTM.

Tableau 3 - 29 – Émissions de O_2 , CO_2 , CO , NO_x et COT et consommations moyennes selon les modalités de fabrication

					Valeurs moyennes +/- 2 écart type				
Modalités et formules		Température des enrobés °C	Cadence production t/h	Consommation en fuel lourd (m^3/h)	O_2 %	CO_2 %	CO mg/Nm^3	NO_x mg/Nm^3	COT $mgEq.C/Nm^3$
C1	GB 0/14	160	170	-	12,6±0,3	6,3±0,2	801±80	411±30	134±20
C2		160	180	-	12,6±0,3	6,3±0,2	813±98	407±18	132±30
C3		165	130	-	12,4±0,3	6,4±0,2	1241±276	309±22	241±46
C4		158	151	780	12,7±0,4	6,2±0,3	784±94	378±28	-
C5		159	140	700	12,4±0,4	6,4±0,3	812±164	382±34	211±58
T1		162	130	660	12,9±0,6	6,2±0,7	1063±98	307±12	316±64
T2		165	130	660	12,8±0,8	6,2±0,4	1333±350	316±24	316±58
C6	BBSG 0/10	161	141	660	12,4±0,9	6,4±0,6	736±138	372±20	204±24
C7		159	134	-	11,9±0,3	6,8±0,7	592±340	383±74	164
C8		162	142	780	12,9±0,5	6,1±0,2	758±104	393±12	202±36
C9		160	131	720	12,4±0,5	6,4±0,4	772±242	355±50	216±40
G1	BBSG 0/14	168	139	780	12,4±0,5	6,4±0,4	718±118	389±18	261±50
C10	BBTM	174	154	900	12,5±0,5	6,3±0,4	707±116	402±26	271±34
C11		175	164	840	12,4±0,6	6,4±0,4	681±164	411±28	233±32
C12		173	150	-	12,4±0,6	6,4±0,4	674±204	409±28	255±34

Les consommations de fuel lourd établies à partir de relevés manuels sont présentées, pour les modalités où l'information est disponible, sur la figure Figure 3 - 47. La consommation maximale concerne la modalité C10 et la minimale les modalités T1, T2 et C6. Globalement, l'écart de consommation de 240 l/h (soit 36 % d'augmentation par rapport à T1 et T2) correspond à des différences de cadence de l'ordre de 18 % et de température de l'ordre de 7,5 %.

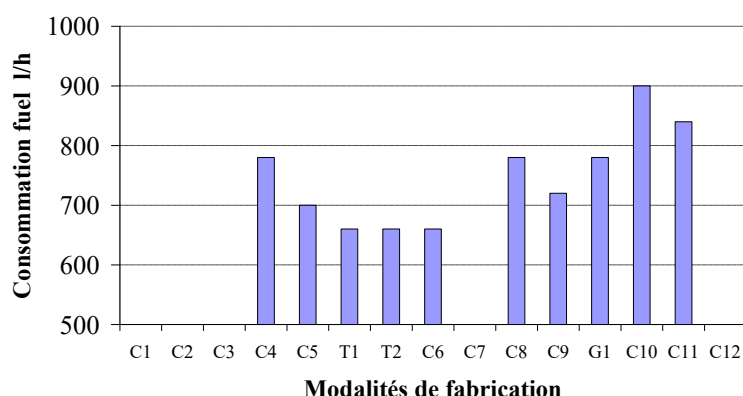


Figure 3 - 47 – Valeurs moyennes de consommation en fuel (l/h) par modalité de fabrication

3.2.4 Traitement de données selon la méthodologie développée

- Corrections des concentrations mesurées en continu

Selon la méthodologie décrite (chapitre 2), le traitement des données concerne les homogénéisations et les corrections par rapport à la teneur en oxygène, les unités utilisées et le matériel (calibrage). Pour les mesures réalisées entièrement par nos soins, il n'y a pas eu de corrections au niveau des unités et du matériel.

- Tri de données

La méthodologie de traitement de données développée n'a pu être appliquée que partiellement. La première partie de la méthodologie qui traite de la conformité des enrobés au niveau de la température et de la cadence de production a été appliquée. En revanche, compte tenu du fait que le réglage du brûleur n'a pas donné lieu à un procès verbal d'essais détaillé en matière de plage de réglage, aucune donnée n'a été enlevée ou écartée pour cause de mauvaise combustion (voir la deuxième partie de la méthodologie qui traite de l'analyse de la combustion).

La sélection de critères identiques en matière de cadence horaire et de température des enrobés permet cependant, en plus de rassembler des éléments sur la répétabilité, de classer des modalités à fabrications proches. Il s'agit des modalités C5, C6 et C8 et des modalités T1, T2 et C9 entre la GB et le BBSG. Les concentrations des rejets gazeux, rapportées à une teneur en oxygène de référence de 17%, sont présentées dans le Tableau 3 - 30, et constituent les données qui seront analysées dans la suite de la thèse.

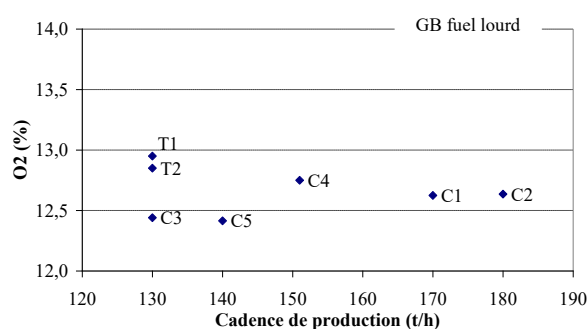
Tableau 3 - 30 – Émissions en période conforme de CO, NO_x et COT rapportées à 17% d'O₂, selon les modalités de fabrication

Modalités et formules		Température des enrobés °C	Cadence production t/h	O ₂ %	CO ₂ %	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³	COT mgEq.C/Nm ³
C1	GB	160	170	12,6	6,3	383	196	64
C2		160	180	12,6	6,3	389	195	63
C3		165	130	12,4	6,4	580	144	112
C4		158	151	12,7	6,2	380	183	-
C5		159	140	12,4	6,4	378	178	104
T1		162	130	12,9	6,2	528	152	157
T2		165	130	12,8	6,2	654	155	155
C6	BBSG	161	141	12,4	6,4	345	174	101
C7		159	134	11,9	6,8	262	170	76
C8		162	142	12,9	6,1	375	194	100
C9		160	131	12,4	6,4	362	167	101
G1		168	139	12,4	6,4	336	182	122
C10	BBTM	174	154	12,5	6,3	335	190	128
C11		175	164	12,4	6,4	319	192	109
C12		173	150	12,4	6,4	315	191	119

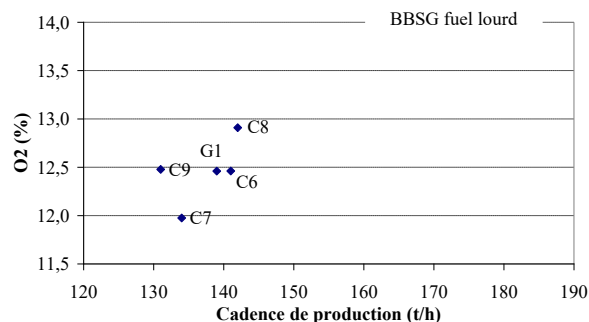
3.2.5 Détermination des plages d'émissions en conditions conformes de fabrication

Dans ce contexte de fabrication en condition usuelle, la représentation graphique habituel nécessite de disposer de conditions de mesure permettant d'étudier séparément un facteur (cadence ou température des enrobés). Ainsi, pour notre expérimentation, les fabrications de GB et BBSG ont été réalisées avec une température de fabrication sensiblement identiques (160 °C±5). Seul le BBTM a été fabriqué à une température

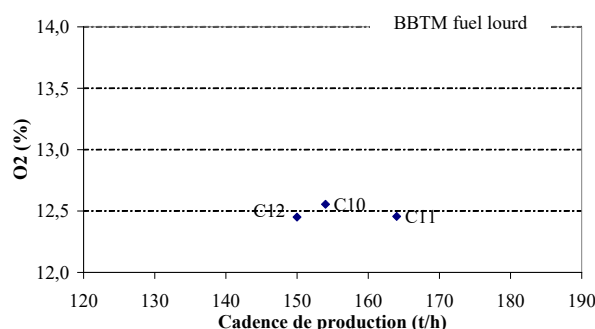
supérieure (175 °C). En conséquence, les évolutions des concentrations de l'ensemble des rejets gazeux ont été représentées (Figure 3 - 48 à Figure 3 - 52) uniquement en fonction de la cadence pour l'ensemble des formules fabriquées.



a) Pour la GB



b) Pour le BBSG

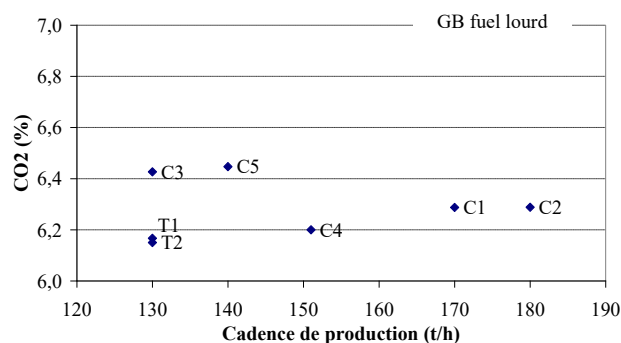


c) Pour le BBTM

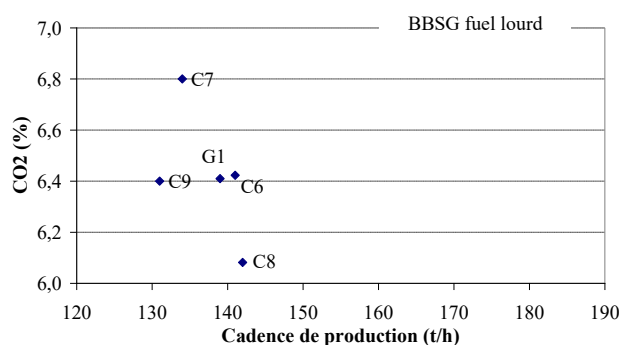
Figure 3 - 48 – Évolution des émissions de O₂ en période conforme (TSE au fuel lourd)

Compte tenu des dispersions obtenues (Tableau 3 - 29) les concentrations en oxygène sont considérées équivalentes. Malgré une augmentation de cadence conséquente (130 à 180 t/h), la concentration en oxygène, contrairement aux constations effectuées sur le TSE fixe au gaz naturel, ne traduit pas d'évolution notable.

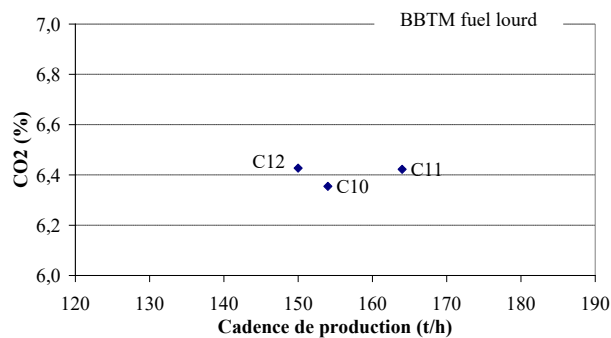
L'évolution de CO₂ est représentée sur la Figure 3 - 49. Comme la concentration en CO₂ est calculée à partir de la concentration en O₂, les résultats présentés évoluent en sens inverse des résultats précédents et n'appellent pas de commentaires particuliers.



a) Pour la GB



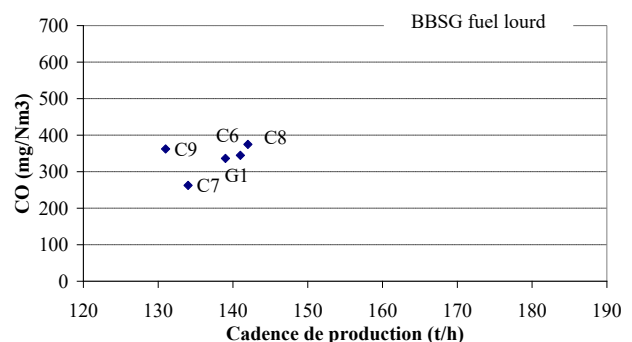
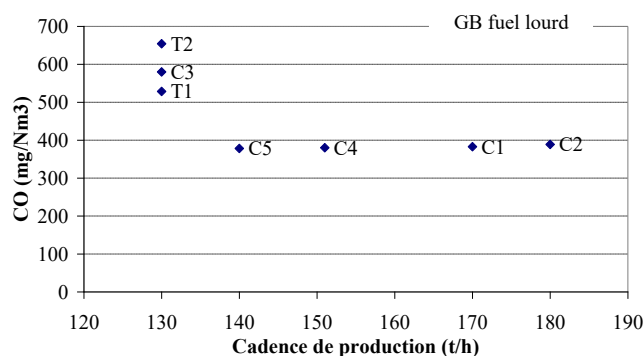
b) Pour le BBSG



c) Pour le BBTM

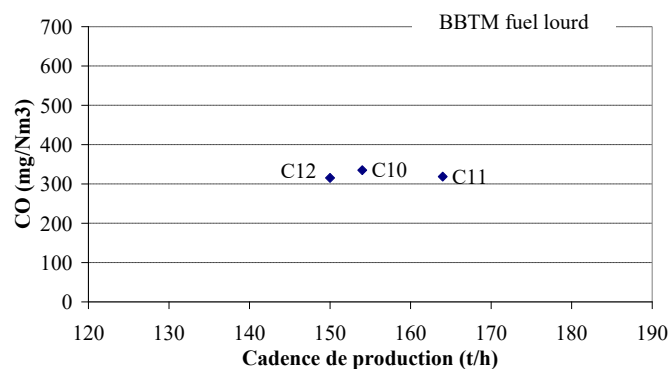
Figure 3 - 49 – Évolution des émissions de CO₂ en période conforme (TSE au fuel lourd)

L'évolution de CO est représentée sur la Figure 3 - 50. Pour cette expérimentation, la combustion a été réglée mais nous ne disposons pas du procès verbal d'essai, donc nous ne connaissons pas l'allure du brûleur concernée par la plage de réglage. On constate de manière générale que la concentration en CO se trouve entre 260 et 380 mg/Nm³. Les modalités T1 et T2 dont la teneur en CO est supérieure à 500 mg/Nm³ se caractérisent par la plus faible consommation (Tableau 3 - 29). A ce stade de l'analyse, la concentration élevée de la modalité C3 ne peut être expliquée car nous ne disposons pas de l'information consommation.



a) Pour la GB

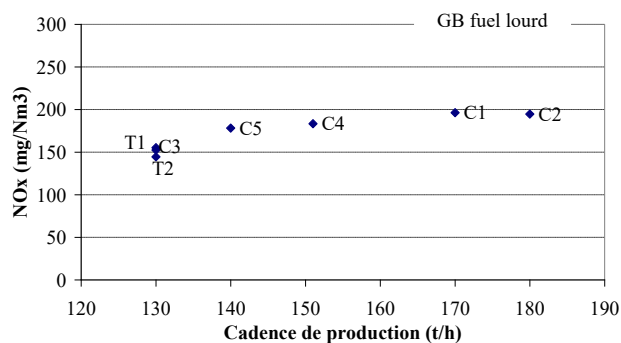
b) Pour le BBSG



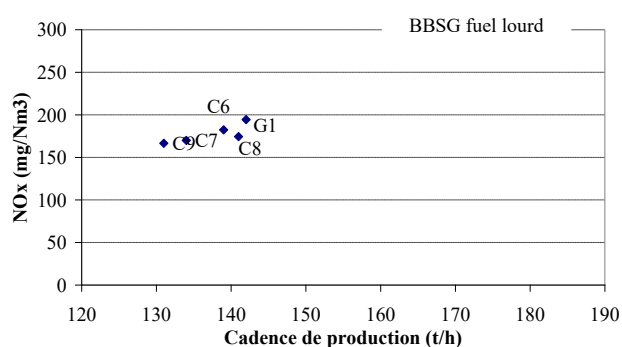
c) Pour le BBTM

Figure 3 - 50 – Évolution des émissions de CO en période conforme (TSE au fuel lourd)

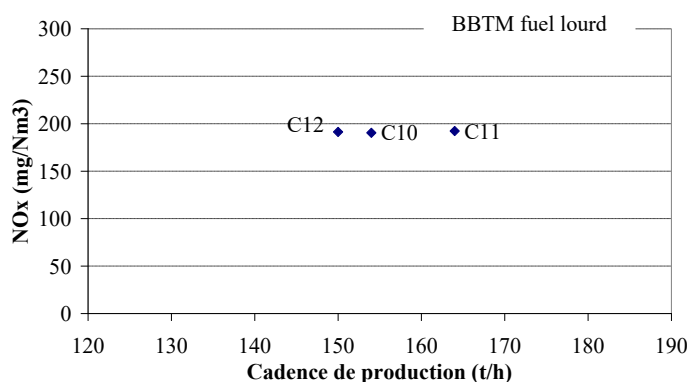
L'évolution de NO_x est représentée sur la Figure 3 - 51. Les concentrations de NO_x sont comprises entre 150 et 200 mg/Nm³ sans que l'on puisse, malgré la tendance pour la GB, établir de relation certaines entre ces évolutions et la cadence horaire. On peut noter que les trois modalités qui présentent les concentrations les plus faibles sont celles qui présentent les concentrations en CO les plus fortes.



a) Pour la GB



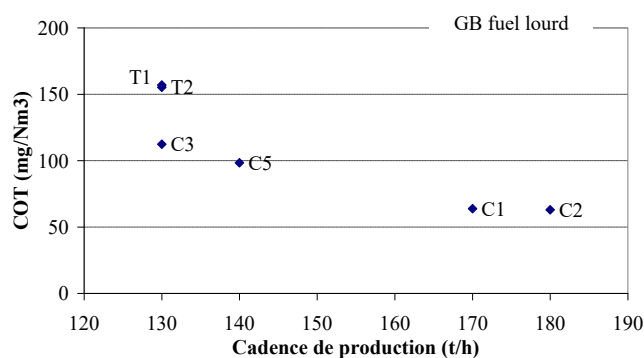
c) Pour le BBSG



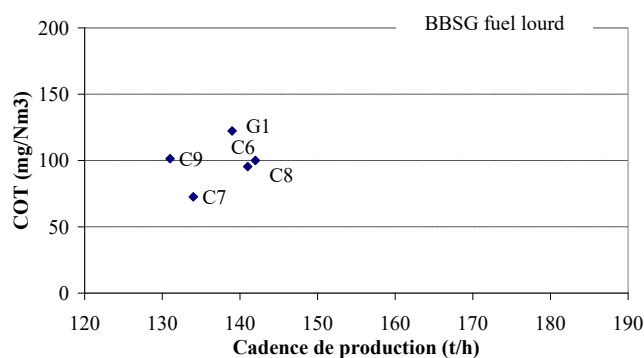
c) Pour le BBTM

Figure 3 - 51 – Évolution des émissions de NOx en période conforme (TSE au fuel lourd)

L'évolution de COT est représentée sur la Figure 3 - 52. Pour les fabrications de GB et BBTM, la représentation graphique montre une baisse des concentrations en COT avec l'augmentation de la cadence horaire. Pour le BBSG, il faut noter que les deux modalités qui empêchent de tirer une conclusion identique sont C7 et G1, soit deux modalités qui présentent de particularités. Ainsi G1 est un BBSG 0/14 fabriqué avec 8 °C de plus que le BBSG 0/10, et C7 est une modalité pour laquelle nous n'avons qu'une seule valeur disponible. Dans ces conditions, on peut conclure que d'une manière générale les émissions de COT baissent lorsque la cadence augmente.



a) Pour la GB



b) Pour le BBSG

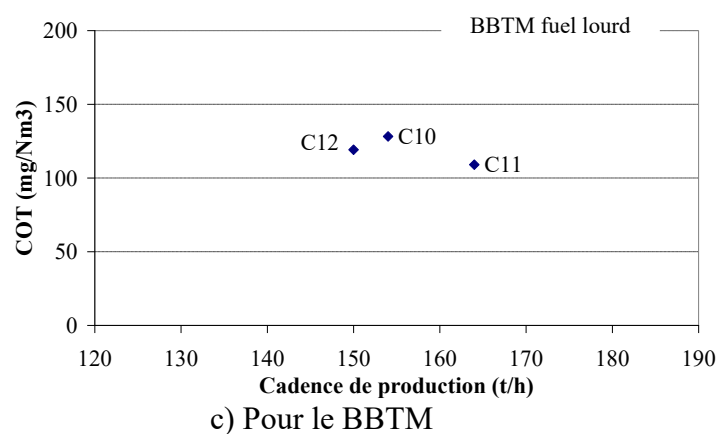


Figure 3 - 52 – Évolution de l'émission de COT en période conforme (TSE au fuel lourd)

3.2.6 Discussions sur les résultats en conditions usuelles du TSE au fuel

- Sur l'application de la méthodologie de traitement de données

L'application de la méthodologie de traitement de données ne nous amène pas à réduire l'ensemble des données collectées compte tenu qu'il n'y a pas eu de pics d'émission lors des démarrages, que tous les enrobés fabriqués étaient conformes (acceptés sur chantier) et que la plage de réglage du brûleur était inconnue, aucune donnée n'a été supprimée. Les valeurs moyennes d'émissions ont simplement été rapportées à un taux d'oxygène de référence de 17 %.

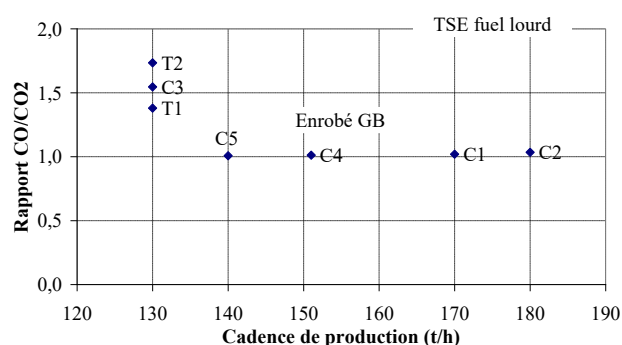
- Sur la qualité de la combustion

La qualité de la combustion peut être évaluée par l'indice I_{CO/CO_2} obtenu à partir des mesures réalisées. Le Tableau 3 - 31 présente les résultats obtenus, par modalité de fabrication. Pour l'ensemble des fabrications, l'indice varie tout de même dans un rapport 2,5, pour des modalités dont la principale différence est la formule fabriquée (T2 et C7). En moyenne, le meilleur indicateur I_{CO/CO_2} est obtenu pour la formule BBTM.

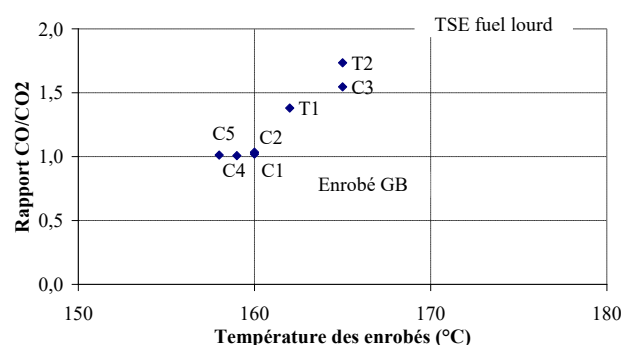
Tableau 3 - 31 – Résultats de l'indice I_{CO/CO_2} selon les modalités de fabrication

Modalité	Température des enrobés (°C)	Cadence production (t/h)	Formule	Indice $_{CO/CO_2}$	Allure brûleur %
C1	160	170	GB	1,02	
C2	160	180		1,03	
C3	165	130		1,55	
C4	158	151		1,01	43
C5	159	140		1,01	39-38
T1	162	130		1,38	
T2	165	130		1,73	
C6	161	141	BBSG	0,92	39
C7	159	134		0,70	39
C8	162	142		1,00	48
C9	160	131		0,96	44
G1	168	139		0,90	47-50
C10	174	154	BBTM	0,89	54
C11	175	164		0,85	49
C12	173	150		0,84	

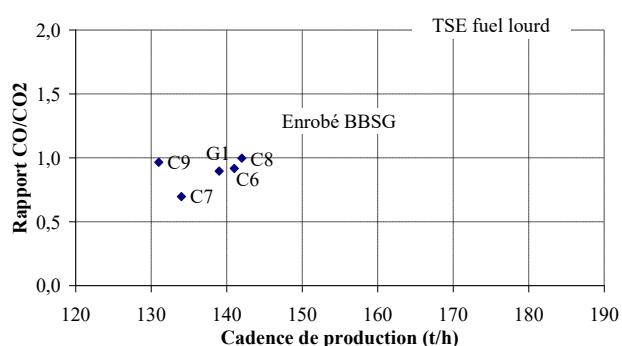
L'évolution de l'indice I_{CO/CO_2} obtenu est présentée sur la Figure 3 - 53. Ces résultats ont été obtenus en période conforme de production.



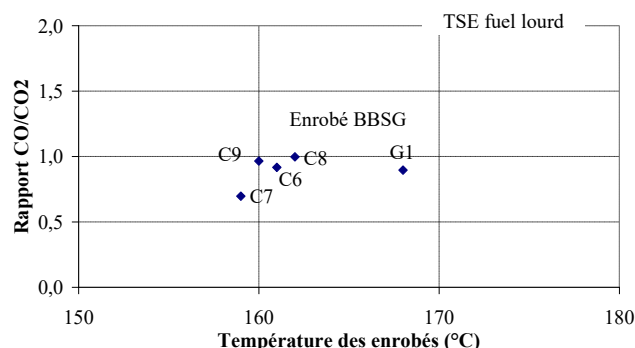
a) Pour la GB, selon les cadences



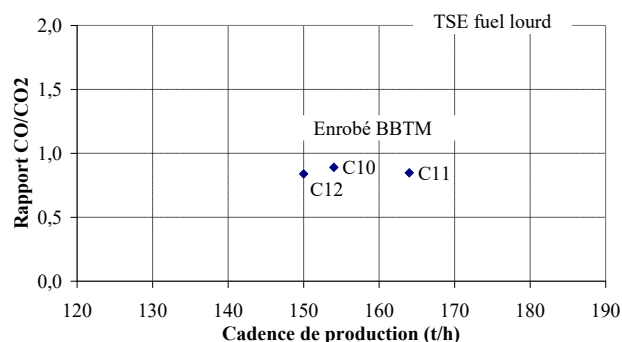
b) Pour la GB, selon les températures



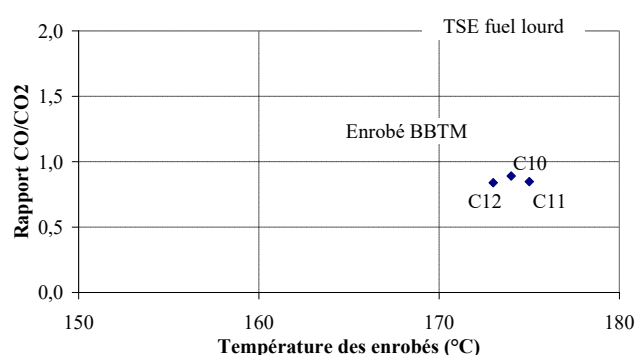
c) Pour le BBSG, selon les cadences



d) Pour le BBSG, selon les températures



e) Pour le BBTM, selon les cadences



f) Pour le BBTM, selon les températures

Figure 3 - 53 – Évolution de l'indice I_{CO/CO_2} en période conforme (TSE au fuel lourd)

Comme pour le gaz naturel, l'indice I_{CO/CO_2} n'est corrélé ni avec la cadence de production ni avec la température. Les indices les plus élevés sont obtenus pour les modalités avec la consommation la plus faible (T1 et T2). La modalité C3 se caractérise aussi par un indice fort. Cette modalité qui présente une concentration élevée en CO, comme expliqué précédemment et réalisée à faible cadence horaire, a vraisemblablement été effectuée avec une consommation identique à celle de modalités T1 et T2. En relation avec la constatation effectuée sur le TSE au gaz naturel (Modalité M3), on peut penser que l'on se trouve aussi, pour les trois modalités T1, T2 et C3, dans une plage d'allure du brûleur en dessous de la limite de réglage. Si l'on excepte ces trois modalités, les autres valeurs ne montrent pas de

tendance avérée, ce qui apparaît normal si l'on prend comme hypothèse que l'on se trouve dans la plage de réglage de la combustion. Avec cette hypothèse, la valeur moyenne de l'indicateur est de 0,93.

- Sur les arrêts en charge

L'arrêt en charge est une solution offerte au chef du poste d'arrêter temporairement la fabrication, suite à un manque de camion ou un problème spécifique, sans vider le tambour sécheur, ce qui minimise les refus de fabrication inhérents à un démarrage normal. Dans le cas d'un arrêt en charge où le brûleur est brusquement éteint, nous avons une réponse immédiate dans la courbe d'émission de COT. Comme il s'agit d'une phase transitoire, les évolutions sont présentées sans correction avec la teneur en oxygène de référence (Figure 3 – 54).

La décroissance a été analysée plus finement pendant toute la durée des arrêts, environ 40 à 50 minutes. Dans les trois cas analysés – deux fois lors de la modalité C5 (GB à 159 °C) et une fois lors de la modalité C6 (BBSG à 161 °C), l'émission de COT n'est pas descendue à zéro, mais jusqu'à un seuil d'environ 20 mgEqC/Nm³. On note donc qu'un temps de 35 min s'écoule entre l'arrêt de la centrale et la stabilisation de la courbe d'émission (Figure 3 – 54), à une valeur environ 10 fois plus faible que celle de la fabrication.

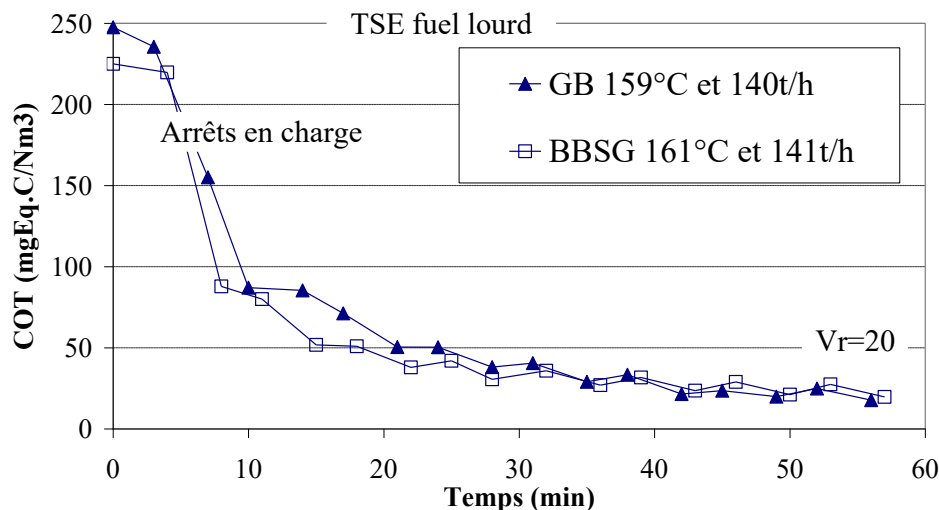


Figure 3 - 54 – Évolution des émissions de COT lors des arrêts en charge

En absence de la connaissance de la montée en charge du tambour, et donc de la quantité de matériaux avant l'écoulement dit « Piston », dans ce cas l'émission résiduelle trouvée provient de l'enrobé resté à l'intérieur du TSE. Cette quantité d'enrobé peut être estimée en première approche à partir de la masse des granulats et de bitume qui transitent en régime établi à l'intérieur du TSE. Pour cela, d'abord il faut calculer la cadence des granulats (C_g), en t/h, à l'intérieur du TSE. La C_g est fonction de la cadence totale (C_t) et de la teneur en liant (TL) :

$$C_g = C_t \cdot \left(1 - \frac{TL}{(100 + TL)}\right) \quad \text{en t/h} \quad (3-2)$$

La cadence de bitume (C_b) est obtenue par différence entre la C_t et la C_g :

$$C_b = C_t - C_g \quad \text{en t/h} \quad (3-3)$$

Ensuite, pour calculer les masses totales (M_t), des enrobés (M_{enrb}), des granulats (M_g) et de bitume (M_b) à l'intérieur du TSE, d'après Madani [Madani, 2005] nous avons pris l'hypothèse que les granulats et le bitume y séjournent pendant 5 min et 2,5 min respectivement. Nous avons :

$$M_t = \frac{T_g \cdot C_g + T_b \cdot C_b}{60} \quad \text{en tonnes} \quad (3-4)$$

$$M_{enrb} = T_b \cdot \frac{C_g + C_b}{60} \quad \text{en tonnes} \quad (3-5)$$

$$M_g = \frac{C_g \cdot T_g}{60} \quad \text{en tonnes} \quad (3-6)$$

$$M_b = \frac{C_b \cdot T_b}{60} \quad \text{en tonnes} \quad (3-7)$$

Tableau 3 - 32 – Estimations des quantités de matériaux à l'intérieur du TSE lors d'un arrêt en charge

Enrobé Grave bitume (GB) Teneur en liant (TL) = 3,75%								
Cadence (t/h)			temps de voyage (min)		Masses à l'intérieur du TSE (Tonnes)			
Ct	Cg	Cb	Tg	Tb	Mt	Menrb	Mg	Mb
120	115,66	4,34	5	2,5	9,819	5,00	9,639	0,181
130	125,30	4,70	5	2,5	10,638	5,42	10,442	0,196
140	134,94	5,06	5	2,5	11,456	5,83	11,245	0,211
150	144,58	5,42	5	2,5	12,274	6,25	12,048	0,226
160	154,22	5,78	5	2,5	13,092	6,67	12,851	0,241

Enrobé Béton Bitumineux (BBSG 0/14) Teneur en liant (TL) = 5,10%								
Cadence (t/h)			temps de voyage (min)		Masses à l'intérieur du TSE (Tonnes)			
Ct	Cg	Cb	Tg	Tb	Mt	Menrb	Mg	Mb
120	114,18	5,82	5	2,5	9,757	5,00	9,515	0,243
130	123,69	6,31	5	2,5	10,570	5,42	10,308	0,263
140	133,21	6,79	5	2,5	11,384	5,83	11,101	0,283
150	142,72	7,28	5	2,5	12,197	6,25	11,893	0,303
160	152,24	7,76	5	2,5	13,010	6,67	12,686	0,324

A partir des données du tableau précédent, et pour les deux modalités (C5 et C6), réalisées avec une cadence de production de ≈ 140 t/h, les quantités d'enrobés estimées à l'intérieur du TSE sont de 5,83 tonnes. En revanche, les quantités de bitume estimées à l'intérieur du TSE sont différentes pour ces deux modalités, environ 210 kg pour la modalité de GB C5 et environ 280 kg pour la modalité de BBSG C6.

Les évolutions des concentrations montrent que pour une même quantité d'enrobé (GB ou BBSG) les émissions organiques engendrées sont équivalentes (Figure 3 – 54), malgré leurs quantités de bitume différentes. Ceci pose la question de la prise en compte de la quantité de liant ou de la surface en contact avec le flux gazeux.

- Sur les émissions à l'atmosphère

Compte tenu du temps de fabrication de chaque modalité, le nombre de valeurs disponibles par modalité est sensiblement équivalent. Pour permettre une comparaison avec les résultats trouvés pour l'expérimentation en conditions dédiées, le Tableau 3 - 33 présente donc les valeurs moyennes et les dispersions obtenues pour l'ensemble des fabrications avec la GB, ceci constitue des résultats moyens pour une cadence de 150 t/h et une température de fabrication de 160 °C.

Tableau 3 - 33 – Valeurs moyennes d'émissions, rapportés à 17% d'O₂, pour la GB

	CO ₂	CO	NO _x	COT
	%	mg/Nm ³		mgEqC/Nm ³
Moyenne globale	6,3	434	177	86
Ecart type	0,2	100,1	19,5	-
maximale	6,8	734	208	112
minimale	5,9	236	183	63
Coef. Variation	2,8	23,1	11,1	-

De manière équivalente, les Tableau 3 - 34 et Tableau 3 - 35 présentent les résultats obtenus pour le BBSG et pour le BBTM.

Tableau 3 - 34 – Valeurs moyennes d'émissions, rapportés à 17% d'O₂, pour la BBSG

	CO ₂	CO	NO _x	COT
	%	mg/Nm ³		mgEqC/Nm ³
Moyenne globale	6,3	352	182	95
Ecart type	0,3	84,5	13,2	-
maximale	7	445	199	103
minimale	5,9	172	145	76
Coef. Variation	4,6	14	6,7	-

Tableau 3 - 35 – Valeurs moyennes d'émissions, rapportés à 17% d'O₂, pour la BBTM

	CO ₂	CO	NO _x	COT
	%	mg/Nm ³		mgEqC/Nm ³
Moyenne globale	6,4	322	191	119
Ecart type	0,2	48	3	-
maximale	7	422	197	128
minimale	5,9	236	183	109
Coef. Variation	3,2	13,7	1,5	-

L'utilisation du bitume polymère pour la fabrication du BBTM se traduit par une augmentation des émissions de COT. Les autres rejets gazeux ne font pas apparaître de différences notables entre les fabrications.

3.3 TSE fixe au gaz naturel

Les variations de production au niveau de cadences et de types de formules fabriqués se sont beaucoup révélées plus importantes dans cette centrale fixe que dans la centrale mobile au fuel lourd étudiée.

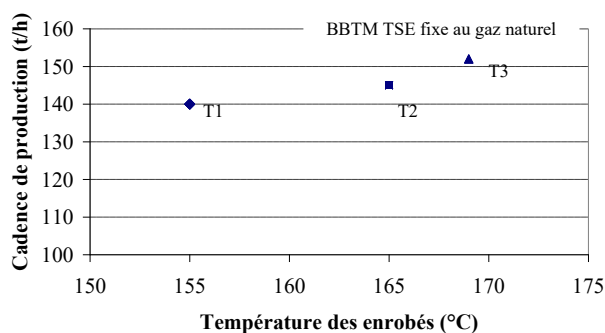
3.3.1 Plan d'expérimentation

Comme il s'agit d'une campagne de mesures en conditions normales de fabrication, la centrale d'enrobage a fonctionné normalement pendant les jours de mesures. Pendant les trois jours de fabrication, il était prévu d'effectuer des mesures d'émission de polluants au niveau de la cheminée de la centrale et au niveau de la sortie du sécheur, couplés à des informations relatives à la fabrication des enrobés au niveau de l'automate de la centrale. Comme pour la centrale mobile, les enrobés fabriqués, les cadences et les températures de production utilisées n'ont pas été choisies : il a fallu réorganiser a posteriori les données obtenues pour permettre une analyse comparable à celle d'une campagne en conditions dédiées. Une synthèse de l'ensemble du programme d'intervention est présentée dans le Tableau 3 - 36.

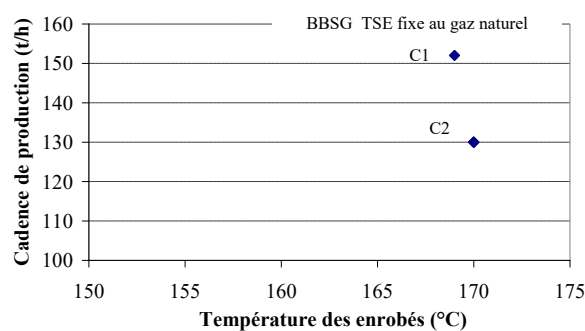
Tableau 3 - 36 – Ensemble du programme d'intervention

<i>Dates des mesures (2004)</i>	<i>Enrobé fabriqué</i>	<i>Température des enrobés °C</i>	<i>Cadence de production t/h</i>	<i>Type de liant</i>	<i>Notation (modalités)</i>
Juillet/04	BBTM	155	140	35/50	T1
		165	145	35/50	T2
		169	152	35/50	T3
Juillet/04	BBSG 0/10	169	152	35/50	C1
Septembre/04	BBSG 3G	170	135	35/50	T4
		166	140	35/50	T5 R1
		166	135	35/50	T6 R1
Septembre/04	GB	166	134	35/50	T7
Septembre/04	BBSG 0/10	170	130	35/50	C2
Septembre/04	BBSG 3D	170	120	35/50	T8
		155	105	35/50	T9

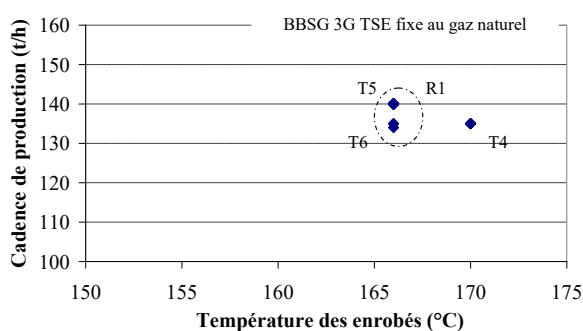
Une représentation graphique des fabrications en termes de cadence et de température des enrobés selon la notation adoptée (C1 à C2, T1 à T9 du Tableau 3 - 36), pour chaque enrobé (GB, BBSG 0/10, 3G, 3D et BBTM) est détaillée dans la Figure 3 - 55. Grâce à cette réorganisation des résultats nous avons identifié une production répétable, notée R1.



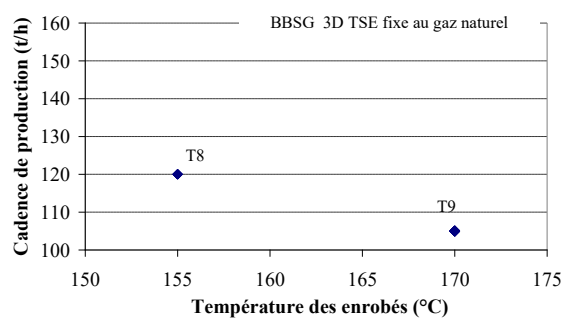
A) BBTM



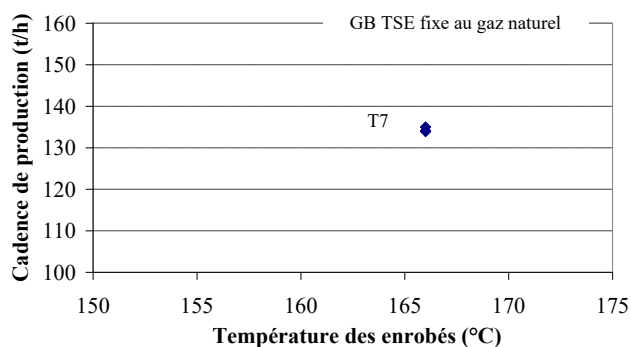
B) BBSG 0/10



C) BBSG 3G



D) BBSG 3D



E) GB

Figure 3 - 55 –Plans de fabrications réels : GB, BBSG et BBTM

3.3.2 Résultats bruts d'émissions de O₂, CO₂, CO, NO_x et COT

L'ensemble des résultats est présenté, en fonction des « modalités », dans le Tableau 3 - 37. Les dispersions calculées pour l'ensemble des fabrications montrent qu'il n'est pas possible de dégager des valeurs moyennes d'émissions représentatives du fonctionnement général de la centrale. Pour chaque formule étudiée, les moyennes et les écarts types présentées mettent en évidence principalement pour le CO des fluctuations importantes dans le temps et selon les formules. Il faut noter que la liaison entre les différentes formules n'a pas de réalité physique, puisque les formules ne sont pas fabriquées de façon continue.

Tableau 3 - 37 – Émissions brutes de O₂, CO₂, CO, NO_x et COT selon les modalités de fabrication

Modalités	Température des enrobés °C	Cadence de production t/h	Formules	Valeurs moyennes ± 1 écart-type			
				O ₂ %	CO ₂ %	CO mg/Nm ³	NO _x mg/Nm ³
T1	155	140	BBTM	14,4±0,1	3,7±0,1	34±2,1	30±0,0
T2	165	145		13,4±0,5	4,3±0,3	1504±1042	44±2,1
T3	169	152		14,1±0,1	3,9±0,0	45±2,1	34±0,0
T4	170	135	BBSG3G	12,3±0,8	4,9±0,5	1592±2005	43±10,7
T5	166	140		13,5±0,2	4,2±0,1	32±14	34±8,2
T6	166	135		13,2±0,1	4,4±0,1	17±2,2	44±2,0
T7	166	134	GB	14,8±0,3	3,9±0,2	63±33	24±1,4
T8	170	120	BBSG3D	14,2±0,1	3,8±0,1	328±449	32±2,2
T9	155	105		13,1±0,5	4,5±0,3	95±192	41±7,8
C1	169	152	BBSG0/10	14,0±0,1	3,9±0,1	186±63	42±2,2
C2	170	130		13,7±0,4	4,2±0,2	10±2,3	55±4,4

Dans un TSE, la température du gaz de combustion et le temps de résidence sont variables en fonction des conditions de fonctionnement, notamment la cadence horaire, la teneur en eau de formules et la température des enrobés, donc aussi la température des gaz de sortie. Dans un premier temps l'évolution simultanée de la cadence et de la température des enrobés a été observée, avant d'analyser l'évolution spécifique des NO_x en fonction soit de la cadence soit de la température des enrobés (Figure 3 - 56). Par ailleurs, les constituants gazeux analysés sont théoriquement spécifiques à la combustion, les différences de teneur en liant des enrobés fabriqués sont ainsi sans incidence sur les émissions mesurées. Dans ce contexte, l'analyse de l'évolution des NO_x en fonction de ces deux paramètres ne met cependant pas en évidence de liaison évidente. Il faut noter que les évolutions de la température de flamme et des conditions aérodynamiques de l'écoulement gazeux ne sont pas connues dans le cadre des sècheurs des centrales d'enrobage.

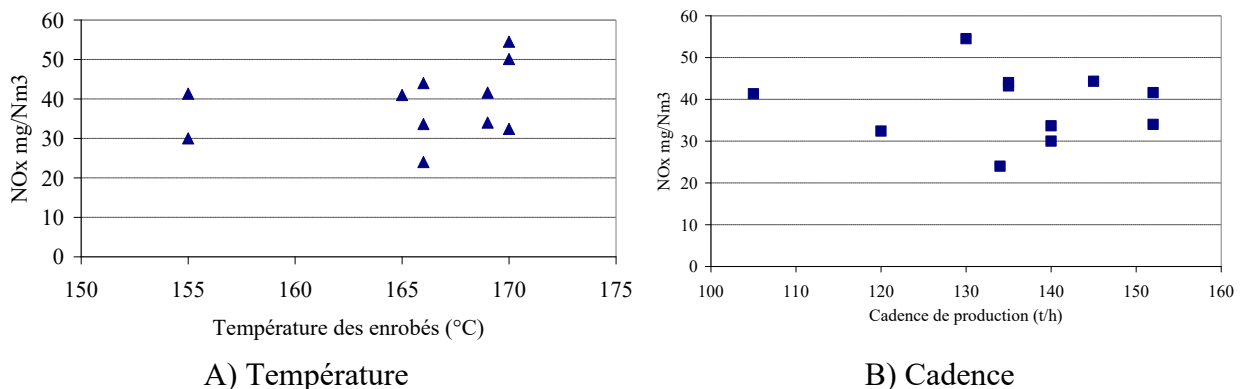


Figure 3 - 56 - Emissions de NO_x en fonction de la cadence et de la température

Les émissions de O₂, CO₂, CO et NO_x sont présentées sur la Figure 3 - 57. Les émissions de CO sont stables (écart type faible) et ne présentent pas de problème particulier. Le CO₂, calculé à partir des concentrations en O₂, présente une évolution inverse de celle de O₂ puisque le maintien constant de la dépression au nez du brûleur (consigne de marche retenue par le conducteur de la centrale) s'accompagne d'une baisse de l'excès d'air. Les émissions de NO_x sont plus faibles pour la fabrication de la GB (environ 20 mg/Nm³) et la valeur moyenne obtenue correspond à celle déterminée à partir des expérimentations dédiées (Tableau 3 - 26).

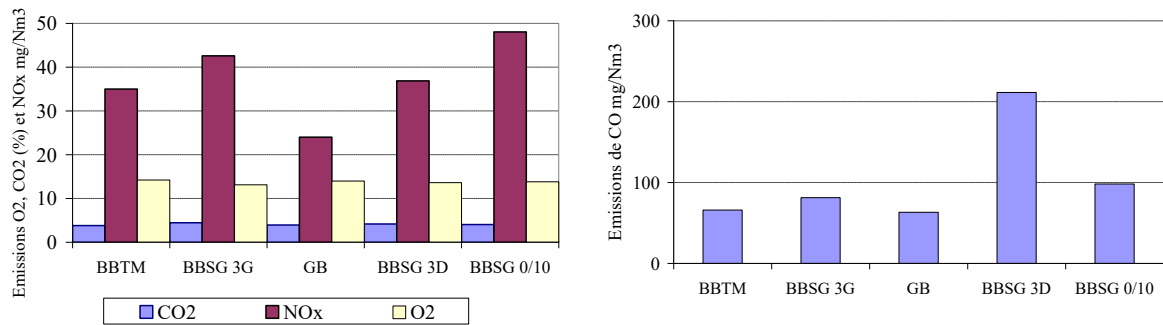


Figure 3 - 57 –Émissions de O₂, CO₂, NO_x et CO selon des formules fabriquée

3.3.3 Discussions sur les résultats en conditions usuelles du TSE au gaz

- Sur l'application de la méthodologie de traitement de données

Après la suppression de mesures réalisées lors des arrêts et démarrages, l'ensemble des résultats en période conforme est présenté dans le Tableau 3 - 38. Ces résultats obtenus pour des conditions usuelles de fabrication sont à comparer avec ceux obtenues à partir des expérimentations établies en conditions dédiées (Tableau 3 - 26). Les émissions de NO_x sont comparables. Pour le CO, l'émission moyenne obtenue à partir des données en conditions usuelles (Tableau 3 - 38) est nettement inférieure à celle obtenue en condition dédiée, principalement parce que la fabrication a été réalisée entièrement dans la plage de réglage de la combustion.

Tableau 3 - 38 – Émissions en période conforme de O₂, CO₂, CO, NO_x et COT selon les modalités de fabrication rapportés à 17%

Modalités	Température des enrobés °C	Cadence de production t/h	Formules	CO		NO _x	
				mg/Nm ³ rapporté à	17% d'O ₂		
T1	155	140	BBTM	20		18	
T2	165	145		71		24	
T3	169	152		26		20	
T4	170	135	BBSG 3G	93		24	
T5	166	140		17		18	
T6	166	135		9		23	
T7	166	134	GB	36		14	
T8	170	120	BBSG 3D	192		19	
T9	155	105		48		21	
C1	169	152	BBSG 0/10	106		24	
C2	170	130		6		30	
Valeurs moyennes				57		21	

- Sur la qualité de la combustion

La qualité de la combustion peut être évaluée par au rapport CO/CO₂ obtenu à partir des mesures réalisées. Le Tableau 3 - 39 présente les résultats obtenus, par modalité de fabrication, de ce rapport. Pour l'ensemble des fabrications, l'indice I_{CO/CO₂} est resté bas, dans la gamme de réglage du brûleur (0,63), confirmant l'analyse précédente concernant les émissions de CO. Le meilleur indice I_{CO/CO₂} est obtenu pour les formules BBSG 3G et BBSG 0/10. La valeur moyenne de l'indice est de 0,20.

Tableau 3 - 39 – Résultats du rapport CO/CO₂ selon les modalités de fabrication

<i>Modalité</i>	<i>Température des enrobés °C</i>	<i>Cadence de production t/h</i>	<i>Formules</i>	<i>Indice I_{CO/CO2}</i>
T1	155	140	BBTM	0,07
T2	165	145		0,25
T3	169	152		0,09
T4	170	135	BBSG 3G	0,33
T5	166	140		0,06
T6	166	135		0,03
T7	166	134	GB	0,13
T8	170	120	BBSG 3D	0,68
T9	155	105		0,17
C1	169	152	BBSG 0/10	0,38
C2	170	130		0,02

4 Conclusion du chapitre 3

La problématique des émissions en centrale d'enrobage a été abordée dans ce chapitre grâce à des mesures réalisées sur site industriel, en conditions dédiées de fabrication (sur des plages de production de 1 heure) et en conditions usuelles de fabrication sur des centrales d'enrobage de type TSE (à l'échelle de la journée de production). Deux matériels ont été étudiés: une centrale fixe au gaz naturel et une centrale mobile au fuel lourd. Une instrumentation spécifique a été développée et testée en cheminée ; celle-ci a permis de caractériser comme cela était prévu au chapitre 2, un ensemble de polluants pertinents par rapport à la réglementation.

L'incidence des réglages, de la combustion et des combustibles a été mise en évidence ainsi que l'importance du réglage du brûleur et du fait de faire fonctionner le matériel dans la plage de réglage afin de minimiser notamment le CO et le CO₂ émis.

Une plage complète de cadences et de températures de production a été étudiée, les variations liées aux formules utilisées ont également été mises en évidence, enfin en indicateur de qualité de la combustion a été proposé.

CHAPITRE 4 - Étude des enrobés et du bitume en laboratoire

Introduction

Les émissions lors de l'enrobage en centrale des matériaux bitumineux sont dues à la fois au phénomène de combustion et au matériau lui-même. L'objet de ce chapitre est de se concentrer sur la partie des émissions provenant uniquement du matériau, en étudiant celle-ci en laboratoire en relation avec la qualité du matériau fabriqué, évaluée en termes de vieillissement. Pour les enrobés, il est clair que seul le bitume émet des rejets à l'atmosphère, ceci nous a conduits à nous concentrer sur l'incidence de la formule sur les émissions et à étudier les émissions issues du bitume seul.

Pour réaliser cette étude, trois bancs d'essais (générateurs) ont été utilisés : un développé spécifiquement pour mesurer les émissions de l'enrobé bitumineux et deux pour caractériser les émissions du bitume.

La première partie du chapitre s'intéresse à l'étude de la qualité des enrobés produits en centrale : il s'agit d'effectuer des caractérisations en laboratoire pour évaluer l'état des matériaux en relation avec leur vieillissement. La deuxième partie du chapitre présente l'étude des émissions d'enrobés identiques à ceux issus de la centrale dans des conditions de température qui permettent de mettre en évidence des réponses significativement différentes. L'incidence du type de bitume est notamment étudiée en parallèle avec le vieillissement pour permettre une comparaison avec l'enrobage en centrale. La troisième partie du chapitre est consacrée à l'étude du bitume seul. Enfin la dernière partie propose une synthèse des différents résultats obtenus en laboratoire entre les émissions et le vieillissement du bitume.

1 Étude de la qualité des enrobés produits en centrale en conditions dédiées

Les enrobés fabriqués lors de la campagne de mesures réalisée sur le TSE fixe au gaz naturel à Blois (cf. chapitre 3 – partie II) ont été analysés au LCPC. L'influence de la cadence et de la température sur la qualité des enrobés fabriqués est exploitée par la réalisation de 6 modalités de fabrication : Modalité 1 notée M1 (120 t/h et 160 °C), Modalité 2 notée M2 (140 t/h et 160 °C), Modalité 3 notée M3 (160 t/h et 160 °C), Modalité 4, notée M4 (140 t/h et 140 °C), Modalité 5 notée M5 (140 t/h et 160 °C) et Modalité 6 notée M6 (140 t/h et 180°C). Les modalités M2 et M5 sont identiques, ce qui permet l'étude de la répétabilité des mesures.

1.1 Bitume utilisé

Le bitume utilisé pendant la campagne de mesures a été caractérisé par le fournisseur avant son départ à la centrale d'enrobage. Les résultats sont présentés dans le Tableau 4 - 1. Il s'agit d'un bitume pur de classe 35/50.

Tableau 4 - 1 - Caractéristiques du bitume d'origine (35/50) type A

Essais	Unités	Valeurs
Pénétrabilité à 25 °C	1/10mm	39
TBA	°C	55
Volatilité (Rec450)	%	2,1

La volatilité (Rec450), qui a été mesurée par le biais d'une distillation simulée (annexe 1.2), est une caractéristique de chaque bitume. Il s'agit de la quantité de masse cumulée distillée quand la température de la colonne chromatographique monte à 450 °C (Brandt 1999) (Figure 4 - 1).

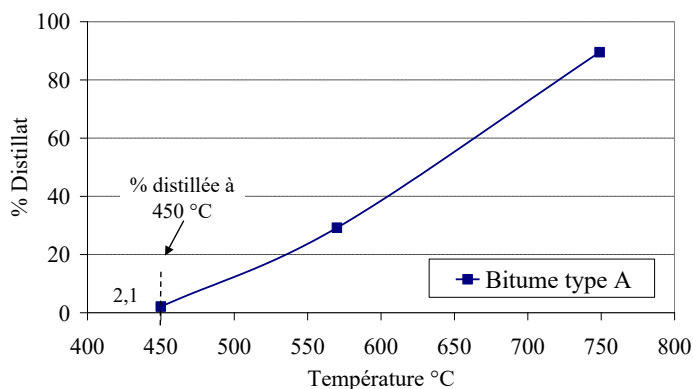


Figure 4 - 1 – Courbe de distillation simulée du bitume utilisé (35/50) type A

Le bitume 35/50 utilisé se classe donc dans les bitumes de faible volatilité.

1.2 Conformité des enrobés – contrôle de composition

Des prélèvements de l'enrobé dans les camions ont été faits à la sortie de la centrale. Les contrôles de composition ont été réalisés par la Division TGCE du LCPC de Nantes. Les résultats regroupés dans le Tableau 4 - 2 montrent une homogénéité de la granulométrie quelle que soit la modalité de fabrication. En revanche, la teneur en liant a été plus élevée que le dosage théorique de 3,75 %.

Tableau 4 - 2- Granulométrie et teneur en liant obtenue par modalité fabriquée

	<i>Modalité 1</i>	<i>Modalité 2</i>	<i>Modalité 3</i>	<i>Modalité 4</i>	<i>Modalité 5</i>	<i>Modalité 6</i>
Cadence de production t/h	120	140	160	140	140	140
Température des enrobés °C	160	160	160	140	160	180
Tamis (mm)	Passants %					
14	96,9	96,3	97,2	96,8	96,9	97,0
12,5	91,6	89,7	90,1	90,6	91,3	90,9
10	76,6	76,1	75,9	76,4	77,7	75,1
8	65,0	65,5	65,5	64,7	66,5	65,6
6,3	57,8	57,6	57,0	57,5	59,0	58,0
5,0	53,1	52,1	50,7	52,6	53,8	51,8
4	48,5	47,0	45,9	47,6	48,8	46,4
2	37,0	35,6	34,2	35,5	36,3	35,3
1	24,1	22,5	22,1	23,0	23,3	22,9
0,5	16,9	15,9	15,5	16,2	16,3	16,2
0,315	13,6	12,8	12,5	13,1	13,2	13,1
0,2	11,2	10,5	10,0	11,0	10,8	10,8
0,08	7,7	7,4	7,1	7,6	7,6	7,9
TL* (%)	3,89	3,88	3,85	4,00	4,04	3,95

* TL = teneur en liant moyenne sur six échantillons prélevés

1.3 Résultats des essais de caractérisation

Des plaques d'enrobé ont été fabriquées pour la réalisation du module complexe sur l'enrobé au moment du chantier. De l'enrobé foisonné a également été prélevé. Il est resté stocké en boîtes fermées pendant 4,5 mois et a été utilisé pour réaliser une extraction du bitume par la méthode de Rouen, pour permettre la réalisation des essais physiques (TBA et pénétrabilité), chimiques (spectrométrie infrarouge et teneur en asphaltènes) et mécaniques (module complexe du bitume). La méthode d'extraction et les essais de caractérisation utilisés sont décrits dans l'annexe 1.1.

1.3.1 Essais physiques

Les résultats de ces essais sont présentés dans la Figure 4 - 2. Ils montrent un fort vieillissement du bitume et une homogénéité des résultats de caractérisation du bitume entre les modalités fabriquées. Deux explications peuvent être avancées pour expliquer ce phénomène : soit les essais de pénétrabilité et TBA ne sont pas suffisamment discriminants ou, soit le fonctionnement de la centrale dans la plage étudiée, associée au stockage pendant 4,5 mois des matériaux, a conduit à la même évolution des matériaux. Il est à noter que l'essai RTFOT conduit à un vieillissement plus faible que celui observé sur les liants issus des matériaux fabriqués en centrale d'enrobage. Ceci milite donc pour la deuxième hypothèse, le RTFOT étant considéré comme un essai pertinent pour caractériser le vieillissement à l'enrobage de bitumes purs [Ramond et al, 1990a] .

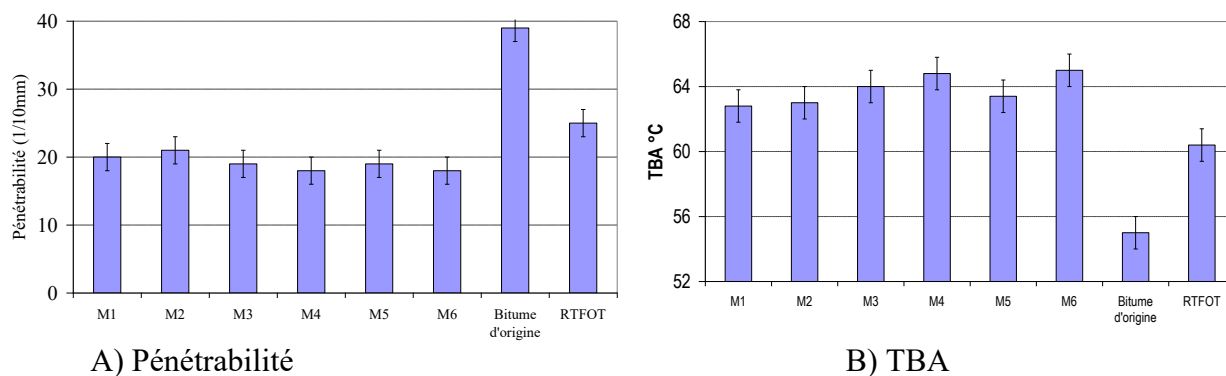


Figure 4 - 2 – Résultats de pénétrabilité et TBA du bitume extrait des modalités fabriquées en centrale

1.3.2 Essais chimiques

Les résultats de la spectrométrie infra-rouge présentés dans la Figure 4 - 3 suivent la pénétrabilité et la TBA, montrant que le vieillissement a été le même, quelle que soit la modalité fabriquée.

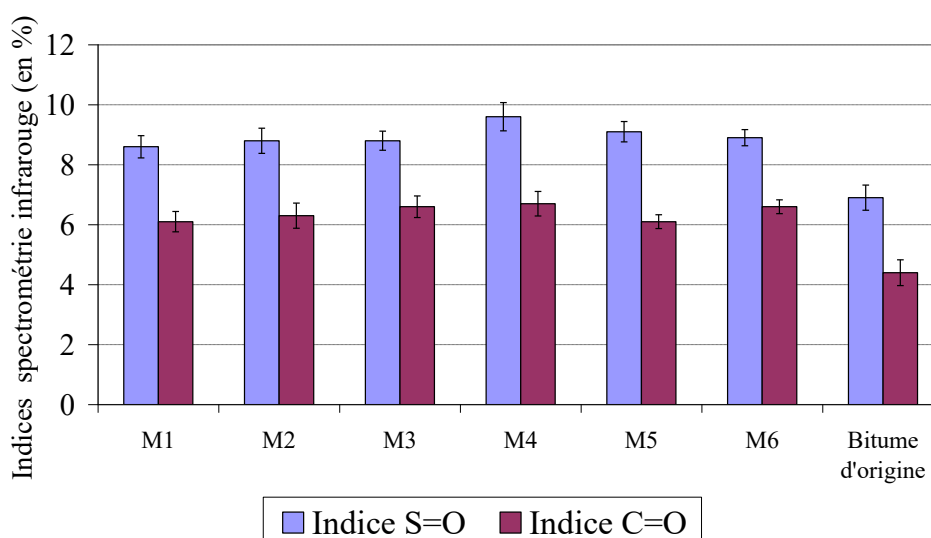


Figure 4 - 3 – Résultats des essais de spectrométrie infrarouge du bitume extrait des modalités fabriquées

Des essais de teneur en asphaltènes ont été réalisés dans le but de séparer les bitumes en familles génériques. Les résultats sont présentés dans le Tableau 4 - 3. Pour les bitumes, l'évolution suite à l'enrobage se traduit essentiellement par une augmentation de la teneur en asphaltènes et la diminution connexe des résines et des huiles aromatiques qui entraînent un accroissement de l'indice d'instabilité.. Pour une même cadence de production, on remarque une augmentation des asphaltènes avec l'augmentation de la température. Par contre, il semble qu'à température égale la cadence de production n'influe pas. Il est cependant à noter que les écarts observés sont très faibles au regard de la dispersion obtenue sur les teneurs en asphaltènes des modalités identiques M2 et M5.

Tableau 4 - 3- Teneurs de chacune des familles génériques détectées

		Valeurs en %			
		Saturés	Aromatiques	Résines	Asphaltènes
Bitume frais 35/50	Moyenne	5,09	48,6	27,68	18,63
	Ecart type	0,23	1,65	1,18	0,52
	Coef.Variation	4,43	3,39	4,27	2,77
M1	Moyenne	5,63	48,49	29,45	18,43
	Ecart type	0,25	1,52	0,69	1,01
	Coef.Variation	4,40	3,27	1,33	5,47
M2	Moyenne	6,21	44,69	29,74	19,35
	Ecart type	0,19	1,64	1,32	0,85
	Coef.Variation	3,01	3,68	4,43	4,41
M3	Moyenne	5,87	44,62	30,29	19,22
	Ecart type	0,42	1,47	0,94	0,36
	Coef.Variation	7,12	3,29	3,09	1,87
M4	Moyenne	5,82	41,20	32,42	20,56
	Ecart type	0,43	0,73	0,81	0,42
	Coef.Variation	7,31	1,78	2,51	2,04
M5	Moyenne	5,74	42,11	31,36	20,79
	Ecart type	0,17	1,26	1,10	0,38
	Coef.Variation	2,88	2,99	3,51	1,81
M6	Moyenne	5,61	42,87	30,18	21,34
	Ecart type	0,30	0,95	0,82	0,83
	Coef.Variation	5,33	2,21	2,73	3,90

1.3.3 Essais mécaniques

Essais de module complexe sur bitume : D'éventuelles différences d'évolution du bitume entre les modalités ont été recherchées en étudiant les modules complexe du bitume et de l'enrobé. Les résultats du module complexe du bitume peuvent être analysés par une comparaison des courbes maîtresses des modalités fabriquées (Figures 4 – 4 et 4 - 5).

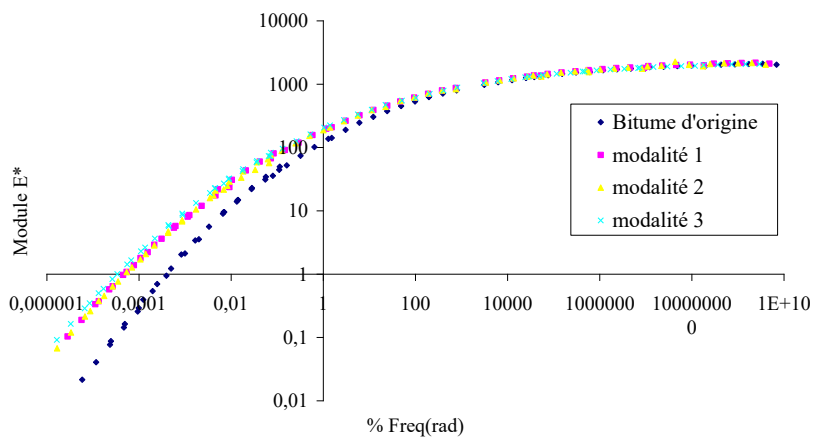


Figure 4 - 4 - Courbes maîtresses des bitumes à 0 °C : module en fonction de la fréquence (Modalités M1 à M3), classées selon l'incidence de la cadence de fabrication

Les courbes maîtresses montrent une différence entre le bitume d'origine (bitume pur) et les bitumes extraits des modalités fabriquées, cependant aucune différence n'existe entre les modalités fabriquées. Les résultats du module complexe du bitume confirment les valeurs de pénétrabilité, TBA et spectrométrie infra rouge trouvées, où une même évolution des performances mécaniques a été retrouvée dans toutes les modalités fabriquées.

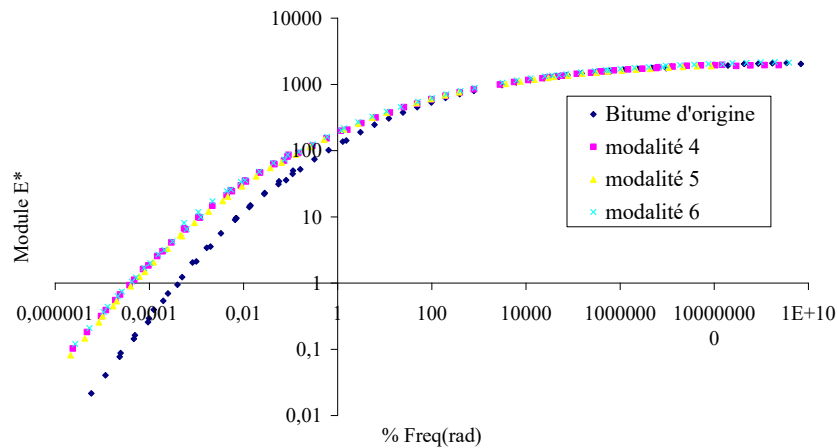


Figure 4 - 5 - Courbes maîtresses du bitume à 0 °C : module en fonction de la fréquence (Modalités M4 à M6), classées selon l'incidence de la température de fabrication

Essais de module complexe sur enrobé : Les essais de module complexe de l'enrobé sont réalisés sur des éprouvettes trapézoïdales d'enrobé bitumineux décrits dans l'annexe 1.5. Les résultats bruts pour les six modalités fabriquées sont présentés dans la Figure 4 - 6.

Certains écarts peuvent être observés entre les différentes modalités, cependant, il est à noter que la teneur en vide et la teneur en liant influencent fortement les valeurs de module. Pour pouvoir comparer les résultats, il est donc nécessaire de ramener les matériaux à des valeurs de teneur en vide et teneur en liant équivalentes. Nous avons choisi la modalité 6 comme référence où le pourcentage de vides est de 6,2 % et la teneur en liant est de 3,95%.

La correction peut être réalisée à l'aide des formules suivantes [SETRA, 1994]:

$$\Delta E = (2000 - 310 \times TL) \Delta C \quad (4 - 1)$$

Où TL, teneur en liant
 ΔC , effet de la variation de la compacité
 ΔE , variation du module

$$\Delta E = (18000 - 3700 \times TL) \Delta TL \quad (4 - 2)$$

Où TL, teneur en liant
 ΔTL , Effet de la variation de la teneur en liant
 ΔE , variation du module

Les calculs et les résultats sont présentés dans le Tableau 4 - 4.

Tableau 4 - 4 – Resultats du module complexe corrigé

Module complexe de l'enrobé	Unité	M1	M2	M3	M4	M5	M6
E à 15 °C 10Hz	MPa	13037	13489	13627	13314	14101	14173
% vides	%	7,1	6,9	6,4	6,8	6,6	6,2
Compacité ΔC	%	0,9	0,7	0,2	0,6	0,4	0
% vides corrigés	%	6,2	6,2	6,2	6,2	6,2	6,2
E à corriger	MPa	715	558	161	456	299	0
E à 15 °C 10Hz corrigé	MPa	13752	14047	13788	13770	14400	14173
% TL	%	3,89	3,88	3,85	4	4,04	3,95
ΔTL	%	0,06	0,07	0,1	-0,05	-0,09	0
% TL corrigé	%	3,95	3,95	3,95	3,95	3,95	3,95
E à corriger	MPa	203	237	339	-169	-305	0
E à 15 °C 10Hz corrigé	MPa	13955	14284	14127	13601	14095	14173

De même que pour le module complexe du bitume, les écarts de modules de l'enrobé ne sont pas discriminants. Il est également à noter que la valeur du module obtenu est élevée pour une grave bitume au bitume 35/50, ce qui est cohérent avec l'hypothèse d'un vieillissement important du matériau.

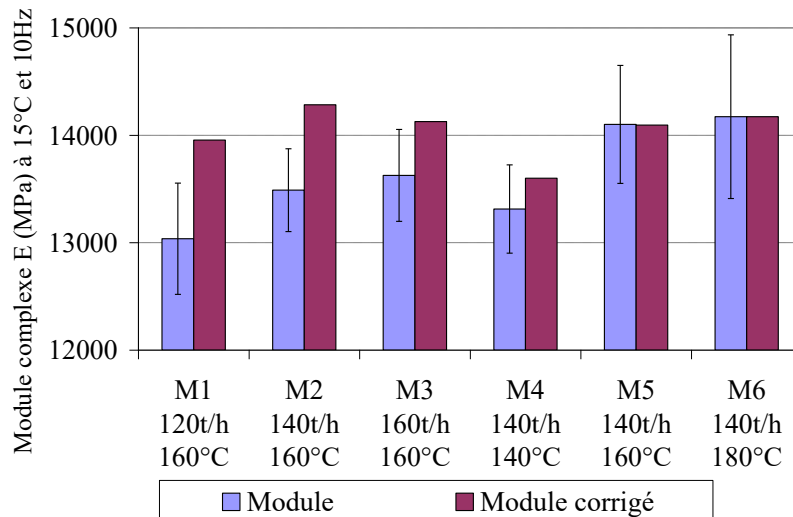


Figure 4 - 6 – Module complexe (brut et corrigé) à 15 °C et 10Hz des enrobés bitumineux sur éprouvettes trapézoïdales issues des plaques d'enrobé fabriquées à Blois

1.3.4 Essais physico-chimiques

L'essai de vieillissement accéléré (RTFOT) simule en laboratoire l'évolution subie par le bitume lors de l'enrobage en centrale (annexe 1.4). Après ces premiers résultats nous avons fait un essai RTFOT, à 163,3 °C selon la norme, avec le bitume d'origine prélevé à Blois. Deux autres essais ont également été programmés, à 140 °C et 180 °C, même s'ils sont hors norme, pour les comparer avec les modalités fabriquées en centrale. Les résultats sont reportés dans la Figure 4 - 7. Les résultats montrent, à 163,3 °C, un vieillissement plus faible que celui obtenu pour les différentes modalités fabriquées en centrale, qui est plus proche du résultat obtenu avec l'essai à 180 °C.

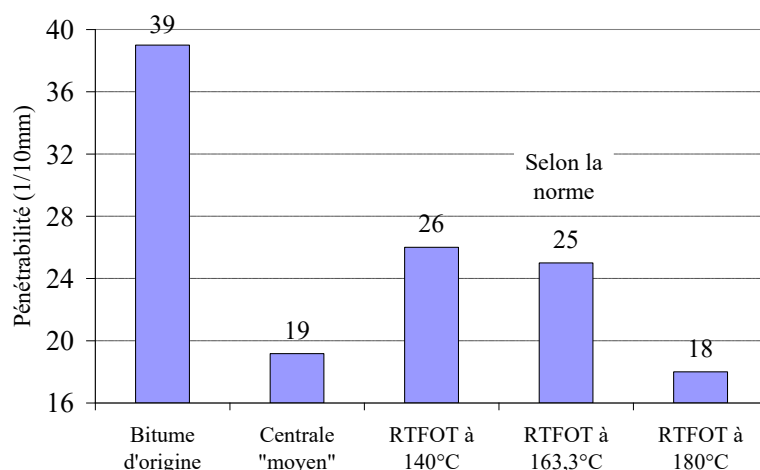


Figure 4 - 7 – Résultats de la pénétrabilité du bitume d'origine et après RTFOT

Les essais utilisés pour caractériser l'enrobé fabriqué en centrale d'enrobage ont montré le vieillissement existant lors de l'enrobage, selon les différentes modalités de fabrication. Ils seront utilisés dans la suite pour caractériser les enrobés fabriqués en laboratoire.

1.4 Bilan sur la qualité de l'enrobé produit en centrale

La qualité des enrobés fabriqués en centrale a été évaluée sur des échantillons prélevés lors de la campagne de mesures en conditions dédiées de fabrication sur le TSE au gaz naturel (chapitre 3). L'influence de la cadence et de la température de production a été vérifiée pour les 6 modalités de fabrication.

Les essais réalisés pour caractériser le bitume et l'enrobé fabriqué lors de la campagne de mesures réalisées sur le TSE au gaz naturel à Blois ont montré que :

- Le bitume a subi un fort vieillissement par rapport au bitume d'origine lors de l'enrobage ;
- Les résultats des essais de caractérisation du bitume et de l'enrobé réalisés (pénétrabilité, TBA, spectrométrie infrarouge, module complexe du bitume et module complexe de l'enrobé), pour toutes les modalités fabriquées, présentent une similitude très forte ;
- Le bitume a subi un vieillissement identique quelle que soit la modalité de fabrication.

Les résultats obtenus apportent une réponse sur la qualité de l'enrobé fabriqué dans une centrale type TSE. L'hypothèse d'une perte de qualité de l'enrobé fabriqué associée à une surchauffe des matériaux, dans le domaine expérimental étudié (140 à 180 °C et 120 à 160 t/h), a été écartée. En effet, le bitume frais (non vieilli) entre dans le TSE, se mélange avec les granulats chauds en contact avec les gaz de combustion, et sort déjà comme enrobé, vieilli. Il a été vérifié que ce processus est indépendant de la cadence ou de la température de production dans le domaine expérimental étudié. Toutefois ces résultats restent limités à l'étude menée, car l'essai RTFOT conduit à un vieillissement inférieur quelle que soit la modalité fabriquée.

2 Étude expérimentale sur les émissions dues aux enrobés

2.1 Objectifs et mise en œuvre de l'étude expérimentale

Des hypothèses simplificatrices par rapport au procédé « centrale » sont nécessaires pour permettre d'étudier les émissions organiques engendrées par le matériau seul. La démarche entreprise a consisté tout d'abord à isoler l'enrobé bitumineux du système de chauffage (combustion). Cela a été réalisé en utilisant dans un malaxeur thermo-régulé électriquement.

Les principaux objectifs des essais sur les enrobés réalisés en laboratoire sont :

- Étudier les fumées des enrobés par le biais d'un plan d'expérience en s'appuyant sur les principaux facteurs influents ;
- Établir une comparaison entre les émissions et le vieillissement de l'enrobé.

Cette démarche nécessite de déterminer a priori les paramètres influents et de mettre au point une méthode de fabrication et de génération de fumées assez répétable pour différencier les modalités de fabrication.

Parmi les paramètres à tester, les études conduites sur les fumées de bitume [Brandt et Groot, 1999] mettent en évidence la température et la volatilité du bitume comme les principaux facteurs d'augmentation des émissions, notamment pour les HAP. Pour les émissions des enrobés bitumineux, nous avons pris l'hypothèse que l'épaisseur du film de bitume a une importance majeure, d'où l'étude de la teneur en liant à granulométrie constante (module de richesse). Les choix d'étudier les formules GB et BBSG nous permettra de mettre ces résultats en parallèle avec celles des émissions de la centrale d'enrobage.

Les paramètres influents choisis ont été testés à l'aide d'un plan d'expérience élaboré de façon à ne pas s'écarter de la réalité des chantiers routiers. Les paramètres à étudier ont donc été déterminés de façon à représenter les conditions couramment utilisées par les centrales d'enrobage.

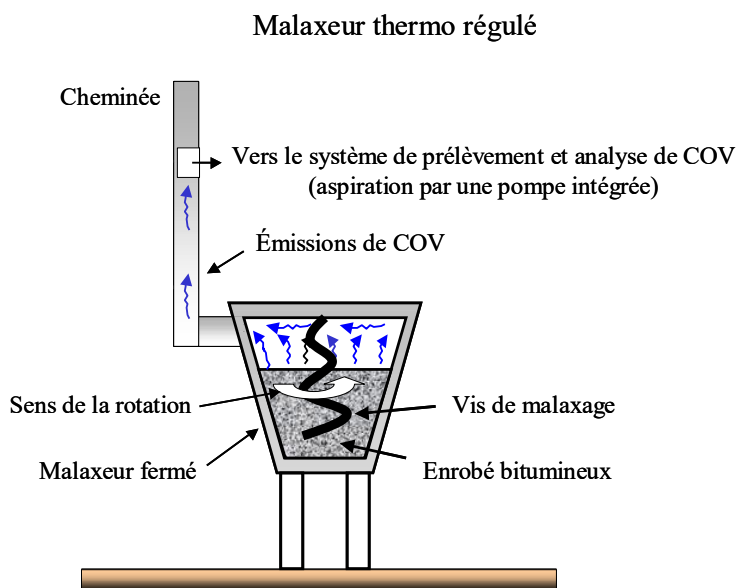
2.2 Appareillage

2.2.1 Système de génération d'émissions des enrobés lors du malaxage

Compte tenu de l'inexistence d'un générateur de fumées pour les émissions des enrobés, une cheminée, entièrement réalisée en acier inoxydable pour résister aux élévations de température et dans le souci d'éviter des contaminations, a été adaptée à un malaxeur de laboratoire (BBMAX 80 kg MLPC), couramment utilisé par la fabrication des enrobés en laboratoire. Elle permet l'acheminement des fumées émises par l'enrobé bitumineux fabriqué, de la cuve principale du malaxeur aux différents dispositifs de prélèvements mis en place (Figure 4 - 8).



A) Malaxeur et cheminée



B) Schéma du cheminement de fumées

Figure 4 - 8 - Vue générale de l'installation de malaxage et de la cheminée

Pour cela, la cheminée est équipée d'un système de vannes de réglage du flux gazeux, permettant de sélectionner les parties d'émissions nous intéressant au cours du malaxage. En effet, la position fermée (Figure 4 - 9) indiquée en (a) oriente les poussières issues du malaxage préliminaire « à blanc » des granulats vers un système de récupération ; de cette sorte, elle n'est utilisée qu'avant introduction du bitume. La position ouverte indiquée en (b), oriente les fumées émises lors de la fabrication de l'enrobé, après introduction du bitume, vers les dispositifs de prélèvement.

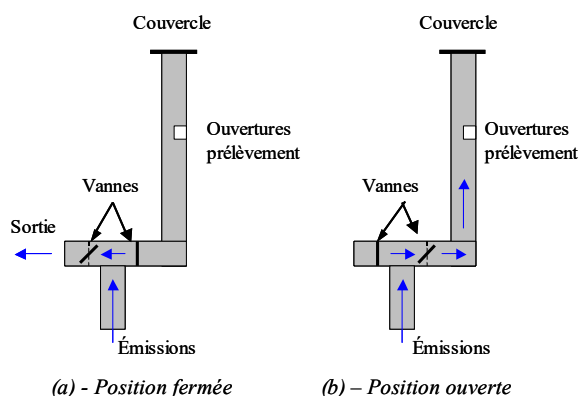


Figure 4 - 9 – Système de réglage et cheminement de fumées

2.2.2 Protocole de fabrication et prélèvement gazeux

Une méthode de fabrication et de prélèvement gazeux a dû être développée pour permettre la réalisation de l'étude expérimentale dans les meilleures conditions (annexe 5). Un temps de malaxage de 30 min a été fixé pour permettre d'avoir des prélèvements représentatifs des variations existantes, notamment les pics d'émission. Pour tous les malaxages, nous avons mesuré les émissions de COT et prélevé les HAP avec de la résine XAD2 et des filtres téflon. Dans tous les cas, nous avons obtenu une courbe d'émission de COT en forme de « cloche ». Cette courbe est exploitée comme proposé au chapitre 2, en potentiel d'émission et pic d'émission.

La répétabilité des prélèvements de fumées a été vérifiée par la réalisation d'essais préliminaires. Six essais ont été exécutés sur un enrobé BBSG, avec du bitume type A, fabriqué à 152 °C (160 °C de température de chauffage des granulats en étuve) pour évaluer la

répétabilité de la mesure de COT (protocole de prélèvement gazeux) (Figure 4 - 10). Cette température a été choisie parce qu'elle reflète les températures couramment utilisées par les centrales d'enrobage. Le Potentiel d'émission et la valeur Pic obtenus sont présentés dans la Figure 4 - 11.

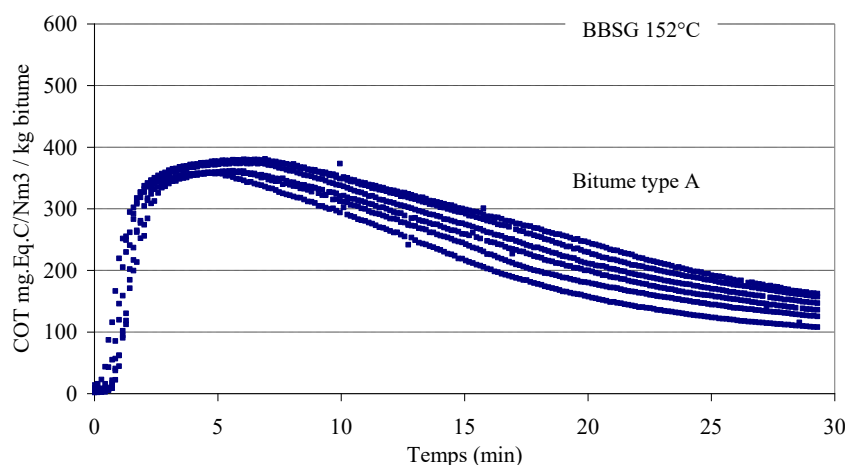


Figure 4 - 10 – Évolution des émissions de COT pour le BBSG fabriqué à 152 °C

Compte tenu des potentiels d'émissions calculés des six essais (Figure 4 - 11), nous avons une valeur moyenne de 438006 (mgEq.C /Nm³).s/kg bitume, un écart type de 40398 (mgEq.C /Nm³).s/kg bitume et un coefficient de variation de 9,2 %. Pour les valeurs de Pic, nous avons une valeur moyenne de 369 (mgEq.C /Nm³)/kg bitume, un écart type de 10 (mgEq.C /Nm³)/kg bitume et un coefficient de variation de 2,7 %. L'écart type obtenu reflète les difficultés et les limitations du type d'essai réalisé, cependant il permet de discriminer les différentes modalités. Pour tous les essais réalisés par la suite, les résultats seront analysés au regard de ces valeurs de répétabilité.

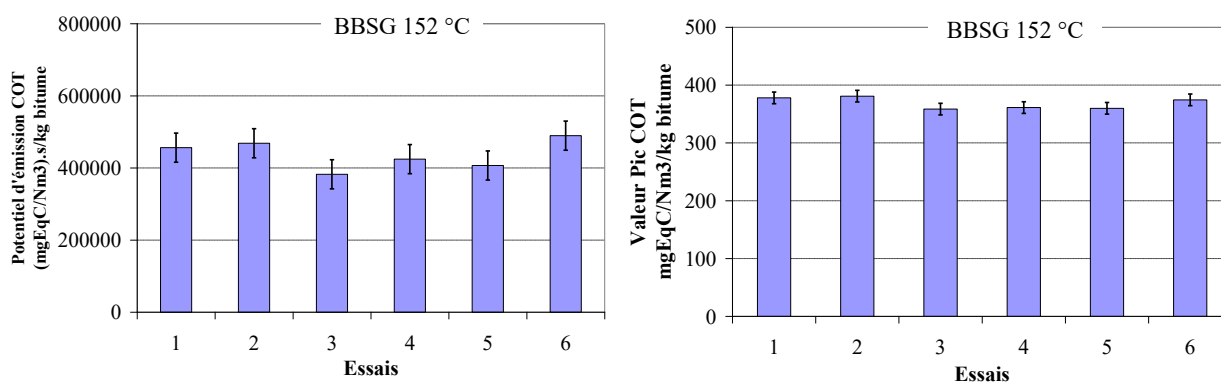


Figure 4 - 11 – Répétabilité du Potentiel et de la valeur Pic d'émission de COT pour le BBSG fabriqué à 152 °C

2.3 Matériaux utilisés

2.3.1 Formules d'enrobés étudiées

Les matériaux utilisés et les granulats en laboratoire ont été prélevés lors de la campagne de mesures réalisée sur le TSE fixe (chapitre 3). Il s'agit de granulats issus de la carrière « La Noubleau ». La composition globale des enrobés bitumineux désignés par « Grave Bitume (GB) » et « Béton Bitumineux Semi-Grenus (BBSG) », est détaillée dans le Tableau 4 - 5.

Tableau 4 - 5 - Composition de la formule Grave-Bitume (GB) et Béton bitumineux Semi-grenu (BBSG)

Constituant	Enrobé GB		Enrobé BBSG	
	Pourcentage (%)	Masse en kg par malaxage	Pourcentage (%)	Masse en kg par malaxage
Granulat 10/14	29,0	20,235	30,0	20,589
Granulat 6/10	18,0	12,560	17,0	11,667
Granulat 2/6	18,0	12,560	20,0	13,726
Sable 0/2	33,5	23,375	30,5	20,932
Filler	1,5	1,047	2,5	1,716
Total de granulats	100	72,392	100	72,129

Il faut noter que les formulations des deux enrobés étudiés sont très similaires (courbe granulométrique Figure 4 - 12). Cette caractéristique des formules choisies permet d'étudier l'incidence du module de richesse. La plupart des formules d'enrobés couramment utilisées ont des modules de richesses situés entre ces deux extrêmes étudiés.

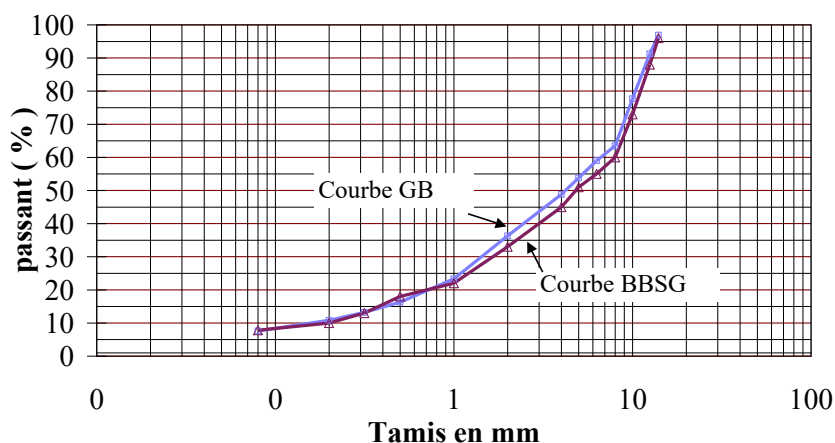


Figure 4 - 12 – Courbes granulométriques des enrobés GB et BBSG étudiés

Les quantités de bitumes des formules (teneur en liant) sont donc différentes. Cette différence est suffisante pour augmenter le module de richesse de l'enrobé de 2,42 jusqu'à 3,27 (Tableau 4 - 6).

Tableau 4 - 6 – Teneur en liant et module de richesse des formules GB et BBSG étudiés

	Enrobé GB		Enrobé BBSG	
	Pourcentage (%)	Masse en kg par malaxage	Pourcentage (%)	Masse en kg par malaxage
Bitume	3,75	2,617	5,1	3,500
Module de richesse	2,42		3,27	

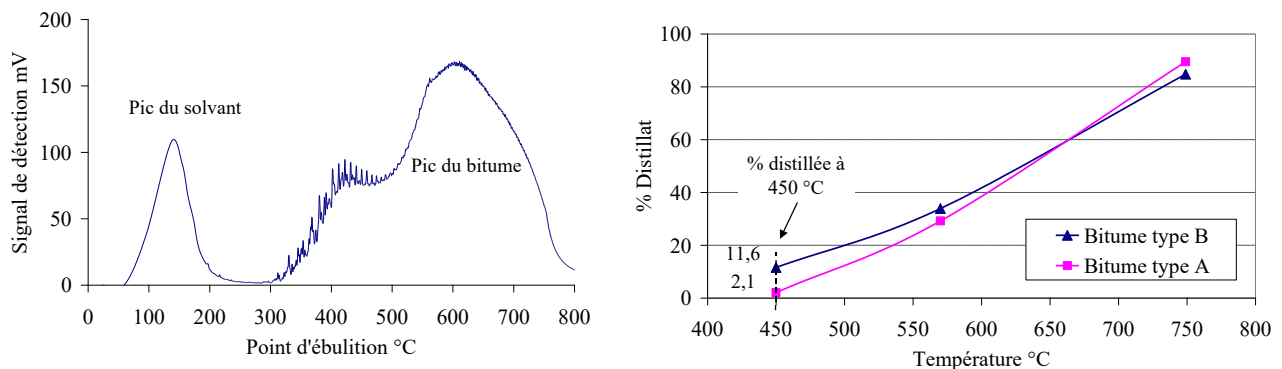
2.3.2 Type de bitumes étudiés

Deux bitumes d'origines différentes ont été utilisés lors de la réalisation des essais. Un premier bitume appelé « type A », d'une grade 35/50, porteur d'une basse volatilité (2,1 %), déjà utilisé lors des essais sur site (Partie I de ce chapitre). Un deuxième bitume appelé « type B », d'un grade 35/50, porteur d'une haute volatilité (11,6 %) a été choisi à cause de sa volatilité élevée (Tableau 4 - 7).

Tableau 4 - 7 - Caractéristiques du bitume type B

Essais	Unités	Valeurs
Pénétrabilité à 25 °C	1/10mm	35
TBA	°C	53,8
Volatilité	%	11,6

Dans le cas des bitumes étudiés, les courbes chromatographiques obtenues montrent nettement les différences dans les pics du bitume (Figure 4-15). Le bitume de type B possède, dans sa composition, des éléments chimiques responsables de l'augmentation de la volatilité, cependant il n'est pas possible, par cet essai de distillation simulée, de les identifier. Il pourrait s'agir normalement d'huiles saturées lourdes mélangées avec du bitume.



A) Courbe de distillation du bitume type B B) Volatilité des bitumes types A et B

Figure 4 - 13 – Courbe de distillation simulée du bitume type B et volatilité des bitumes type A et B étudiés

D'après les études menées par Brandt (équation 1-2) [Brandt et Groot, 1999], les émissions du bitume exprimées par MSB en mg/h, sont directement corrélées avec la volatilité du bitume et inversement avec la température. Pour les deux bitumes étudiés (types A et B), des tendances d'émissions en appliquant la relation théorique de Brandt (cf. chapitre 1) sont montrées sur la Figure 4 – 14.

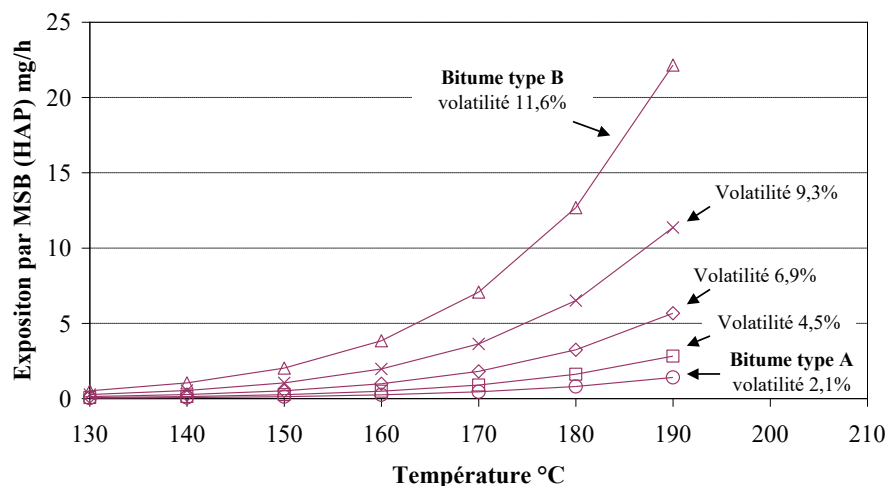


Figure 4 - 14 – Exposition par MSB (HAP) selon les températures et la volatilité du bitume d'après [Brandt et Groot, 1999]

Ce taux d'émission du bitume, dans la gamme de températures utilisées par le plan d'expérience élaboré (domaine expérimental), augmente d'un facteur 2 à chaque fois que la température augmente d'environ 12 °C. Le taux d'émission double également dans le cas d'une augmentation de volatilité du bitume d'environ 2,4 %.

2.4 Définition d'un plan d'expérience

Les facteurs pris en compte dans le plan d'expérience ont été la température (°C), la volatilité du bitume (%) et le module de richesse de l'enrobé (sans unité). Le Tableau 4 - 8 montre un résumé des facteurs et des paramètres étudiés. Les niveaux haut et bas de températures indiqués dans le plan d'expérience (température de chauffe des granulats) correspondent à des températures de référence, c'est-à-dire la température effective de l'étuve des granulats. Toutefois, bien que le malaxeur soit capable de maintenir constante la température des matériaux, il y a systématiquement une perte de ± 8 °C lors du transport de ces derniers de l'étuve à la cuve du malaxeur.

Tableau 4 - 8 - Facteurs étudiés par le plan d'expérience– niveaux (haut et bas)

	<i>Facteur 1</i>	<i>Facteur 2</i>	<i>Facteur 3</i>
	<i>Température de chauffe des granulats en étuve (et dans le malaxeur)</i>	<i>Module de richesse</i>	<i>Type de bitume</i>
Niveau bas (-)	140 °C (132 °C)	2,42	Type A (peu volatil=2,1%)
Niveau haut (+)	190 °C (182 °C)	3,27	Type B (très volatil=11,6%)

L'acquisition progressive de connaissance est développée en utilisant un plan d'expérience en deux étapes. Dans une première étape, seuls deux facteurs sont étudiés, la température de fabrication et la formule des enrobés fabriqués, selon un plan d'expérience 2^2 , pour un procédé de malaxage fixé. Dans une deuxième étape du plan d'expérience, le type de bitume est incorporé comme facteur à étudier, où un bitume beaucoup plus volatil est utilisé pour augmenter les émissions. Il s'agit donc d'un plan complet 2^3 .

Dans ce contexte, seize essais ont été réalisés pour compléter le plan d'expérience souhaité. Les quatre premiers (1 à 4) ainsi que leurs répétabilités ont été réalisés avec un bitume peu volatil (type A). Les quatre derniers (5 à 8) ainsi que leurs répétabilités ont été réalisés avec un bitume très volatil (type B). Tous les essais ont été réalisés dans les extrêmes du domaine expérimental (Figure 4 – 15). Un temps de malaxage de 30 min a été fixé par essai pour permettre avoir des prélèvements représentatifs des variations existantes, notamment les pics d'émission. Au total, 34 malaxages ont été réalisés et environ 2,5 tonnes d'enrobés ont été fabriqués au cours de la thèse.

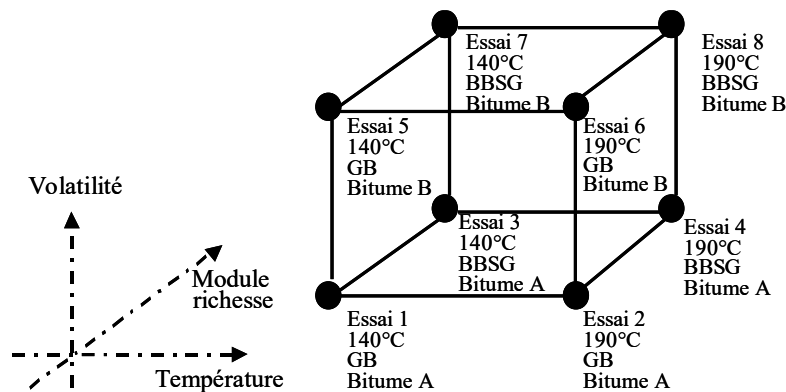


Figure 4 - 15 – Domaine expérimental étudié en laboratoire et emplacement des essais expérimentaux

Par rapport au vieillissement de l'enrobé, les réponses les plus adaptées sont les essais couramment utilisés dans le domaine routier et déjà effectués en début de ce chapitre sur les matériaux issus de la centrale : la pénétrabilité, la TBA, les indices de vieillissement ($S=O$, $C=O$) déterminés par spectrométrie infrarouge et le module complexe, réalisés sur des bitumes extraits ou sur des éprouvettes dans le cas de l'enrobé. L'extraction et tous les essais de caractérisation ont été réalisés selon l'annexe 1. Pour étudier l'influence de la volatilité du bitume, nous avons utilisé un bitume provenant d'un autre brut que celui d'origine. Dans ces conditions, il est possible que d'autres caractéristiques telles que la pénétrabilité et la TBA, par exemple, aient été modifiées. C'est pourquoi, nous avons pris la précaution de ne pas utiliser ces données brutes mais plutôt des valeurs relatives qui ont été déterminées à partir de celles du bitume frais d'origine.

Pour évaluer l'évolution des performances mécaniques des matériaux (bitume et enrobé) en fonction des facteurs étudiés, on utilise l'essai de module complexe. Sachant que le module complexe dépend de la température et de la fréquence des sollicitations, nous avons fixé une fréquence à 7,8 hz et 10 hz (bitume et enrobé), valeurs proches du trafic routier, et nous avons choisi d'évaluer le comportement du matériau à haute et basse température, en se basant sur les valeurs d'angle de phase :

- Angle à 27° : représentatif d'un niveau de service froid (d'environ 10°C). Dans cette gamme de température se trouvent les problèmes de fatigue des enrobés ;
- Angle à 45° : représentatif d'un niveau de service chaud (d'environ 40°C). Dans cette gamme de température se trouvent les problèmes d'orniérage des enrobés ;

Il s'agit de déterminer pour les isochrones à 7,8 et à 10 hz les températures pour obtenir un angle de phase de 27° et 45° (températures d'isoangle de phase T_{27° et T_{45°). Dans une approche directe, plus la température trouvée est grande, plus le vieillissement sera important [Ramond et al, 1990].

Pour les émissions, les COT ont été mesurés. Elles ont été caractérisées pour le Potentiel d'émission et de la Valeur Pic d'émission. Dans le cas des HAP, il s'agissait d'utiliser les résultats quantitatifs issus de l'analyse chromatographique.

Comme précisé au chapitre 2, après avoir fixé les facteurs (paramètres) de chaque essai, des réponses sont obtenues. Une relation entre les réponses et les facteurs permet de calculer les effets de chaque facteur pour chaque réponse. Nous avons les effets directs de chaque facteur sur les réponses mais aussi les effets des interactions. Ainsi, la température peut avoir un effet direct sur la réponse pénétrabilité ; la température et le module de richesse ensemble peuvent avoir une influence différente sur la réponse pénétrabilité ; et la température, le module de richesse et la volatilité du bitume ensemble peuvent avoir une influence aussi différente sur la réponse pénétrabilité.

La démarche retenue peut être résumée par le graphique suivant (figure 4-16) :

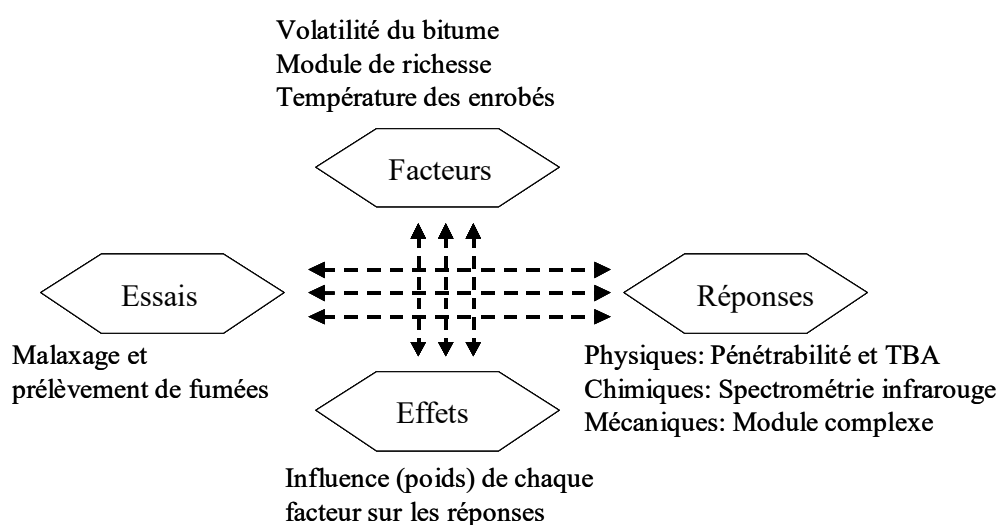


Figure 4 - 16 - Détermination des facteurs, essais et réponses à étudier

2.5 Réponses et interprétation du plan d'expérience

Le modèle mathématique [Goupy, 1988] associé au plan d'expérience utilisé (chapitre 2) rend possible une interprétation cause-effet entre les facteurs et les réponses. Les facteurs étudiés (température, module de richesse et volatilité du bitume) sont donc liés aux réponses (pénétrabilité, TBA, spectrométrie infrarouge (indices C=O et S=O), module complexe, potentiel d'émission et valeur Pic d'émission de COT) par le biais des effets. L'interprétation se résume à analyser les effets calculés, en s'appuyant sur les connaissances globales des phénomènes suivis. Les calculs réalisés pour trouver les effets sont présentés dans l'annexe 6.

2.5.1 Equations du modèle

Les résultats des effets obtenus rendent possible la définition des équations du modèle utilisé (cf. chapitre 2) qui est du type :

$$y = a + bx_1 + cx_2 + dx_3 + ex_1x_2 + fx_1x_3 + gx_2x_3 + hx_1x_2x_3 \quad (4 - 3)$$

Ces équations mathématiques issues du modèle (Tableau 4 - 9) permettent non seulement de retrouver les réponses expérimentales mais aussi de calculer « y » pour toutes valeurs de x1, x2 et x3 comprises entre – 1 et + 1. Il s'agit du domaine expérimental où :

- y représente une réponse : Pénétrabilité relative, TBA relative, liaisons chimiques C=O et S=O (relatives), module complexe, Potentiel d'émission ou Valeur de Pic d'émission ;
- x1 représente les températures comprises entre 132 °C et 182 °C, températures effectives à l'intérieur du malaxeur ;
- x2 représente le module de richesse compris entre 2,42 et 3,27 (enrobé GB et enrobé BBSG) ;
- x3 représente la volatilité du bitume comprise entre 2,1 % et 11,6 % (peu volatil et très volatil).

Tableau 4 - 9 - Equations mathématiques issus du plan d'expérience réalisé

<i>Réponses (y)</i>		<i>Equations mathématiques pour $-1 < x_1 < 1$ $-1 < x_2 < 1$ $-1 < x_3 < 1$</i>	
Pénétrabilité (relative)		$y = -15,88 - 3,38x_1 + 0,88x_2 + 3,38x_3 - 0,13x_1x_2 + 0,88x_1x_3 + 0,13x_2x_3 - 0,88x_1x_2x_3$	(4 - 4)
TBA (relative)		$y = 14,95 + 4,90x_1 - 1,65x_2 + 3,90x_3 + 0,50x_1x_2 - 0,35x_1x_3 - 1,10x_2x_3 + 1,25x_1x_2x_3$	(4 - 5)
Liaisons C=O (relatives)		$y = 1,49 + 0,84x_1 - 0,61x_2 - 1,04x_3 + 0,04x_1x_2 - 0,29x_1x_3 - 0,04x_2x_3 + 0,21x_1x_2x_3$	(4 - 6)
Liaisons S=O (relatives)		$y = 1,04 + 0,14x_1 - 0,51x_2 - 0,71x_3 + 0,09x_1x_2 + 0,09x_1x_3 + 0,14x_2x_3 - 0,06x_1x_2x_3$	(4 - 7)
Potentiel d'émission de COT		$y = 540047 + 100921x_1 - 49476x_2 + 16606x_3 + 20511x_1x_2 + 32904x_1x_3 - 26410x_2x_3 + 27206x_1x_2x_3$	(4 - 8)
Valeur Pic d'émission de COT		$y = 396 + 46x_1 - 50x_2 - 18x_3 + 14x_1x_2 + 26x_1x_3 - 11x_2x_3 + 19x_1x_2x_3$	(4 - 9)
Bitume type A	Effet sur la température pour un angle de phase de 27°	$y = 7,40 + 4,35x_1 - 0,50x_2 - 0,15x_1x_2$	(4 - 10)
	Effet sur la température pour un angle de phase de 45°	$y = 29,10 + 1,45x_1 + 0,25x_2 + 0,40x_1x_2$	(4 - 11)
Bitume type B	Effet sur la température pour un angle de phase de 27°	$y = 11,08 + 2,58x_1 - 0,18x_2 + 1,73x_1x_2$	(4 - 12)
	Effet sur la température pour un angle de phase de 45°	$y = 44,85 + 9,60x_1 - 2,10x_2 + 2,95x_1x_2$	(4 - 13)

2.5.2 Résultats sur le vieillissement des enrobés

Essais physiques

Les deux enrobés étudiés révèlent un vieillissement du bitume extrait en fonction de la température, par rapport au bitume « frais » d'origine. Les valeurs de pénétrabilité pour les malaxages fabriqués à différentes températures, sont tout à fait cohérentes avec le vieillissement du bitume (Figure 4 - 17). Les résultats de TBA suivent les mêmes tendances trouvées pour la pénétrabilité. Quelle que soit la formule (GB ou BBSG) ou le type de bitume (A ou B), le vieillissement croît avec la température. Par contre, le vieillissement à 182 °C a été plus élevé pour la formule GB en comparaison à la formule BBSG. Cette différence a été attribuée au module de richesse de la GB, beaucoup plus faible que celui du BBSG, donc à un film de bitume sur les granulats beaucoup plus fin aussi.

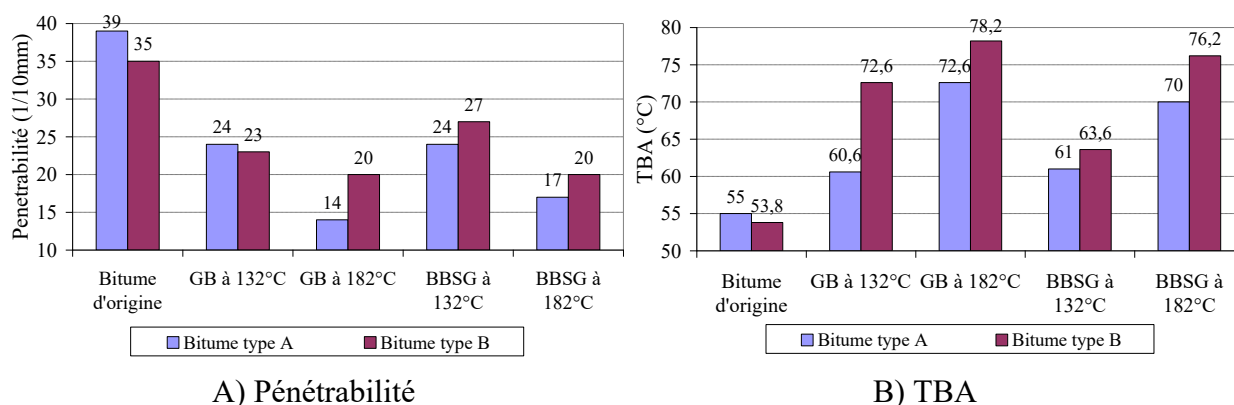


Figure 4 - 17 – Pénétrabilité et TBA selon les formules et les températures fabriquées

Considérations sur les effets calculés (Tableau 4 - 10) d'après le modèle (cf chapitre 2), obtenus en fonction des valeurs relatives des mesures trouvées :

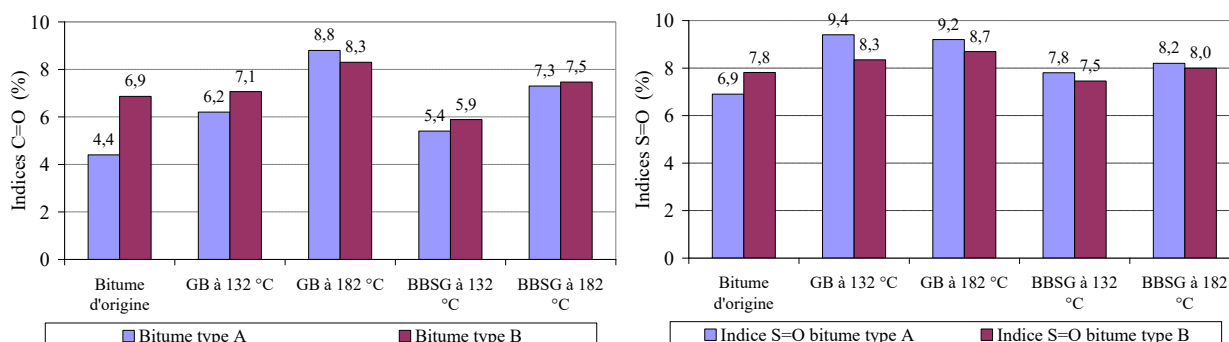
- **Pénétrabilité** : La valeur moyenne de -15,88 (1/10 mm) indique une diminution globale de la pénétrabilité par rapport au bitume d'origine (frais). Les facteurs température et volatilité sont les plus importants car ils ont un effet supérieur à trois fois le facteur module de richesse. Le signal négatif sur l'effet du facteur température indique une baisse de la pénétrabilité lorsque la température augmente. Le signal positif sur l'effet du facteur volatilité indique qu'un bitume plus volatil vieillit moins (signal positif sur l'effet). Le facteur module de richesse n'a pas beaucoup d'importance, toutefois un enrobé plus riche en bitume vieillit moins. Il y en a une faible interaction entre les facteurs étudiés sur les valeurs de la pénétrabilité ;
- **TBA** : La valeur moyenne de + 14,95 (°C) indique une augmentation globale de la TBA par rapport au bitume d'origine (frais). Selon les résultats du modèle mathématique, les effets sur la TBA suivent les mêmes tendances que celles trouvées sur la pénétrabilité, considérant l'influence de la température et du module de richesse. L'influence de la volatilité du bitume, en revanche, est positive et indique qu'un bitume plus volatil vieillit plus (signal positif sur l'effet), contrairement aux résultats obtenus par la pénétrabilité. Ce comportement a posé une question d'interprétation du plan d'expérience. En effet, le facteur 3 (volatilité du bitume) n'est pas un facteur indépendant et même si l'on ne voulait changer que la volatilité du bitume, d'autres facteurs ont fait leur apparition, influençant les effets calculés du plan d'expérience. Comme hypothèse, il s'agit de la nature du bitume, de sa composition chimique et du type de distillation qu'il a subi.

Tableau 4 - 10 – Résultats des effets calculés sur la pénétrabilité et la TBA

		Effet sur la pénétrabilité	Effet sur la TBA
Valeur moyenne du facteur	a	- 15,88	14,95
Influence de la température (facteur 1)	b	- 3,38	4,90
Influence du module de richesse (facteur2)	c	0,88	- 1,65
Influence de la volatilité (facteur 3)	d	3,38	3,90
Influence de l'interaction (facteurs 12)	e	- 0,13	0,50
Influence de l'interaction (facteurs 13)	f	0,88	- 0,35
Influence de l'interaction (facteurs 23)	g	0,13	- 1,10
Influence de l'interaction (facteurs 123)	h	- 0,88	1,25

Essais chimiques

Pour la spectrométrie infra-rouge, les valeurs des indices d'oxydation (C=O) sont aussi cohérentes avec le vieillissement du bitume. On retrouve la même tendance que celle fournie par la pénétrabilité ou la TBA, c'est-à-dire une croissance plus élevée pour le niveau de température 182 °C (Figure 4 - 18). Par contre, pour l'indice de sulfoxyde (S=O), il n'y a pas de tendance importante, sauf par rapport au bitume d'origine.



A) Liaison C=O

B) Liaison S=O

Figure 4 - 18 – Résultats de la Spectrométrie Infrarouge – Indices d'oxydation (C=O) et sulfoxyde (S=O) selon les formules et les températures fabriquées

Considérations sur les effets calculés d'après le modèle (cf. chapitre 2):

Le modèle mathématique décrit dans le plan d'expérience appliqué à la pénétrabilité, à la TBA et aux indices infrarouges (C=O et S=O) nous amène aux effets de chacun des facteurs et leurs interactions (Tableau 4 - 11). Compte tenu du fait que le bitume a changé, nous avons pris la précaution de prendre en compte les valeurs relatives par rapport au bitume frais (d'origine) comme réponses lors du calcul des effets.

Indice C=O: La valeur moyenne de + 1,49 (%) indique une augmentation globale des liaisons C=O par rapport le bitume d'origine (frais). Selon les résultats du modèle mathématique, les trois facteurs étudiés sont du même ordre de grandeur où l'effet de la volatilité se détache. Dans ce cas, un enrobé fabriqué avec un bitume plus volatil produit moins de liaisons C=O donc vieillit moins. Il y a un faible interaction entre les facteurs sur les effets d'indice C=O. Ces résultats cependant peuvent être masqués par les effets secondaires de la volatilité du bitume.

Indice S=O: La valeur moyenne de + 1,04 (%) indique une augmentation globale des liaisons S=O par rapport le bitume d'origine (frais). Les facteurs module de richesse et volatilité sont les plus importants. Une augmentation du module de richesse ou de la volatilité du bitume produit moins de liaisons S=O. Le facteur température n'a pas d'influence significative. Il y a une faible interaction entre les facteurs sur les effets d'indice S=O.

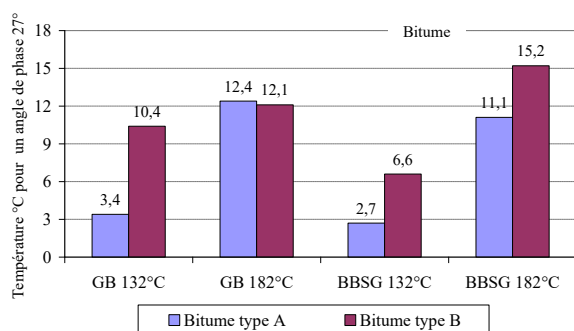
Tableau 4 - 11 – Résultats des effets sur les indices infrarouges

		Effet sur l'indice C=O	Effet sur l'indice S=O
Valeur moyenne du facteur	a	1,49	1,04
Influence de la température (facteur 1)	b	0,84	0,14
Influence du module de richesse (facteur2)	c	- 0,61	- 0,51
Influence de la volatilité (facteur 3)	d	-1,04	- 0,71
Influence de l'interaction (facteurs 12)	e	0,04	0,09
Influence de l'interaction (facteurs 13)	f	- 0,29	0,09
Influence de l'interaction (facteurs 23)	g	- 0,04	0,14
Influence de l'interaction (facteurs 123)	h	0,21	- 0,06

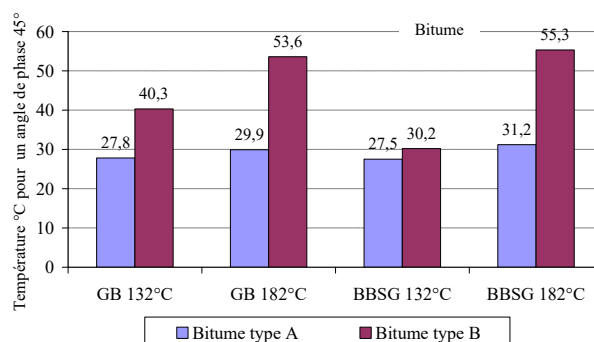
Essais mécaniques

Module complexe du bitume

Les bitumes extraits ont été soumis à l'essai de module complexe. Les températures d'iso angle de phase obtenues pour les deux niveaux de service choisis comme réponses sont présentées dans la Figure 4-19. Les résultats montrent que dans le cas des basses températures, les températures d'iso angle de phase mesurées, représentatives du vieillissement du bitume, suivent les températures de fabrication de l'enrobé : plus la température est élevée, plus le bitume a subi de vieillissement. En revanche, dans le cas des hautes températures et avec du bitume type A (peu volatil), le vieillissement est faible, quelle que soit la température de fabrication de l'enrobé.



A) Angle 27°



B) Angle 45°

Figure 4 - 19 – Températures d'isoangle de phase déterminées à partir du module complexe : valeur pour de basses et hautes températures de service

Compte tenu du changement du bitume, nous avons pris la précaution de ne pas mélanger les bitumes d'origines différentes. Il a donc fallu diviser le plan d'expérience en deux parties séparées, selon le type de bitume (A ou B).

Considérations sur les effets calculés d'après le modèle (cf. chapitre 2): Les effets calculés sont présentés dans le Tableau 4 - 12.

Pour le bitume de type A: La température se détache comme le facteur le plus important, quel que soit l'angle de phase (45 ou 27°). Plus la température est élevée, plus le vieillissement du bitume est important. Le module de richesse devient plus important pour l'angle de phase de 27°, cependant avec un signe négatif. Plus le module de richesse est grand, moins le bitume vieillit, ceci est cohérent avec les résultats obtenus avec les autres facteurs.

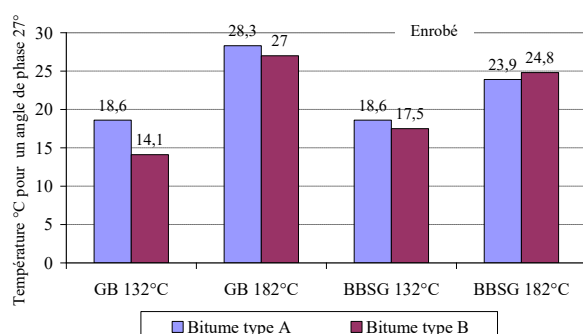
Pour le bitume de type B : Là encore la température se détache comme le facteur le plus important, quel que soit l'angle de phase (45 ou 27°), mais de façon plus remarquable pour l'angle de phase de 45°. Plus la température est élevée, plus de vieillissement du bitume est important. Le module de richesse devient aussi important pour l'angle à 45°, toujours avec un signe négatif. Plus le module de richesse est élevé, moins le bitume vieillit. L'interaction entre les facteurs est aussi importante positivement : les deux facteurs ensemble engendrent plus de vieillissement du bitume.

Tableau 4 - 12 - Resultats des effets calculés pour le module complexe des bitumes type A et B

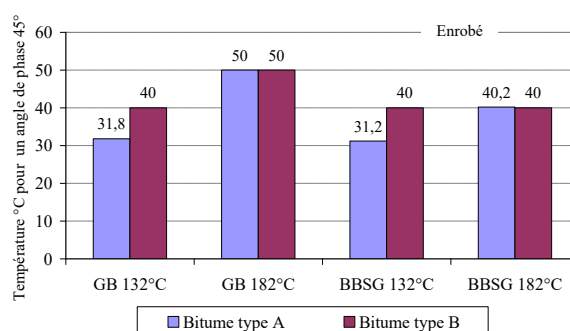
		Effet sur la température			
		Bitume type A		Bitume type B	
		angle de phase de 45°	angle de phase de 27°	angle de phase de 45°	angle de phase de 27°
Valeur moyenne du facteur	a	29,10	7,40	44,85	11,08
Influence de la température (facteur 1)	b	1,45	4,35	9,60	2,58
Influence du module de richesse (facteur2)	c	0,25	- 0,50	- 2,10	- 0,18
Influence de l'interaction (facteurs 12)	d	0,40	- 0,15	2,95	1,73

Module complexe des enrobés :

Comme pour les essais de module complexe du bitume, nous avons pris la précaution de ne pas mélanger les enrobés fabriqués avec des bitumes d'origines différentes. Il a donc fallu diviser le plan d'expérience en deux parties séparées, selon le type de bitume (A ou B) (Figure 4 - 20).



A) Angle 27°



B) Angle 45°

Figure 4 - 20 – Températures d'iso angle de phase déterminées à partir du module complexe : valeur pour des températures de service basses et hautes

Considérations sur les effets calculés d'après le modèle (cf. chapitre 2) : Les effets calculés sont présentés dans le Tableau 4 - 13.

Pour le bitume type A : La température se détache comme le facteur le plus important, quel que soit l'angle de phase (45 ou 27°). Plus la température est élevée, plus le vieillissement du bitume est important.

Pour le bitume type B : Là encore la température se détache comme le facteur le plus important, quel que soit l'angle de phase (45 ou 27°), mais de façon plus remarquable pour l'angle de phase de 45°. Plus la température est élevée, plus de vieillissement du bitume est important.

Tableau 4 - 13 - Résultats des effets calculés pour le module complexe des enrobés fabriqués avec des bitumes type A et B

		<i>Effet sur la température</i>			
		<i>Bitume type A</i>		<i>Bitume type B</i>	
		<i>angle de phase de 45°</i>	<i>angle de phase de 27°</i>	<i>angle de phase de 45°</i>	<i>angle de phase de 27°</i>
Valeur moyenne du facteur	a	38,30	22,35	42,5	20,85
Influence de la température (facteur 1)	b	6,80	3,75	2,5	5,05
Influence du module de richesse (facteur2)	c	- 2,30	- 1,10	- 2,5	0,30
Influence de l'interaction (facteurs 12)	d	- 2,60	- 1,10	- 2,5	- 1,40

2.5.3 Résultat sur les émissions de l'enrobé

Conformément au plan d'expérience adopté, huit malaxages ont été réalisés (enrobés GB et BBSG à 132 °C, 152 °C et 182 °C), au cours desquels les mesures en continu des émissions de COT ont été réalisées pendant la fabrication de l'enrobé bitumineux,. Ces malaxages ont été répétés pour permettre de s'affranchir des dispersions obtenues. L'acquisition des mesures enregistrées sur l'analyseur pendant chaque manipulation (environ 207 valeurs en 30 minutes) a permis la reconstitution et la superposition des différentes courbes d'émission de COT, comme le montrent les graphiques ci-après :

Grave bitume (GB) 132 °C : Nous pouvons constater que pour une GB fabriquée à 132 °C, le Potentiel d'émission est légèrement supérieur lorsqu'on utilise le bitume de type B (Figure 4 – 21). Par contre, la valeur Pic d'émission est supérieure lorsqu'on utilise le bitume de type A (Figure 4 – 22). Les valeurs des Pics sont décalées dans le temps, le Pic pour le bitume type B étant en retard par rapport à celui du bitume de type A.

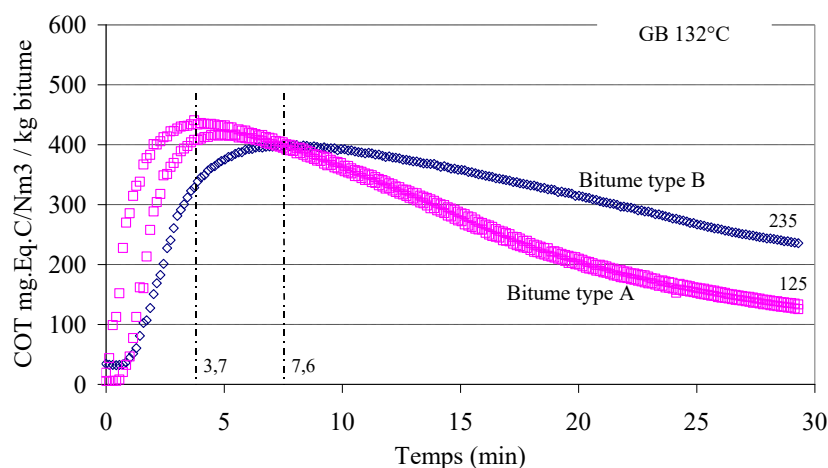
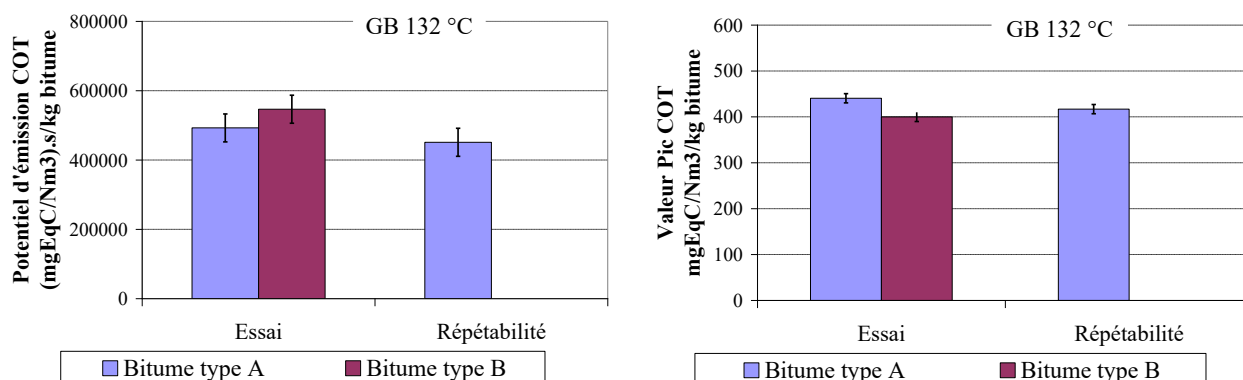


Figure 4 - 21 – Évolution des émissions de COT issues de la GB fabriquée à 132 °C au cours du temps lors du malaxage en laboratoire



A) Potentiel d'émission

B) Valeur du Pic

Figure 4 - 22 – Potentiel d'émission et valeur du Pic de COT de la GB fabriquée à 132 °C

Grave bitume à 182 °C : Nous pouvons constater que pour une GB fabriquée à 182 °C le Potentiel d'émission est supérieur pour le bitume type B (Figure 4 - 23), comme c'était le cas pour l'essai à 132 °C. Par contre, les valeurs des Pic d'émission sont au même niveau, quel que soit le bitume utilisé (Figure 4 - 24); Elles sont décalées dans le temps, le Pic pour un bitume de type B étant en retard en relation à celui du bitume de type A.

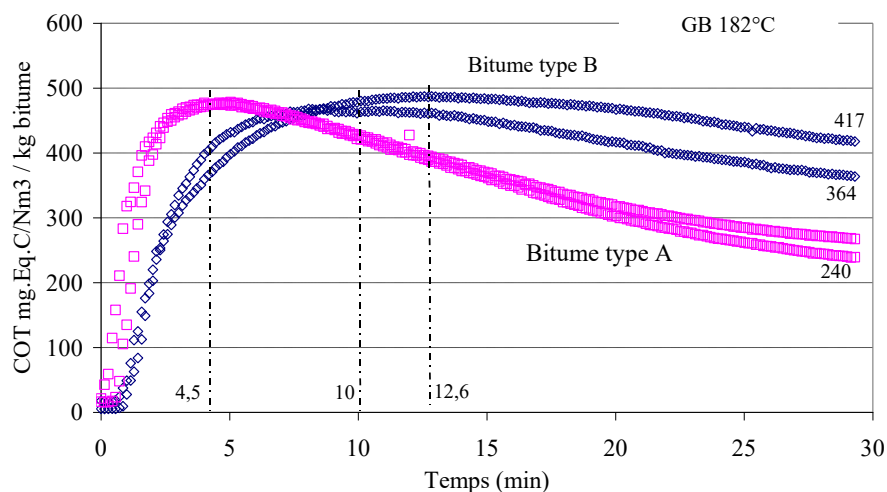
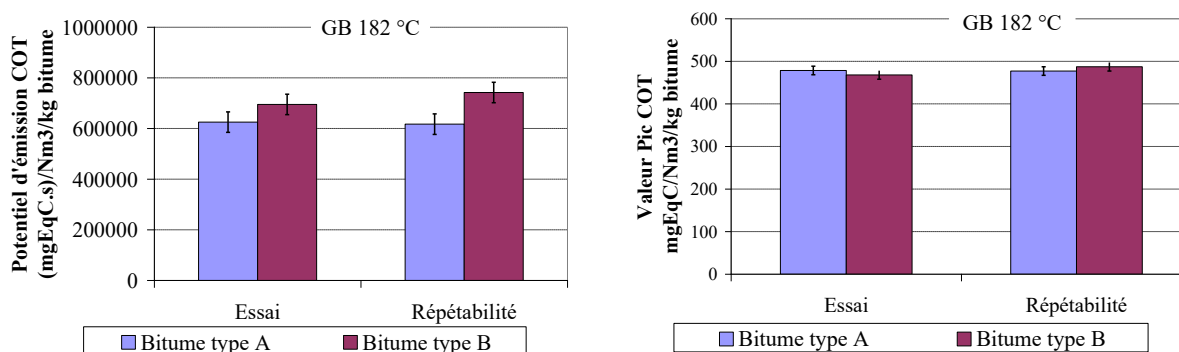


Figure 4 - 23 – Évolution des émissions de COT issues de la GB fabriquée à 182 °C au cours du temps lors du malaxage en laboratoire



A) Potentiel d'émission

B) Valeur de Pic

Figure 4 - 24 – Potentiel d'émission et valeur du Pic de COT de la GB fabriqué à 182 °C

Béton Bitumineux Semi-Grenu (BBSG) à 132 °C : Nous pouvons constater que pour un BBSG fabriqué à 132 °C le Potentiel et la valeur du Pic d'émission sont supérieurs pour le bitume type A. Cette fois ci, les valeurs des Pics d'émission ne sont pas décalées dans le temps.

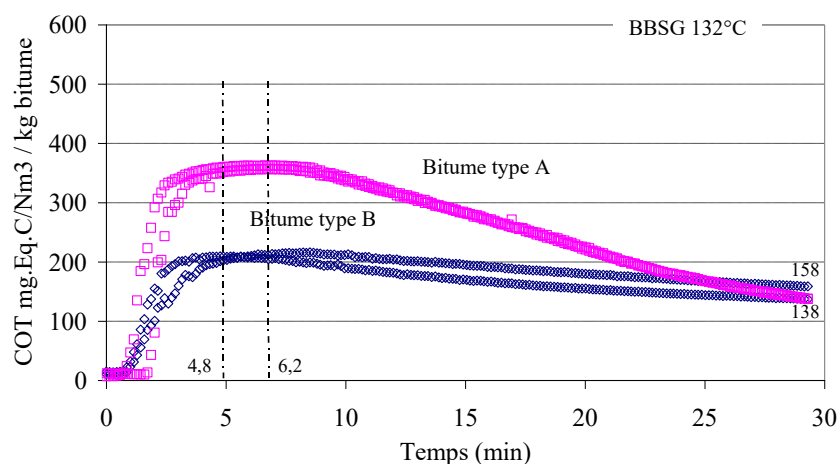
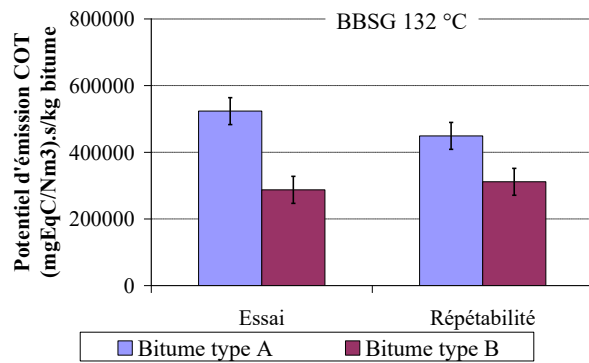
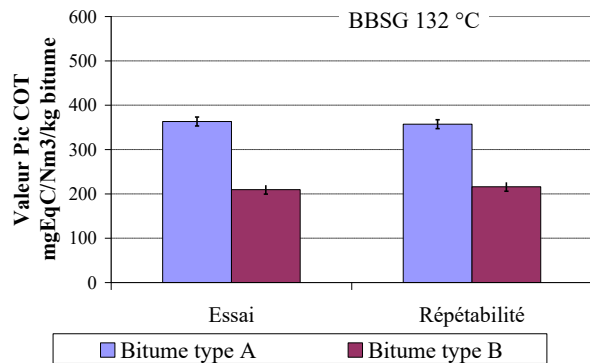


Figure 4 - 25 – Évolution des émissions de COT issues du BBSG fabriquée à 132 °C au cours du temps lors du malaxage en laboratoire



A) Potentiel d'émission



B) Valeur de Pic

Figure 4 - 26 – Potentiel d'émission et valeur du Pic de COT du BBSG fabriquée à 132 °C

Béton Bitumineux Semi-Grenu (BBSG) à 182 °C : Nous pouvons constater que, pour un BBSG fabriqué à 182 °C, le Potentiel et la valeur du Pic d'émission sont légèrement supérieurs pour le bitume type B (Figure 4 - 27). Les valeurs Pics sont décalées dans le temps où la valeur Pic pour un bitume type B est en retard en relation au bitume type A (Figure 4 - 28).

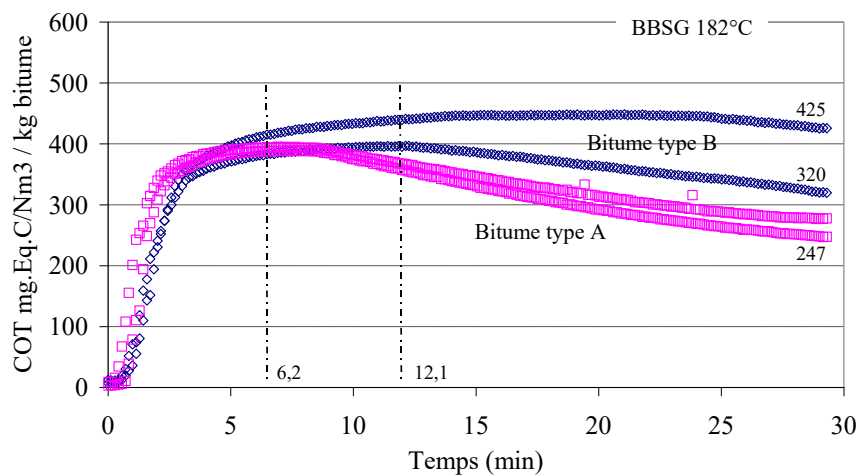
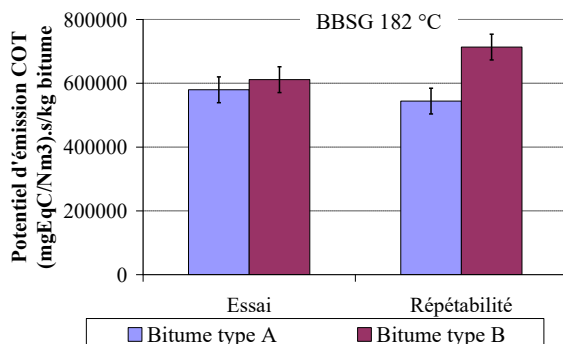
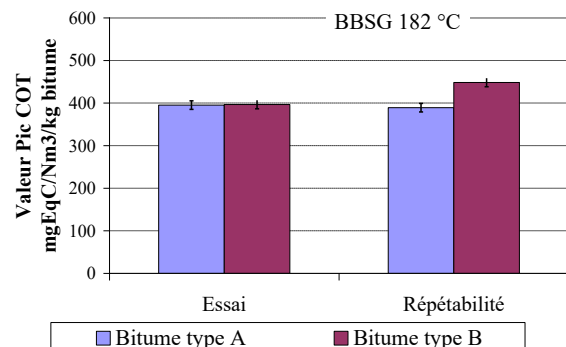


Figure 4 - 27 – Évolution des émissions de COT issues du BBSG fabriquée à 182 °C au cours du temps lors du malaxage en laboratoire



A) Potentiel d'émission



B) Valeur de Pic

Figure 4 - 28 – Potentiel d'émission et valeur Pic de COT du BBSG fabriquée à 182 °C

Les résultats des Composés Organiques Totaux (COT), d'après l'étude graphique des courbes superposées, montrent que le Potentiel d'émission de COT varie en fonction de la température du mélange, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume. Il semblerait que la température ait une influence plus importante que le module de richesse sur les émissions de COT. De plus, la formule Grave Bitume émet davantage en comparaison de la formule de Béton Bitumineux.

Considérations sur les effets calculés d'après le modèle mathématique du plan d'expérience :

Potentiel d'émission: la température est le facteur le plus important. Plus la température est importante, plus il y a d'émission. Par contre, le module de richesse a un comportement contraire : plus l'enrobé est riche en bitume, moins il engendre d'émission. La volatilité du bitume n'est pas un facteur significatif pour les émissions (Potentiel d'émission). Il n'y a pas d'interaction significative entre les facteurs.

Valeur du Pic d'émission: d'après les résultats, c'est le module de richesse qui devient le facteur le plus important suivi par la température. Plus le module de richesse est élevé, moins la Valeur de Pic d'émission est élevée. La volatilité du bitume n'est pas un facteur significatif vis-à-vis de la Valeur Pic d'émission, cependant une augmentation de la volatilité cause une baisse de la Valeur Pic. Comme pour le Potentiel d'émission, il n'y a pas d'interaction significative entre les facteurs.

Le modèle appliqué au Potentiel d'émission et à la Valeur Pic d'émission nous amène aux effets de chacun des facteurs et leurs interactions (Tableau 4 - 14) :

Tableau 4 - 14 - Résultats des effets calculés sur le Potentiel et la Valeur Pic d'émission

	<i>Effet sur le Potentiel d'émission (calculé)</i>	<i>Effet sur la Valeur Pic d'émission (Vp)</i>
Valeur moyenne du facteur	540 047	396
Influence de la température (facteur 1)	100 921	46
Influence du module de richesse (facteur 2)	- 49 476	-50
Influence de la volatilité (facteur 3)	16 606	-18
Influence de l'interaction (facteurs 12)	20 511	14
Influence de l'interaction (facteurs 13)	32 904	26
Influence de l'interaction (facteurs 23)	- 26 410	-11
Influence de l'interaction (facteurs 123)	27 206	19

De la même façon que pour la pénétrabilité et la TBA, la faible importance de la volatilité du bitume sur les émissions de COT remet en cause la légitimité de ce facteur. Par définition de la distillation simulée, la volatilité d'un bitume est définie par un pourcentage de perte de masse, à 450 °C. Sur un analyseur de COT, à l'aide d'un FID, on mesure un nombre total de carbones émis. D'une part, si les deux bitumes de volatilités différentes ne libèrent pas des fumées de même composition et d'autre part, s'il y a des ajouts dans le bitume plus volatil, il devient difficile de les comparer et de généraliser l'effet de la volatilité sur les émissions totales de COT.

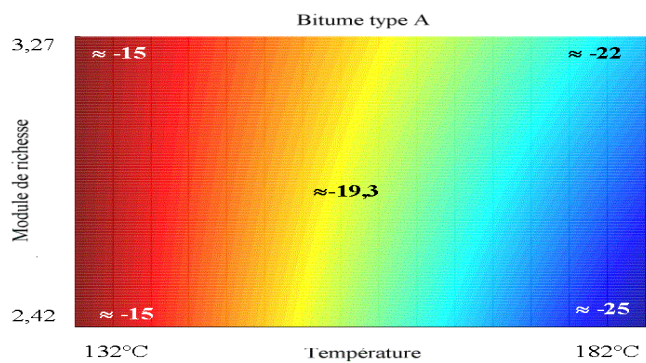
2.5.4 Visualisation des effets des facteurs

Pour visualiser les effets de chaque facteur vis-à-vis les réponses obtenues, en s'appuyant sur les équations développées, il est donc possible de tracer des courbes de même

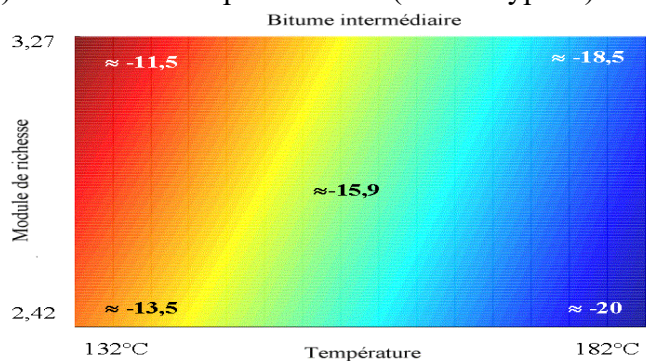
perte de pénétration, pour représenter le vieillissement, ou de même potentiel d'émission pour représenter les émissions engendrées (Figure 4 - 29 et Figure 4 - 30). Pour les interpréter, il prend en compte le fait que :

- Les courbes (couleurs) sont représentatives de la valeur trouvée qui change du bleu (plus faible) jusqu'au rouge (plus fort) ;
- L'inclinaison des courbes (couleurs) indique que la température et le module de richesse ont une influence sur la réponse analysée ;
- Une inclinaison à 45° indique que les facteurs ont un même poids d'importance ;

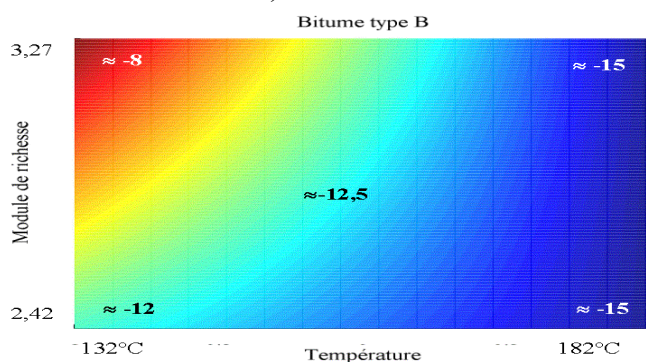
La Figure 4-29 présente l'évolution de la pénétrabilité (représentative du vieillissement du bitume) en fonction de la température, du module de richesse et de la volatilité du bitume.



A) Évolution de la pénétrabilité (bitume type A)



B) Évolution de la pénétrabilité (bitume avec une volatilité intermédiaire)



C) Évolution de la pénétrabilité (bitume type B)

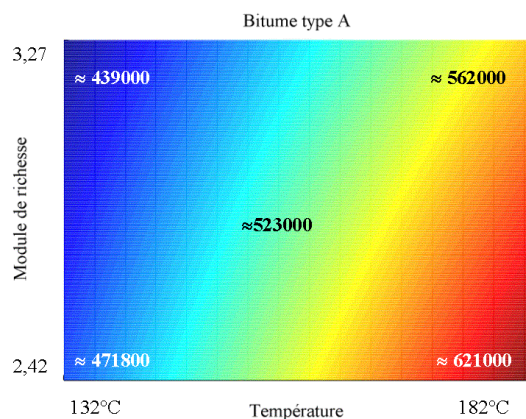
Figure 4 - 29 - Évolution de la pénétrabilité en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

Pour un bitume peu volatil (type A), la Figure 4 - 29 A indique qu'à faibles températures, le module de richesse n'a pas d'influence sur la perte de pénétrabilité (vieillissement du bitume). Le vieillissement est identique quel que soit le module de richesse. Quand la température augmente, le module de richesse devient plus important. Dans ce cas, plus le module est élevé, moins le bitume vieillit. Les quatre valeurs extrêmes indiquées ont été mesurées lors de la réalisation des essais.

Pour un bitume de volatilité intermédiaire (Figure 4 - 29 B), avec l'équation mathématique du plan d'expérience on peut estimer les valeurs extrêmes et montrer l'influence des facteurs.

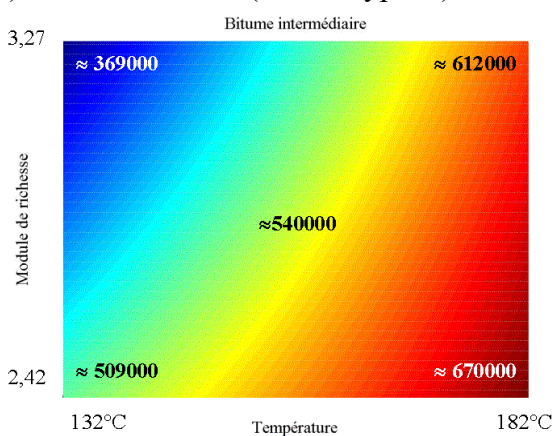
Pour un bitume très volatil (type B), la Figure 4 - 29 C indique qu'à faibles températures, le module de richesse a une influence sur la perte de pénétrabilité (vieillissement du bitume). Plus le module est élevé, moins le bitume vieillit. Quand la température augmente, le module de richesse n'a plus d'importance. Les quatre valeurs extrêmes indiquées ont été mesurées.

La Figure 4-30 présente l'évolution du potentiel d'émission de COT en fonction de la température, du module de richesse et de la volatilité du bitume et l'annexe 7 les évolutions pour toutes les autres réponses étudiées.



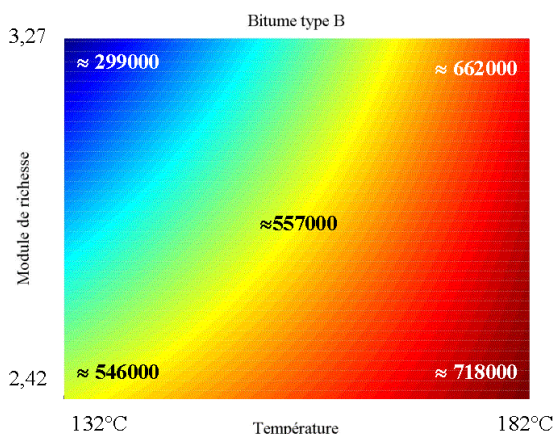
A) Évolution du PE (bitume type A)

Pour un bitume peu volatil (type A), la Figure 4 - 30 A indique qu'à faibles températures, le module de richesse a peu d'influence sur les émissions engendrées (potentiel d'émission). A températures plus élevées, le module de richesse devient plus important. Dans ce cas, plus le module est élevé, moins l'enrobé émet.



B) Évolution du PE (bitume avec une volatilité intermédiaire)

Pour un bitume de volatilité intermédiaire (Figure 4 - 30 B), avec l'équation mathématique du plan d'expérience on peut estimer les valeurs extrêmes et montrer l'influence des facteurs.



C) Évolution du PE (bitume type B)

Pour un bitume très volatil (type B), la Figure 4 - 30 C indique que les facteurs température et module de richesse ont une influence sur les émissions engendrées (potentiel d'émission). Dans ce cas, plus la température est élevée, plus l'enrobé émet; à contrario, plus le module est élevé, moins l'enrobé émet.

Figure 4 - 30 - Évolution du Potentiel d'émission (mgEqC/Nm^3).s/kg bitume en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

2.6 Étude de la cinétique d'émission en relation avec le vieillissement de l'enrobé

2.6.1 Essais d'épuisement du mélange

Une fabrication d'enrobé béton bitumineux 0/14 (BBSG) à 152 °C a été réalisée en dehors du plan d'expérience. Il s'agit d'une fabrication de longue durée (malaxage pendant 2h 17min. L'objectif était de vérifier le devenir des émissions au bout d'un temps relativement important, et de savoir si elles diminuaient continuellement jusqu'à atteindre une valeur nulle ou atteignaient une valeur résiduelle (Figure 4 –31). A la fin de l'essai, la teneur en COT ne s'annule jamais, mais atteint un plateau à une valeur seuil, de l'ordre de $V_r \approx 85 \text{ mgEqC/Nm}^3$ et son allure devient asymptotique.

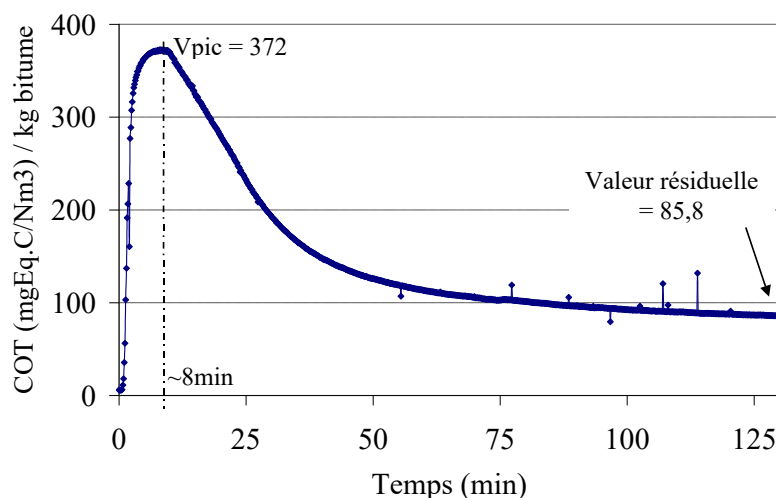


Figure 4 - 31 – Émission de COT d'un BBSG fabriqué à 152 °C pendant 2h 17min

2.6.2 Essais séquentiels de mesure des HAP

Tous les essais concernant le piégeage des HAP, le traitement et la préparation des échantillons pour l'analyse chromatographique ont été réalisées suivant le protocole décrit en annexe 3.3. La mesure des HAP est indispensable pour compléter les données obtenues. Cependant les premiers prélèvements relatifs au plan d'expérience ont été considérés comme non exploitables du fait de la saturation des filtres et des résines utilisés. Il a donc fallu changer la méthode de prélèvement des HAP.

Pour résoudre le problème de saturation des filtres et résines du système de prélèvement, deux solutions ont été envisagées : baisser le débit d'échantillonnage ou diminuer le temps de prélèvement. La première solution n'a pas été retenue parce que le débit de 15 L/min semble le mieux approprié en fonction des caractéristiques du matériel de pompage disponible. La deuxième solution a donc été retenue et quatre prélèvements séquentiels d'environ 3 min chacun ont été réalisés au cours du malaxage de 30 min. Un essai complémentaire au plan d'expérience a donc été réalisé. Il s'agit d'un enrobé GB fabriqué à 182 °C avec le bitume de type A dont les résultats sont synthétisés sur la Figure 4 – 32.

D'après les résultats de chromatographie gazeuse réalisée par le fournisseur du bitume, à l'aide d'un détecteur fluorimétrique sur le MSB (annexe 3.3), on peut constater que :

- Au niveau du protocole de prélèvement, notamment la diminution du temps de prélèvement jusqu'à 3 min maximum, a été correcte et les filtres et les résines n'ont pas été saturés ;
- Comme pour les fumées du bitume, aucun composé léger n'est détecté dans le filtre. Les composés majoritaires vont de C16 à C22. Les HAP sont à l'état de traces, notamment de type anthracène, phénanthrène et dibenzothiophène ;
- Pour plus d'informations, il faudrait refaire l'essai en changeant les temps de début et de fin de prélèvements, pour compléter les points déjà tracés. Il est possible qu'un Pic d'émission existe comme pour les émissions de COT.

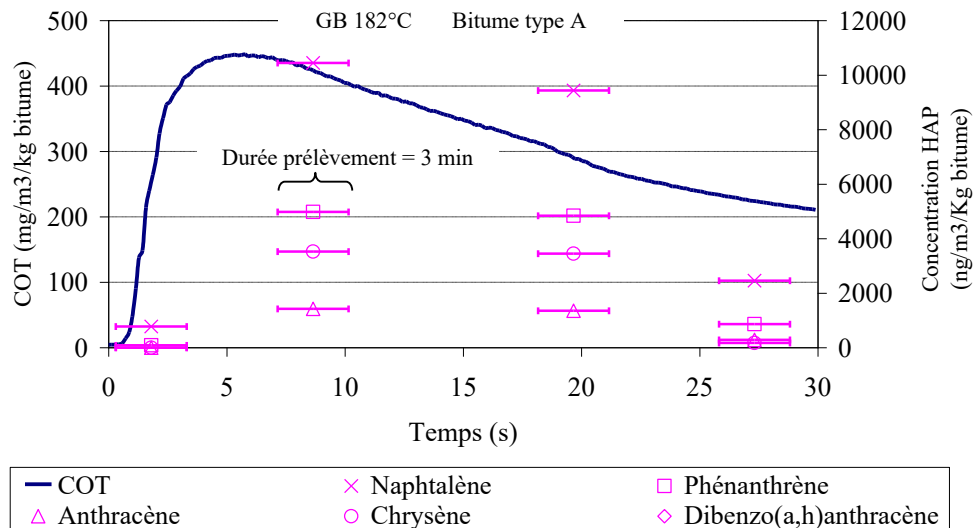


Figure 4 - 32 – Évolution des émissions de COT et des HAP lourds piégés sur le filtre lors du malaxage en laboratoire d'après [Viranaiken, 2006]

2.6.3 Cinétique de vieillissement en relation avec les émissions

Une fabrication d'un enrobé BBSG à 160 °C, avec du bitume type A, a été réalisée dans laquelle des prélèvements d'enrobés ont été réalisés pendant l'essai. L'objectif de l'essai était de relier les émissions de COT, notamment le potentiel d'émission, et le vieillissement du bitume au cours du temps d'une fabrication en laboratoire. Après l'extraction du bitume, des essais de pénétrabilité et température bille-anneau (TBA) ont été réalisés. Des arrêts, de moins de 30 secondes chacun, ont été nécessaires pour permettre de réaliser les prélèvements d'environ 3 kg d'enrobé foisonné à chaque fois (Figure 4 - 33).

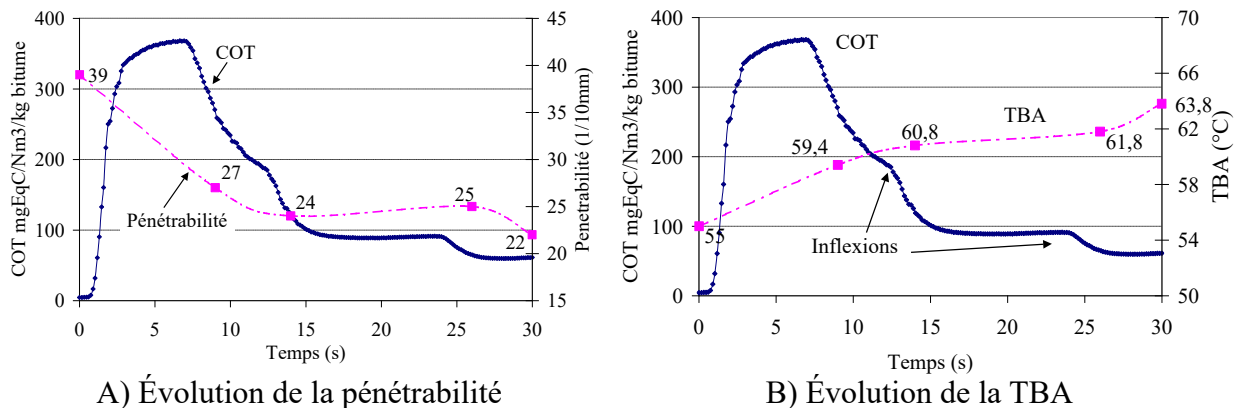


Figure 4 - 33 – Évolution de la pénétrabilité et de la température bille-anneau (TBA) en fonction des émissions de COT au cours d'un malaxage

Les points d'inflexion de la courbe de COT au moment des prélèvements sont dus principalement aux arrêts de malaxage, mais sont aussi dus à l'enlèvement d'environ 3 kg d'enrobé à chaque prélèvement. En ce qui concerne les émissions de COT, lors du premier prélèvement réalisé après 9 min de malaxage, on atteint une valeur maximale, Pic d'émission. A ce stade, on trouve une diminution de 50 % de la pénétrabilité (ou d'augmentation de la TBA) pour un Potentiel d'émission de COT faible (environ 15 %). La valeur Pic d'émission de COT donne une indication du moment maximum de vieillissement subi par le bitume.

Ces résultats vont dans le sens des études menées par Petersen [Petersen, 1989], où le mécanisme d'oxydation peut freiner les émissions organiques du bitume. La forme de cloche des émissions des enrobés trouvée et la valeur de pic peut représenter le vieillissement du bitume, qui se produit en deux étapes successives : il s'agit des émissions volatiles (COT) qui se produisent, indicatif d'un vieillissement (jusqu'au pic) ; Ensuite c'est l'oxydation qui devient prépondérante (partie descendante de la courbe).

2.7 Bilan sur les émissions des enrobés

Par le biais du générateur de fumées d'enrobés bitumineux développé, nous avons étudié les émissions engendrées lors du malaxage en laboratoire et le vieillissement des enrobés fabriqués. L'analyse finale permet d'estimer l'influence des paramètres étudiés (température, module de richesse et volatilité du bitume) sur les émissions d'un enrobé bitumineux et de lier le vieillissement du bitume aux émissions organiques engendrées lors d'un malaxage. D'après les résultats obtenus :

- Le protocole de fabrication et prélèvement gazeux développé permet de fabriquer des enrobés dont les émissions (COT) et le vieillissement de l'enrobé sont répétables ;
- La courbe d'émission de COT en forme de « cloche » a des caractéristiques variables en fonction des différents paramètres de production, tels que la température, le module de richesse de l'enrobé (formule) et le type de bitume (peu ou très volatil) ;
- Parmi ces trois facteurs étudiés, la volatilité ne peut pas être utilisée comme un paramètre simple puisqu'elle est toujours liée à d'autres facteurs comme l'origine du bitume et le processus de distillation utilisé ;
- De façon générale, la température se détache comme le facteur le plus important vis-à-vis les réponses analysées. Plus la température est importante, plus le vieillissement et les émissions sont importants ;
- Le module de richesse de l'enrobé se détache comme le deuxième facteur important vis-à-vis les émissions. Dans ce cas, plus ce module est élevé, plus le vieillissement de l'enrobé est faible ;
- Le générateur de fumées développé permet de calculer l'indicateur d'émission proposé au chapitre 2, en termes d'émission de différentes formules d'enrobés fabriqués, caractérisée par le potentiel d'émission couplé à la valeur du pic ;
- Par contre, on ne peut pour le moment, relier cinétiquement ces émissions, à celles de l'enrobage en centrale et de la mise en œuvre.

3 Étude expérimentale sur les émissions du bitume

Après avoir étudié les émissions de l'enrobé bitumineux, nous nous sommes intéressés aux émissions issues du bitume seul, parce qu'il est la source des émissions des enrobés. Dans un premier temps, nous avons donc utilisé des générateurs ou banc d'essais de fumées de bitume existants. L'évaluation de ces matériels nous a ensuite conduit à développer un banc d'essai adapté à nos besoins pour étudier les paramètres influents. Il s'agit de l'influence de l'agitation du bitume sur ces émissions car elle est susceptible d'avoir une influence sur les émissions de l'enrobé et, en conséquence, les émissions d'un TSE lors d'un changement de cadence de production. Le tableau 4 - 15 rappelle les objectifs des essais réalisés dans cette partie.

Tableau 4 - 15 – Objectifs des essais sur le bitume réalisés au laboratoire

<i>Objectifs</i>	<i>Matériaux utilisés</i>
Banc d'essai existant pour étudier les fumées du bitume: - Étudier l'influence de la température et de l'agitation sur les émissions du bitume ;	Bitume seul
Banc d'essai développé pour étudier les fumées du bitume: - Étudier l'influence de la température et de l'agitation sur les émissions du bitume ; - Établir une comparaison entre les fumées de bitume et de l'enrobé bitumineux	Bitume seul

3.1 Utilisation d'un banc d'essai existant

Le générateur de fumées de bitume développé par Brandt [Brandt et Groot, 1999] est dédié aux études sur les HAP engendrés lors du chauffage du bitume. En s'appuyant sur ces études, notamment sur son banc d'essai (générateur de fumées), nous avons ajouté en parallèle l'analyseur de COT. L'objectif était de mesurer les semi-volatils en fonction des paramètres tels que la température et l'agitation du bitume pour les comparer avec les mesures sur les enrobés bitumineux issus du malaxeur LCPC.

3.1.1 Appareillage

Le banc d'essai comprend un récipient en verre de 700 ml avec fond arrondi positionné sur un chauffe-ballon (Figure 4 - 34). Les fumées sont générées en chauffant 200 g de bitume à une température prédéfinie et contrôlée. Le bitume est agité à une vitesse de rotation variable, normalement 400 tours/min pour les prélèvements de HAP. L'analyse des COT sont réalisés en continu, également avec l'analyseur portatif FID (annexe 3.2).

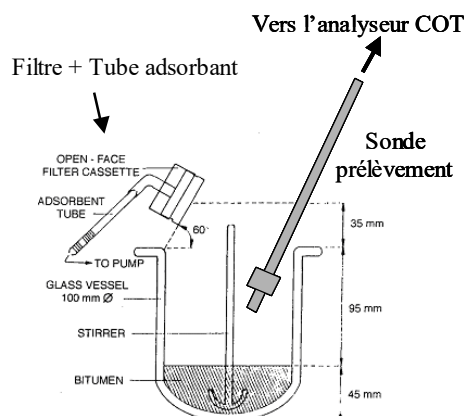


Figure 4 - 34 – Schéma du banc d'essai de Brandt équipé de l'analyseur FID (cf. tableau 1 - 14)

3.1.2 Résultats sur les émissions du bitume

Le bitume utilisé pour cette campagne est le bitume 35/50 type A (cf §I.1) utilisé pour la campagne d'essai sur la centrale de Blois en conditions dédiées et pour les mesures d'émissions des enrobés en laboratoire. Le générateur de fumées du bitume (banc d'essai) a été utilisé pour chauffer un échantillon de bitume de 200 g pendant 210 minutes. Pour cet essai, nous avons fixé une température de 160 °C et nous avons choisi de faire évoluer l'agitation (Tableau 4 - 16) :

Tableau 4 - 16 – Variation de l'agitation du bitume (tours/min) pendant le mesurage de COT

Période d'essai (min)	0 à 116	117 à 127	128 à 162	163 à 182	183 à 204	205 à 210
Agitation (tours/min)	42	64	101	149	43	152

Les résultats de mesures en continu des COT émis lors de l'essai sont présentés dans la Figure 4 - 35.

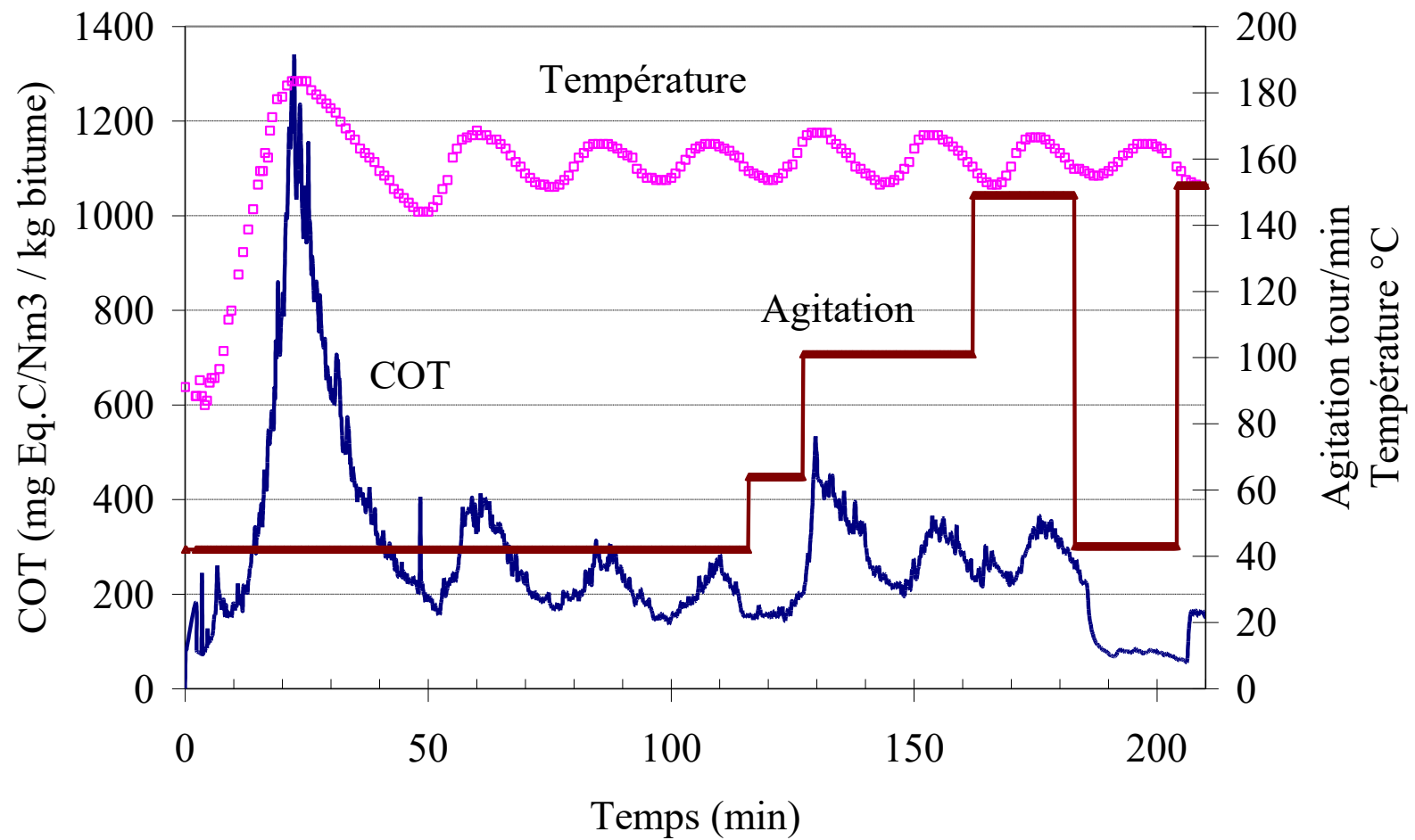


Figure 4 - 35 – Émissions organiques engendrées par le bitume (COT) en fonction de la température et de l'agitation au cours du temps

Influence de la température : Les résultats montrent que la température du bitume qui est liée à la mise en route du dispositif expérimental est passée par deux périodes distinctes : une période initiale (0 à 50 min) où l'on trouve un Pic de 183 °C, et une période stabilisée (après 50 min d'essai jusqu'à la fin d'essai (210 min)) où la température s'est stabilisée à 159 °C +/- 5 °C. Les émissions de COT suivent, d'une façon générale, les variations de température. Considérant les variations des émissions de COT du bitume présentées, on peut constater que les émissions présentent deux populations distinctes, soit dans la phase ascendante, soit dans la phase descendante. A environ 160 °C on trouve une inflexion dans la courbe des émissions. Une analyse statistique sommaire a été réalisée en termes de coefficient de variation (écart type / moyenne). Considérant les résultats obtenus, on peut constater que :

- le coefficient de variation des COT a augmenté de 9 % dans le niveau bas d'émission à 10 % dans le niveau haut d'émission ; par contre, le coefficient de variation de la température a baissé de 0,55 % dans le niveau bas d'émission à 0,21 % dans le niveau haut d'émission ;
- une variation de 9,9 °C dans la température du bitume (équivalent à 6,4 %) a produit une variation de 106,6 mgEq.C/m³/kg bitume (équivalent à 66,7 %) sur les émissions de COT (Tableau 4 - 17).

Tableau 4 - 17 – Analyse des variations des émissions de COT du bitume en fonction de la température

Niveau haut		Niveau bas		Différences entre les niveaux haut et bas		Variation %	
Temp. °C	COT mgEqC/Nm ³ /kg bitume	Temp. °C	COT mgEqC/Nm ³ /kg bitume	Temp. °C	COT mgEqC/Nm ³ /kg bitume	Temp.	COT
164,2	266,4	154,3	159,8	9,9 °C	106,6	6,4%	66,7%

Influence de l'agitation : Les valeurs moyennes de COT obtenues ont été étudiées en fonction de l'agitation (Tableau 4 - 18) dans la plage de température considérée comme stabilisée à 159 ±5 °C.

Tableau 4 - 18 – Valeurs moyennes de COT par période d'essai (agitation)

Période d'essai (min)	50 à 116	117 à 127	128 à 162	163 à 182	183 à 204	205 à 210
Agitation tours/min	42	64	101	149	43	152
Nombre de mesures réalisées	445	75	236	141	142	43
COT moyen mgEq.C/Nm ³	231	164	310	281	101	124

Les résultats issus de cet essai n'indiquent pas de corrélation entre l'agitation et les émissions de COT (Figure 4 - 36). Une explication pour cette non corrélation entre l'agitation et les émissions de COT (semi-volatils) peut être la variation de température de ± 5 °C tout au long du déroulement d'essai. La température étant le paramètre le plus important, le plus sensible, vis-à-vis des émissions, elle pourrait masquer une éventuelle influence de l'agitation sur les émissions. Pour valider cette hypothèse, il faudrait refaire l'essai en modifiant la vitesse d'agitation à une température constante.

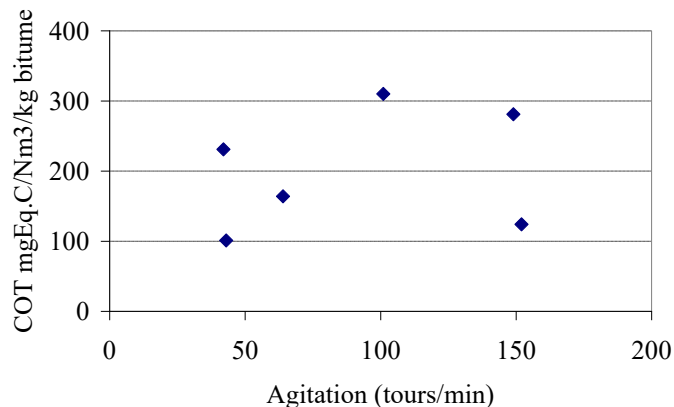


Figure 4 - 36 – Émissions de COT en fonction de l'agitation

3.1.3 Bilan sur le banc d'essai existant

Le système de chauffage du bitume du matériel utilisé n'est pas capable de maintenir la température constante au cours des essais : un écart de régulation de 5 °C a été trouvé lors de la réalisation d'essai de fumées du bitume ;

En ce qui concerne les émissions de fumées :

- La mise en route du générateur a créé un pic d'émission indésirable puisqu'il collabore à l'épuisement du bitume ;
- Pendant l'essai réalisé, la température n'a jamais été stable et une variation importante de ± 5 °C était présente. Comme les émissions de COT suivent la température du bitume, le deuxième facteur étudié (l'agitation) n'a pas pu être exploité convenablement ;
- L'analyse fine des variations de la température et leur influence sur les émissions de COT ont montré la présence de deux populations distinctes : il existe un point d'inflexion sur leur tendance à ≈ 160 °C ;
- L'analyse fine des émissions dans les niveaux bas et haut de température montre qu'une variation de 10 °C dans la température du bitume (équivalent à 6,4 %) a produit une variation de 107 mg/m³ (équivalent à 66,7 %) sur les émissions de COT.

Le bilan des résultats obtenus nous a conduits à mettre au point un banc d'essai qui permet de s'affranchir des inconvénients du banc d'essai existant.

3.2 Mise au point d'un banc d'essai pour les fumées du bitume

3.2.1 Appareillage

Dans le but de permettre d'étudier l'influence de l'agitation sur les émissions du bitume, il a donc fallu trouver un système permettant une meilleure homogénéisation et stabilisation de la température du bitume lors des mesures des émissions. Le montage réalisé comprend : un moteur d'agitation, une pale d'agitation permettant un meilleur transfert de la chaleur des parois du ballon vers le bitume, un ballon à fond rond possédant 3 cols latéraux et un col principal. De plus, il était important de mettre en place un protocole d'essai précis afin d'assurer la répétabilité des mesures.

Un premier montage a été réalisé (Figure 4 - 37). Comme système chauffant, plutôt qu'un chauffe ballon comme utilisé par le banc d'essai existant, nous avons testé l'efficacité

d'un bain d'huile thermostaté, pour limiter les variations de température au sein du bitume. L'objectif était obtenir une température du bain d'huile de 160 °C pour obtenir une température du bitume de 140 °C, pour une masse de bitume de 600 g proportionnelle au volume du tricol utilisé.

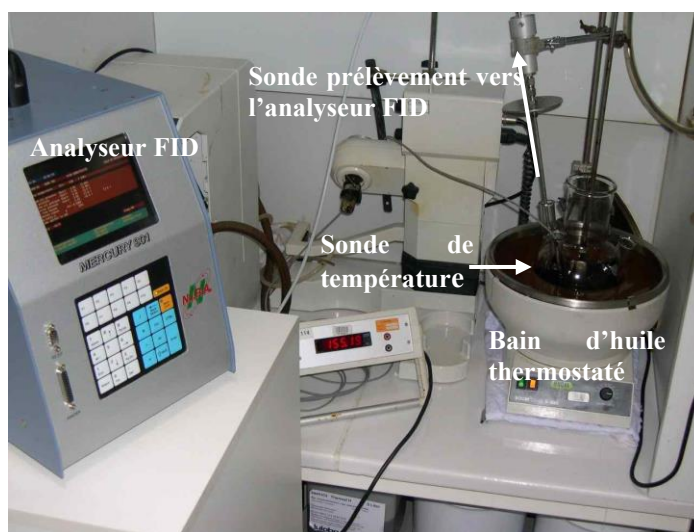


Figure 4 - 37 – Vue du banc de fumées du bitume au LCPC

Le protocole retenu aboutit à deux phases distinctes d'essai: une première phase de montée en température du bitume, où les émissions mesurées ne sont pas interprétables, puis une seconde phase de stabilisation en température, qui nous intéresse plus particulièrement et pendant laquelle l'étude de l'influence de facteurs autres que la température sera possible.

La première phase est illustrée par l'essai réalisé avec 600 g du bitume classique 35/50 (bitume type A) (Figure 4 - 38). Au bout de 20 minutes, on démarre l'agitation à 20 tr/min. La température du bitume évolue chaque fois que l'agitation augmente. Au bout de 20 minutes sous agitation de 20 tr/min, la température du bitume est stable et l'étude de l'influence de facteurs influents autres que la température peut commencer.

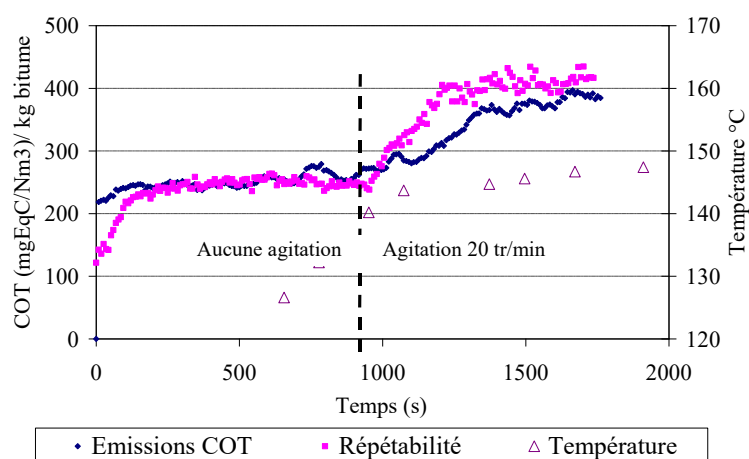


Figure 4 - 38 – Banc d'essai de bitume : répétabilité des émissions de COT et de la température en fonction du temps

Il faut noter que le protocole élaboré permet de démarrer l'essai sans produire de pic d'émission, évitant ainsi l'épuisement précoce du bitume. Il a également permis, au-delà

d'étudier l'influence de l'agitation sur les émissions de COT, de mettre en évidence l'influence de l'agitation sur la température du bitume.

3.2.2 Résultats sur les émissions du bitume

Influence de l'agitation

Suite à la mise au point du banc d'essai pour étudier l'influence de divers paramètres sur les émissions de COT du bitume, sous température stabilisée, des essais avec différentes agitations ont pu être réalisés. Dans ce contexte, un essai de longue durée (2 heures) a été réalisé où nous avons fait varier l'agitation du bitume type A de façon oscillatoire (Figure 4 - 39). D'après les résultats obtenus, on constate que :

- Après la période initiale de chauffage (≈ 30 min), la température est relativement stable dans le temps (Figure 4 - 38);
- Les émissions de COT sont fortement liées aux changements d'agitation du bitume. Il est possible de voir nettement les pics d'émission correspondants aux changements de vitesse de rotation ;
- Au fur et à mesure du déroulement de l'essai, on constate un épuisement du bitume relatif aux émissions engendrées ;

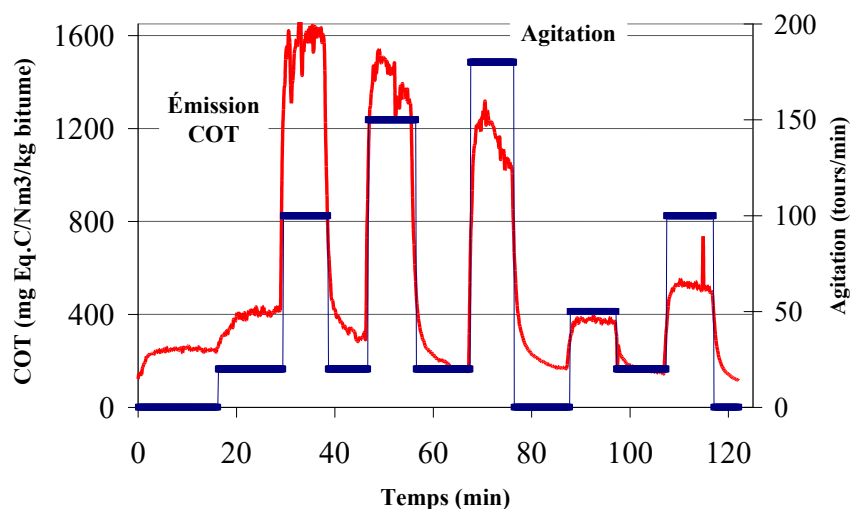


Figure 4 - 39 – Évolution des émissions de COT selon différents taux d'agitation du bitume

Etude de l'épuisement du bitume

Pour confirmer l'hypothèse précédente d'épuisement avec le temps nous avons réalisé des essais de longue durée (6 heures), à 150 °C et à différents taux d'agitation considérant qu'il s'agit d'une étude de l'influence de l'agitation sur les émissions.

Le premier essai a été réalisé à 20 tours/min, rotation minimale pour homogénéiser le bitume et faciliter ainsi le dégagement des émissions. Par la suite, trois autres niveaux d'agitations ont été testés, avec 100, 200 et 300 tours/min respectivement (Figure 4 - 40).

D'après les résultats obtenus (Figure 4 - 40), on constate que :

- Les valeurs de Pic (V_p) d'émission sont directement liées aux changements d'agitation du bitume : plus l'agitation est importante, plus la valeur de V_p est grande ;
- A 20 tours/min il n'existe pas de Pic d'émission ;

- Le potentiel d'émission à 300 tours/min est inférieur à celui à 200 tours/min et 100 tours/min (Tableau 4-19). ;
- Après 6 heures d'essais, il reste encore des COT qui se dégagent du bitume chauffé, dans une asymptote d'environ 100 mg Eq.C/m³ par kg bitume ;
- En complément du Potentiel d'émission, la valeur du Pic peut aussi caractériser le comportement d'émission du bitume ;

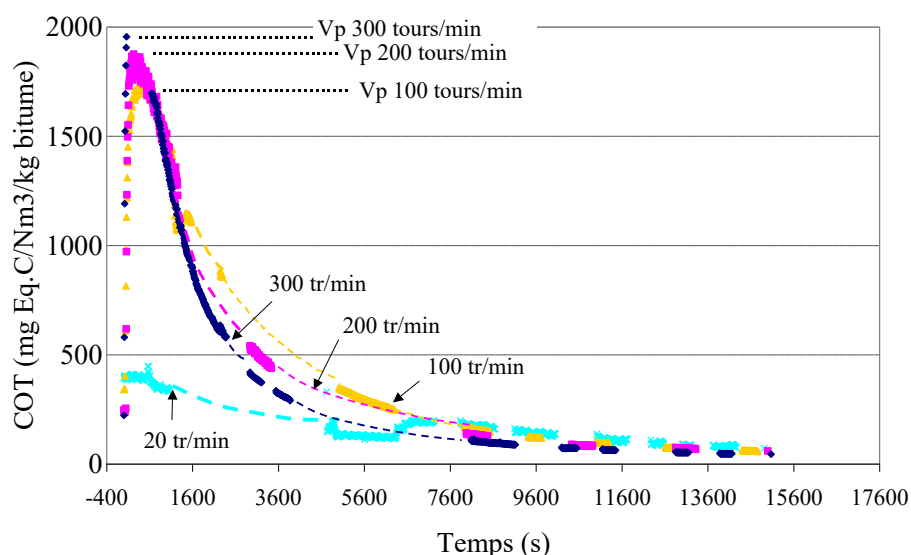


Figure 4 - 40 – Essais d'épuisement du bitume en relation aux émissions de COT

Les résultats du Potentiel et de la valeur pic d'émission sont présentés dans le tableau 4 - 20. Le Potentiel d'émission à 300 tours/min est inférieur à celui obtenu à 200 tours/min et à 100 tours/min. Par ailleurs, la valeur de pic est inversement proportionnelle au Potentiel d'émission.

Tableau 4 - 19 – Potentiels d'émissions du bitume selon l'agitation

Agitation du bitume (tours/min)	Potentiel d'émission (mgEq.C/Nm ³).s/kg bitume	Valeur Pic (mgEq.C/Nm ³)/kg bitume
20	2.962.383	631,7
100	6.049.397	1771,0
200	5.611.458	1876,3
300	4.839.326	1956,0

3.3 Bilan sur les émissions du bitume

- Les émissions du bitume sont fortement liées aux variations de température où une variation de 10 °C dans la température engendre une variation de 67 % dans les émissions ;
- Pour étudier l'influence de l'agitation, un banc d'essai et un protocole de génération de fumées ont été mis au point où la stabilisation de la température est obtenue sans créer de pic d'émission parasite ;
- Les émissions du bitume sont fortement liées aux variations d'agitation. Quand l'agitation augmente d'un facteur 5, les émissions augmentent d'un facteur 3 ;

- Les valeurs de pic d'émission sont proportionnelles à l'agitation : En revanche, les potentiels d'émission sont inversement proportionnels à l'agitation.
- Les essais d'épuisement réalisés montrent que dans les conditions d'essai, après 6 heures d'agitation, les émissions de COT tendent vers une valeur constante de l'ordre de 100 mg Eq.C/m³ par kg de bitume.

4 Synthèse des résultats des émissions du bitume, des enrobés et du vieillissement en laboratoire

4.1 Comparaison par banc d'essai

L'un des objectifs des essais réalisés est la mise en évidence d'une relation entre les émissions du bitume et de l'enrobé. Pour cela, les mesures d'émissions de bitume et d'enrobé (semi-volatils mesurés en termes d'émissions organiques totales (COT), en mgEq.C/Nm³, ramenées au kg de bitume utilisé) ont été réalisées pour trois essais : le banc d'essai existant du bitume, le banc d'essai du bitume développé au LCPC et le malaxeur LCPC. Le Tableau 4 - 20 présente les caractéristiques principales de ces quatre essais pour comparer les résultats obtenus.

Tableau 4 - 20 – Comparaisons entre les essais d'émissions (COT) du bitume et de l'enrobé bitumineux

Lieu	Fumées du bitume		Fumées de l'enrobé
	Banc d'essai existant	Banc d'essai développé au LCPC	Malaxeur LCPC
Polluants mesurés	COT + HAP	COT	COT + HAP
Quantité de bitume	200 g	600 g	2.600 et 3.500 g (± 72 kg d'enrobé)
Agitation	42 tours/min	200 tours/min	52 tours/min
Durée de l'essai	80 min	80 min	80 min
Températures d'essais	Période initiale : 82 à 183 °C Période stabilisée : 160 ± 5 °C	Période stabilisée : 150 °C	152 °C
Remarques	Développé pour étudier en laboratoire les fumées du bitume (HAP)	Développé pour étudier en laboratoire les fumées du bitume avec l'agitation	Développé pour produire des enrobés en laboratoire et permettre le prélèvement des fumées lors du malaxage

D'après les résultats trouvés (Figure 4 – 41), les valeurs du potentiel et du pic d'émission sont présentés dans le Tableau 4 – 21)

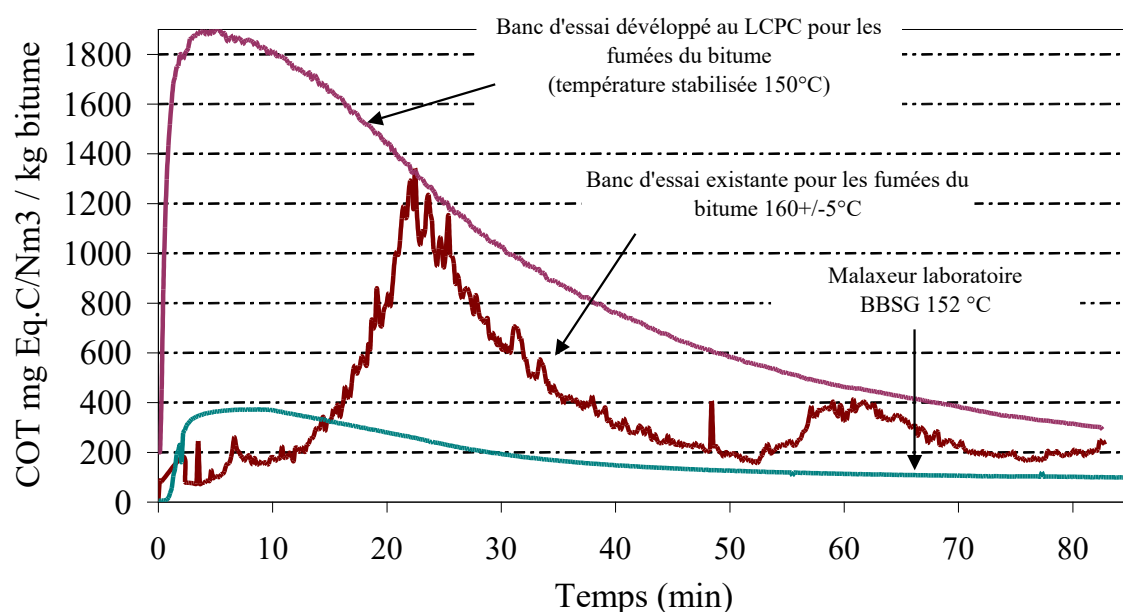


Figure 4 - 41 – Émissions de COT : (1) du bitume à 160+/-5 °C (banc d'essai existante), (2) du bitume à 150 °C (banc d'essai développé) et (3) de l'enrobé BBSG lors du malaxage au laboratoire à 160 °C.

Tableau 4 - 21 – Potentiels d'émission de COT du bitume et de l'enrobé bitumineux selon les générateurs utilisés

	Banc d'essai de bitume		Banc d'essai des enrobés
	Banc d'essai existant	Banc d'essai développé au LCPC	Malaxeur LCPC
Potentiel d'émission de COT (mg Eq.C /Nm³).s/kg bitume	1814100	4514900	925560
Valeur du Pic mg Eq.C /Nm³)/kg bitume	1341	1907	373

Une comparaison directe entre les fumées est délicate car il y a de grandes différences entre les essais. Les explications pour ces différences sont les suivantes :

- Le positionnement de la sonde de prélèvement de l'analyseur (plus proche ou plus loin de la surface chauffée) ;
- Les éventuelles dilutions des fumées dans l'enceinte de génération (volumes différents) ;
- La cinétique des essais est différente.

4.2 Comparaison par des calculs de tendances

Pour les enrobés bitumineux, nous ne disposons que de mesures de COT, exprimées par le Potentiel d'émission. D'après le modèle mathématique linéaire utilisé lors du plan d'expérience, les tendances d'émission, exprimées en (mgEq.C/Nm³).s/kg bitume, sont présentées dans la Figure 4 - 42.

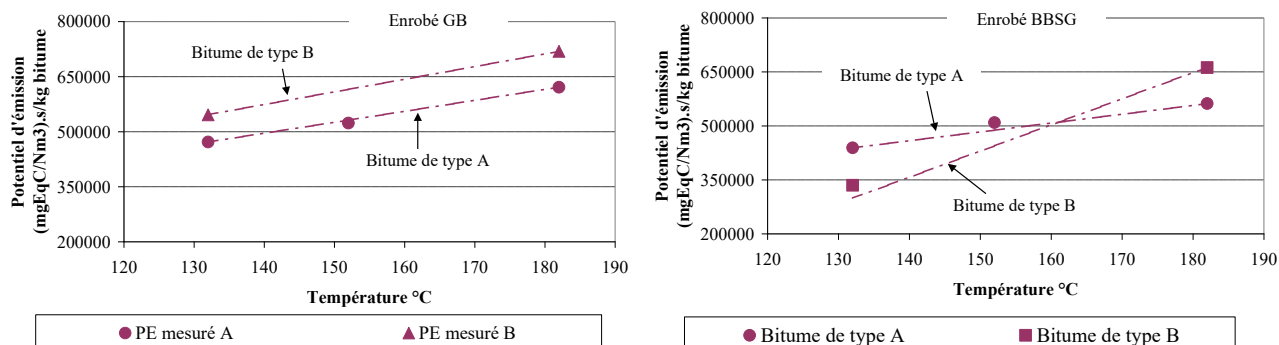


Figure 4 - 42 – Potentiel d'émission de COT selon les températures, les formules et la volatilité du bitume lors du malaxage en laboratoire

D'après les valeurs trouvées, les variations d'émission sont différentes de celles du bitume seul estimées à partir des relations de Brandt. Les émissions de la GB augmentent d'environ 31 % lorsque la température de fabrication augmente de 50 °C (de 132 °C à 182 °C), quel que soit le type de bitume utilisé (A ou B). Pour le BBSG fabriqué avec du bitume de type A, les émissions augmentent d'environ 28 % lorsque la température de fabrication augmente de 50 °C. En revanche, pour un BBSG fabriqué avec du bitume de type B, les émissions doublent lorsque la température de fabrication augmente de 50 °C (Tableau 4 - 22). Il faut noter qu'à environ 160 °C de température de fabrication l'enrobé BBSG avec du bitume de type B (plus volatil) dépasse l'émission d'enrobé fabriqué avec le bitume de type A (peu volatil).

Tableau 4 - 22 – Variations du Potentiel d'émission des enrobés dans le domaine expérimental étudié

	Température °C	Type de bitume	Potentiel d'émission (mgEqC/Nm³).s/kg bitume	Variation %
Grave Bitume (GB) (bas module de richesse)	132	A	471800	+31,7 %
	182	A	621000	
	132	B	546500	+31,5 %
	182	B	719000	
Béton bitumineux Semi-grenu (BBSG) (haut module de richesse)	132	A	439000	+27,9 %
	182	A	562000	
	132	B	335000	+97,4 %
	182	B	662000	

L'indicateur Potentiel d'émission permet de comparer les émissions issues d'enrobés différents (GB et du BBSG) lors du malaxage. Les courbes d'émission obtenues de chaque enrobé fabriqué sont présentées dans la Figure 4 - 43 et leurs Potentiels d'émission respectifs dans le Tableau 4 - 23.

Tableau 4 - 23 – Comparaison des Potentiels d'émission de la GB et du BBSG obtenus lors du malaxage en laboratoire

Formules	Température °C	Potentiel d'émission (PE) (mgEqC.s/Nm ³)	Pic d'émission	
			Valeur (mgEq.C/Nm ³)	Temps du Pic (s)
GB	132	471800	440	224
3,75% bitume	182	621000	479	302
BBSG	132	439000	363	397
5,10% bitume	182	562000	395	415

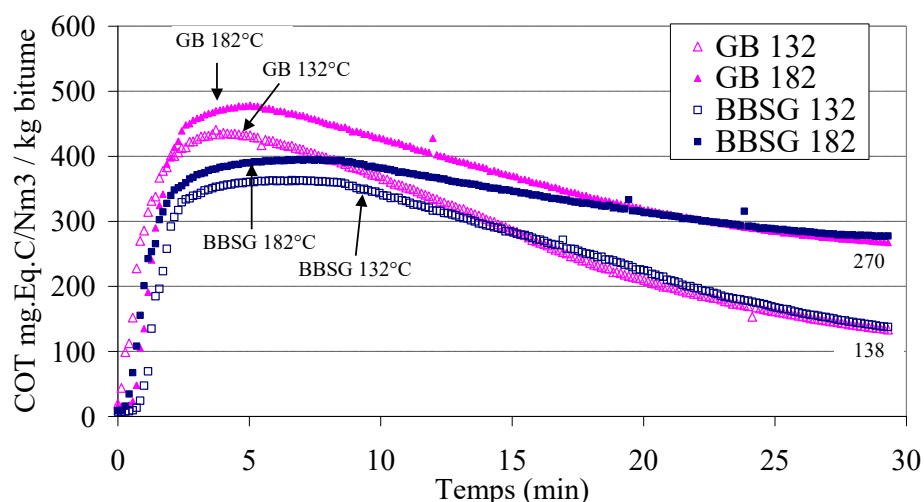


Figure 4 - 43 – Comparaison de l'évolution des émissions de la GB et du BBSG lors du malaxage en laboratoire

4.3 Relation vieillissement – émissions

Le Potentiel d'émission de COT a été mis en relation avec la pénétrabilité et la TBA obtenus des bitumes extraits après le malaxage. Une régression linéaire des points expérimentaux a été réalisée pour les paramètres pénétrabilité et TBA, selon le type de bitume utilisé. Dans les deux cas, le Potentiel d'Émission de COT évolue linéairement avec la pénétrabilité et la TBA, avec des valeurs de coefficients de détermination $R^2 > 0,9$ (Figure 4 - 44 et Figure 4 - 45).

La formule GB, porteur d'un faible module de richesse, vieillit plus que la formule BBSG, porteur d'un haut module de richesse. La pénétrabilité diminue et la TBA augmente pour les deux formules testées avec l'augmentation du Potentiel d'Émission de COT. Par cette démarche, une relation entre le Potentiel d'émission de COT et le vieillissement du bitume a été trouvée.

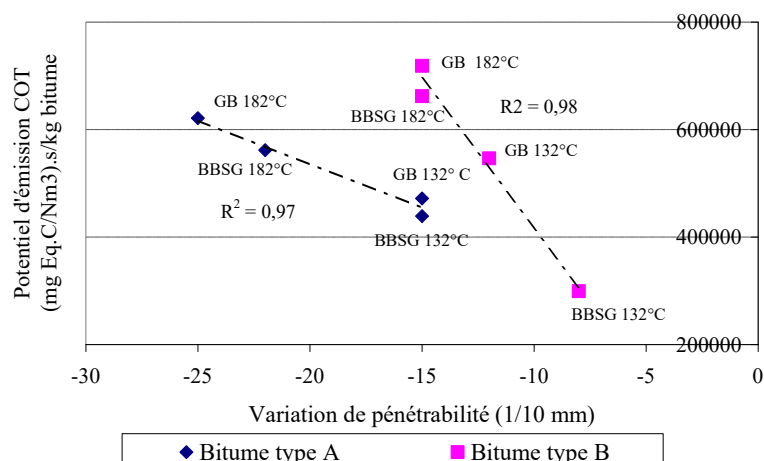


Figure 4 - 44- Relation entre la variation de la pénétrabilité et le Potentiel d'Émission de COT des enrobés lors du malaxage selon les formules

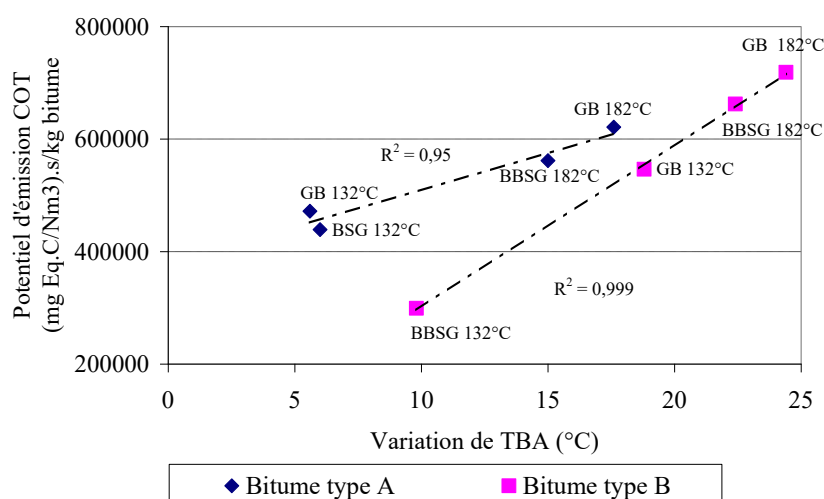


Figure 4 - 45- Relation entre la variation de TBA et le Potentiel d'Émission de COT des enrobés lors du malaxage selon les formules

5 Conclusion du chapitre 4

Après avoir étudié les émissions des enrobés en laboratoire, nous avons conclu que :

- Tous les émissions de COT au cours du temps, avec les bitumes étudiés, ont une allure en forme de « cloche » caractéristique, qui dépend des paramètres de malaxage (température, formule et type de bitume) ;
- Cette forme de cloche des émissions peut représenter le vieillissement du bitume, qui se produit en deux étapes successives : il s'agit d'abord des émissions volatiles (jusqu'au pic), puis de l'oxydation qui devient prépondérante (partie finale de la courbe). D'après ces études, il paraît que le mécanisme d'oxydation peut freiner les émissions organiques ;
- La température se détache comme le facteur le plus important vis-à-vis les réponses analysées. Plus la température est importante, plus le vieillissement et les émissions sont importants. Le module de richesse de l'enrobé se détache comme deuxième

facteur important vis-à-vis les émissions. Dans ce cas, plus le module est élevé, plus le vieillissement de l'enrobé est faible ;

- Pour les enrobés prélevés sur la centrale, le vieillissement du bitume est indépendant de la température et de la cadence de production. Par contre, d'après les résultats de laboratoire, le vieillissement varie en fonction des émissions.

DISCUSSION GENERALE ET CONCLUSIONS

Ce chapitre synthétise les connaissances acquises au cours du travail de thèse. Il rappelle les conditions dans lesquelles les différents résultats ont été obtenus à chaque échelle d'analyse ainsi que les limitations de l'étude. Les principales conclusions obtenues sont rappelées ainsi que les perspectives de ce travail.

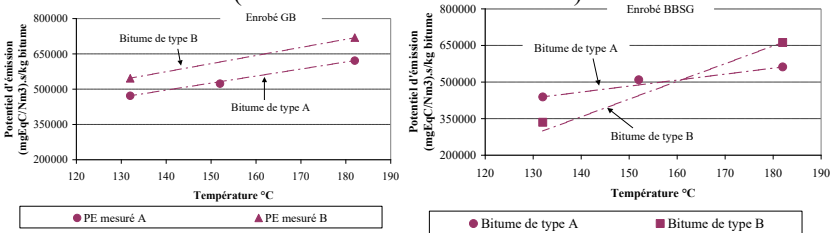
1 Synthèse des essais réalisés et des résultats obtenus dans la thèse

Les tableaux 5-1 (Synthèse des essais réalisés dans la thèse) et 5-2 (Synthèse des résultats obtenus dans la thèse) sont présentés ci-après.

Tableau 5 - 1 Synthèse des essais réalisés dans la thèse

	<i>Formules d'enrobés et bitumes étudiés</i>		<i>Plages de températures (°C)</i>	<i>Plages de cadences (t/h) ou de masses (kg) étudiées</i>	<i>Résultats acquis (mesures, modèles, indicateurs)</i>	<i>Référence (chapitre)</i>
Laboratoire	Bitume	35/50 (type A – peu volatil)	140 – 180	0,600 kg	Caractérisation Essais physiques – pénétrabilité, TBA Essais chimiques – infrarouge, distillation simulée Vieillessement accéléré : Essai physico-chimique – RTFOT Mesure d'émissions : COT et HAP	Ch.4 (§I.1) Ch.4 (§I.3) Ch.4(§III.2)
		35/50 (type B– très volatil)	140 – 180	0,600 kg	Caractérisation Essais physiques – pénétrabilité, TBA Essai chimique – distillation simulée	Ch.4 (§II.3)
	Enrobés	Grave bitume (GB) (TL = 3,75%)	140 – 180	72,392 kg/essai	Confection de plaque d'enrobé : Essai mécanique (module complexe) Desenrobage : caractérisation du bitume Essais physiques – pénétrabilité, TBA (+modèle) Essai chimiques – infrarouge (+modèle) Essai mécanique – module complexe (+modèle) Mesure d'émissions : COT et HAP Indicateur Potentiel d'émission de matériaux (+ modèle): (I _{PE})	Ch.4 (§II.5) Ch.4 (§II.5.1)
		Béton Bitumineux Semi-Grenu (BBSG 0/14) (TL = 5,10%)	140 – 180	72,129 kg/essai		Ch.4 (§II.5.2)
	Enrobés : conditions dédiées (teneur en eau de granulats = 1%)	GB (TL = 3,75%)	140 – 180	120 – 160 t/h	Mesure d'émissions : CO ₂ , CO, NO _x , SO ₂ , COT, CH ₄ et HAP Teneur en eau des granulats Granulométrie Confection de plaque d'enrobé : Essai mécanique : module complexe Desenrobage : caractérisation du bitume (Annexe 1) Essais physiques – pénétrabilité, TBA Essais chimiques – spectrométrie IR et teneur en asphaltènes Essai mécanique – module complexe Indicateur de la qualité de la combustion : I _{CO/CO2}	Ch.3 (§II.3) Ch.3 (§I) Ch.4 (§I.2) Ch.4 (§I.3) Ch.4 (§I.3) Ch.3 (§II.4)
Centrale d' enrobage	Enrobés : conditions usuelles (teneur en eau de granulats = 1,1%)	GB (TL = 3,75%)	158 – 166	130 – 180 t/h	Mesure d'émissions : CO ₂ , CO, NO _x et COT Teneur en eau de granulats Indicateur de la qualité de la combustion : I _{CO/CO2}	Ch.3(§III.2) Ch.3(§III.3)
		BBSG 0/10 (TL = 5,4%)	159 – 170	130 – 152 t/h		
		BBSG 0/14 (TL = 5,1%)	168	139 t/h		
		BBSG 3G (TL = 5,5%)	166 – 170	135 – 140 t/h		
		BBSG 3D (TL = 5,9%)	155 – 170	105 – 120 t/h		
		BBTM (TL = 5,4%)	155 – 175	140 – 164 t/h		

Tableau 5 - 2 Synthèse des résultats obtenus dans la thèse

	Formules d'enrobés et bitumes étudiés		Plages de températures	Cadences (t/h) ou masses (kg)	Mesures	Indicateurs	Remarques																																
Laboratoire	Bitume	35/50 (typeA)	(°C)	600 g/essai	Vieillessement : facteurs plus importants sont la température et la volatilité du bitume. Émissions : facteurs plus importants sont la température et le module de richesse de l'enrobé (indicateur Potentiel d'émission).			Ch.4 (§III.2)																															
		35/50 (type B)		200 g/essai																																			
	Enrobés	GB	132 – 182	72 kg/essai				Ch.4 (§II.5)																															
		BBSG 0/14	132 – 182	72 kg/essai																																			
Centrale d' enrobage	Conditions dédiées (TSE fixe avec du gaz naturel)	GB	135 – 188	119,1 – 160,8 t/h	Plages d'émissions rapportées à 17% d'O ₂ en période stabilisée de production			Dans la plage de réglage de la combustion : I _{COCO2} ≈ 0,22 Hors plage de réglage de la combustion : I _{COCO2} ≈ 5,42	Ch.3 (§II.4)																														
	Conditions usuelles (TSE fixe avec du gaz naturel + TSE mobile avec du fuel lourd)	GB (fixe) GB (mobile)	166 158 - 165	134 t/h 130 – 180	Plages d'émissions d'un TSE mobile au fuel lourd, rapportées à 17% d'O ₂ en période conforme de production :			I _{COCO2} ≈ 0,93	Ch.3 (§III.2)																														
		BBSG 0/10 (fixe) BBSG 0/10 (mobile)	169 – 170 159 - 162	130 – 152 t/h 131 – 142 t/h	<table><tr><td></td><td>CO₂</td><td>CO</td><td>NO_x</td><td>COT</td></tr><tr><td>Unités</td><td>%</td><td>mg/Nm³</td><td></td><td>mgEqC/Nm³</td></tr><tr><td>Moyenne</td><td>6,3</td><td>384</td><td>182</td><td>114</td></tr><tr><td>Ecart type</td><td>0,3</td><td>91,4</td><td>16,2</td><td>-</td></tr><tr><td>Maximale</td><td>7,2</td><td>734</td><td>208</td><td>119</td></tr><tr><td>Minimale</td><td>3,3</td><td>172</td><td>139</td><td>77</td></tr></table>						CO ₂	CO	NO _x	COT	Unités	%	mg/Nm ³		mgEqC/Nm ³	Moyenne	6,3	384	182	114	Ecart type	0,3	91,4	16,2	-	Maximale	7,2	734	208	119	Minimale	3,3	172	139	77
			CO ₂	CO	NO _x	COT																																	
		Unités	%	mg/Nm ³		mgEqC/Nm ³																																	
		Moyenne	6,3	384	182	114																																	
		Ecart type	0,3	91,4	16,2	-																																	
		Maximale	7,2	734	208	119																																	
	Minimale	3,3	172	139	77																																		
	BBSG 0/14 (mobile)	168	139 t/h	Plages d'émissions d'un TSE fixe au gaz naturel, rapportées à 17% d'O ₂ en période conforme de production :																																			
	BBSG 3G (fixe)	166 - 170	135 – 140 t/h	<table><tr><td></td><td>CO₂</td><td>CO</td><td>NO_x</td></tr><tr><td>Unités</td><td>%</td><td>mg/Nm³</td><td></td></tr><tr><td>Moyenne</td><td>4,2</td><td>91</td><td>18</td></tr><tr><td>Ecart type</td><td>0,4</td><td>253,0</td><td>8,0</td></tr><tr><td>Maximale</td><td>5,8</td><td>1759</td><td>33</td></tr><tr><td>Minimale</td><td>3,7</td><td>4</td><td>0</td></tr></table>				CO ₂	CO	NO _x	Unités	%	mg/Nm ³		Moyenne	4,2	91	18	Ecart type	0,4	253,0	8,0	Maximale	5,8	1759	33	Minimale	3,7	4	0									
		CO ₂	CO	NO _x																																			
	Unités	%	mg/Nm ³																																				
Moyenne	4,2	91	18																																				
Ecart type	0,4	253,0	8,0																																				
Maximale	5,8	1759	33																																				
Minimale	3,7	4	0																																				
BBSG 3D (fixe)	155 - 170	105 – 120 t/h																																					
BBTM (fixe) BBTM (mobile)	155 – 169 173 - 175	140 – 152 t/h 150 – 164 t/h																																					

2 Discussion sur l'étude multi-échelle du processus d'enrobage

2.1 Qualité des mesures

Les travaux réalisés au cours de la thèse ont permis de mesurer des émissions aux différentes échelles et de s'approprier des compétences sur le suivi des procédés sur site industriel et en laboratoire. Il s'agit des études des émissions réalisées en centrale d'enrobage (cheminée) et en laboratoire (malaxeur). Dans les deux cas, les mesures sont réalisées en continu et par échantillonnage, comme suit :

En centrale d'enrobage : en continu, pour les polluants CO₂, CO, NO_x, SO₂, COT et CH₄ et par prélèvement et échantillonnage, pour les HAP ;

En laboratoire : en continu, pour les COT et par prélèvement et échantillonnage, pour les HAP.

En centrale : à l'exception des HAP, nous disposons des valeurs d'émission en période conforme et stabilisée de production des enrobés. Par contre, les HAP, qui font partie des mesures d'émission, ne sont que des valeurs moyennes d'une période préétablie auparavant. Dans ce cas, nous ne pouvons donc pas avoir un flux des HAP dans une période stabilisée, mais plutôt dans une période quelconque de production.

En laboratoire : le prélèvement et l'analyse des HAP a présenté des difficultés. Une saturation des filtres a été rencontrée, non observée sur les essais centrale, ce qui a rendu impossible l'exploitation du plan d'expérience laboratoire pour les HAP. La modification du protocole de prélèvement a permis juste dans le cadre de la thèse d'exploiter les types de constituants détectés.

Si la mesure des COT est fiable aux deux échelles, la mesure des HAP reste plus délicate et difficile à corrélérer aux autres signaux obtenus en continu.

2.2 Comparaison des mesures d'émission et méthodologie d'étude

La plupart des résultats obtenus dans le cadre de la thèse regroupent des mesures de concentrations de polluants relatifs aux procédés étudiés et aux appareillages qui les produisent :

- selon des cinétiques qui sont différentes, ce qui rend à ce stade impossible la comparaison directe du procédé d'enrobage en centrale et du procédé de malaxage en laboratoire,

- dans des conditions d'écoulement turbulent (en cheminée de la centrale) qui nécessitent une caractérisation fiable des vitesses de gaz, caractérisation qui n'a pu être faite que partiellement, qui a été peu exploitée faute de temps, et reste encore à approfondir dans les prochaines années en perspective de ce travail.

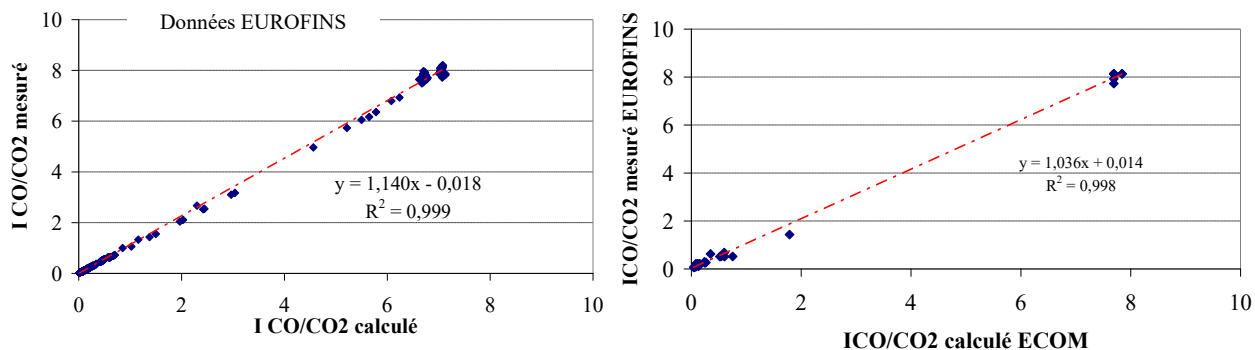
Pour aborder l'évaluation des flux, seul paramètre environnemental qui permet effectivement de conduire des comparaisons des conditions de production entre elles, il s'agira de choisir parmi les données mesurées en continu celles qui sont représentatives d'une période de référence dite « stabilisée ». Le choix de cette période pourra être effectué en s'appuyant sur la méthodologie de tri des données développée dans ce travail.

2.3 Robustesse de l'indicateur ICO/CO2

Compte tenu que le CO₂ peut être mesuré directement par un analyseur spécifique (fabrication en condition dédiée) ou, en utilisant un analyseur du type combustion (fabrication en condition usuelle), calculé en fonction de la mesure d'oxygène, une comparaison des résultats a été réalisée (Figure 5 - 1).

La Figure 5 - 1 A présente l'indice ICO/CO₂ obtenu avec les analyseurs d'EUROFINS. Il s'agit donc d'un indice obtenu à partir de deux analyseurs différents : un pour la mesure de CO et l'autre pour la mesure du CO₂. Cet indice a été corrélé avec l'indice obtenu à partir de la mesure de CO (même appareil que précédemment) et du calcul de CO₂ en fonction des valeurs d'O₂ mesurées. Les résultats sur 316 mesures ont montré la pertinence du calcul de la teneur en CO₂ à partir de la teneur en O₂. La figure Figure 5 - 1 B présente la corrélation élaborée pour comparer les résultats de l'indice ICO/CO₂ obtenu à partir des mesures de O₂ et de CO₂ dans le cas d'EUROFINS et à partir de la mesure de O₂ et du calcul de CO₂ dans le cas d'ECOM. L'indicateur obtenu avec le CO₂ calculé représente la valeur maximale puisque ce CO₂ est représentatif de la combustion complète. Dans la réalité, les difficultés de combustion se traduisent par des combustions incomplètes, donc par des teneurs en CO₂ mesurées inférieures à celles calculées. De ce fait, l'indice ICO/CO₂ mesuré est toujours supérieur à l'indice ICO/CO₂ calculé (Figure 5 - 1 A) et se traduit par une relation de la forme $y=ax+b$ avec un a supérieur à 1 et un b supérieur à zéro (Figure 5 - 1 B). En conclusion, l'appréciation de la qualité de la combustion (indice ICO/CO₂) s'effectuera, lors de l'utilisation de l'analyseur de combustion du type ECOM, à partir de l'information obtenue selon la relation :

$$I_{CO/CO_2\text{mesuré}} = 1,036 I_{CO/CO_2\text{calculé}} + 0,014 \quad (5 - 1)$$



A) Données mesurées (EUROFINS)B)

Données mesurées (EUROFINS) via à vis données calculées (ECOM)

Figure 5 - 1 – Comparaison entre l'indice ICO/CO₂ mesuré et calculé

Ce type de mesure peut être effectué simplement et en conditions usuelles et pourrait être appliqué à d'autres centrales.

3 CONCLUSIONS

3.1 Considérations générales

Ce travail s'inscrit dans un contexte de développement durable appliqué aux infrastructures routières, de manière à participer à la préservation de l'environnement [Code de l'Environnement, principes généraux]. La plupart des ouvrages routiers qu'ils soient localisés dans les régions urbaines ou dans les régions rurales, utilisent de l'enrobé bitumineux tant pour la construction que pour l'entretien des routes. L'objectif général de ces travaux consiste à analyser les caractéristiques globales du procédé centrale d'enrobage à partir des données de terrain. Plus précisément, ce travail de thèse concerne les émissions de centrales d'enrobage, qui ont été abordées par l'étude de deux TSE (une centrale fixe et une centrale mobile) de même nature mais fonctionnant avec des combustibles différents: le gaz naturel et le fuel lourd. L'étude de ce type de matériel s'inscrit dans un contexte international qui montre une prédominance de ce type de centrale de par le monde. D'autre part, seule la centrale fixe a été utilisée pour effectuer des mesures fines d'émission de polluants à l'atmosphère du procédé d'enrobage en TSE. La réalisation de mesures d'émissions sur les deux centrales a, quant à elle, permis de mettre en perspective les travaux de recherche et le contexte industriel de production dans lequel ces matériels sont utilisés.

Pour répondre aux questions posées au début de la thèse, concernant l'influence des conditions de production, le type de formule fabriquées et le vieillissement éventuel de l'enrobé produit, une méthodologie d'étude multi-échelles a été développée. A l'échelle de la centrale d'enrobage, une méthodologie d'analyse et de traitement de données a permis d'identifier les données conformes et stabilisées au niveau de la combustion. Cette méthodologie a été appliquée en conditions dédiées et usuelles de fabrication pour étudier les émissions et déterminer les plages de concentration associées à différentes conditions de production. En parallèle, à l'échelle du laboratoire, une méthodologie de fabrication des enrobés couplée avec des systèmes de prélèvements de fumées a été mise au point pour l'étude des émissions des matériaux lors de leur malaxage, effectué à chaud. Cette méthodologie a été appliquée sur le malaxage des enrobés puis sur le bitume seul.

Des données d'émissions des centrales étudiées, selon la méthodologie de traitement de données et stabilisées au niveau de la combustion (dans la plage de réglage du brûleur) sont disponibles pour les deux TSE étudiés. Un tri des données en fonction des conditions de combustion a été réalisé, notamment en relation avec la plage de réglage du brûleur. Un indicateur lié à la combustion a été proposé, il permet de rendre compte de la qualité de cette combustion; sa détermination basée sur la mesure du CO et du CO₂, nécessite d'utiliser un appareillage portatif (analyseur de combustion), couramment utilisé pour le réglage des brûleurs dont l'emploi est simple et qui est parfaitement adapté à des mesures de site.

Des données d'émission en laboratoire grâce au malaxeur adapté dans le cadre de la thèse, et au générateur de fumées développé ont également été obtenues. Les essais en eux-mêmes permettent d'étudier de manière fine et discriminante des formules d'enrobés (module de richesse variable ou type de bitume variable) ainsi que leurs modalités d'élaboration, en particulier la température. Un indicateur relatif au potentiel d'émission des matériaux (enrobés et liant seul) a été proposé. La détermination de cet indicateur est basée sur la mesure des COT, lesquels bien que regroupant une famille chimique très vaste dont l'utilisation reste controversée ont toujours montré qu'ils étaient mesurables sans difficultés, contrairement aux HAP.

3.2 Compétences acquises sur la caractérisation des procédés d'élaboration des enrobés

Fiabilité des mesures à toutes les échelles d'étude : Les concentrations de O₂, CO₂, CO, SO₂, COT, CH₄ ont été mesurées sur les deux centrales, pour la totalité des paramètres pour les conditions dédiées de fabrication et pour une partie d'entre eux en conditions usuelles. Les flux de HAP ont été déterminés uniquement en conditions dédiées. Quelques difficultés de mesurage ont été rencontrées en cheminée avec le FID, notamment concernant l'échantillonnage des gaz. La vitesse des gaz n'a pas pu être mesurée correctement sur la centrale mobile du fait de la position de la trappe sur ce dernier paramètre des travaux plus poussés sont nécessaires avant de pouvoir envisager une détermination satisfaisante des flux de polluants. En laboratoire, c'est plutôt le prélèvement des HAP qui a été délicat ; ce travail a plutôt permis de réaliser un travail préliminaire qu'il conviendra d'affiner par la suite. La cinétique des gaz dans la cheminée du malaxeur reste une question posée avec une incertitude sur l'éventuelle difficulté des HAP lourds de monter vers le système de prélèvement.

Même en considérant que les mesures de COT sont reproductibles et donc fiables, les conditions de mesure entre l'échelle centrale et l'échelle laboratoire sont très différentes en termes d'écoulement de gaz et la comparabilité de ces mesures entre elles ne paraît pas fondée aujourd'hui dans l'état des connaissances acquises.

Caractère non intrinsèque des indicateurs : l'indicateur potentiel d'émission des matériaux, comme l'indicateur de combustion, on l'a montré au fur et mesure de l'étude, dépend du process étudié qui peut être de type enrobage en tambour sécheur (avec renouvellement du bitume), malaxage en malaxeur de laboratoire (avec une masse de bitume constante) ou encore agitation du bitume sur un banc d'essai. A ce titre et quelle que soit l'échelle, les deux indicateurs sont liés au moins au matériel utilisé et on ne peut pas dire à l'issue de ce travail qu'ils aient respectivement : un caractère intrinsèque au combustible et un caractère intrinsèque à la formule. Des essais avec d'autres matériels du même type sont par ailleurs nécessaires avant de permettre d'envisager leur utilisation plus largement .

Relation entre les indicateurs : compte tenu du caractère non intrinsèque des indicateurs, il n'est pas envisageable de les relier entre eux dans le cadre de ce travail. A l'issue de l'étude, on pourra par contre vérifier pour les formules dont la combustion est bonne, quel est le classement obtenu via les plages d'émission et si possible mettre ce classement en relation avec le potentiel d'émission obtenu en laboratoire.

BIBLIOGRAPHIE

ADEME – Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie. *Le savoir-faire français en matière de surveillance de la qualité de l'air ambiant*. Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie. 2001.

ADEME – Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie. Site Internet. www.ademe.fr Juillet 2004.

AFNOR ISO 10780. Émissions de sources fixes -- Mesurage de la vitesse et du débit-volume des courants gazeux dans des conduites. Organisation Internationale de Normalisation, 1994.

AFNOR NF EN 12591. *Bitumes et liants bitumineux. Spécifications des bitumes routiers*, CEN, 1999c.

AFNOR NF EN 12607-1. *Bitumes et liants bitumineux. Détermination de la résistance sous l'effet de la chaleur et de l'air. Partie 1 : méthode RTFOT*, 2000.

AFNOR NF EN 12697-3. *Mélanges bitumineux - Mélanges bitumineux - Méthodes d'essai pour mélange hydrocarboné à chaud - Partie 3: Récupération des bitumes : Evaporateur rotatif - Partie 3 : récupération des bitumes : évaporateur rotatif*. Juin 2005. 2005b

AFNOR NF EN 12697-35, *Mélanges bitumineux - Méthodes d'essai pour mélange hydrocarboné à chaud - Partie 35 : malaxage en laboratoire*, 14 p., CEN, janvier 2005a.

AFNOR NF EN 13108-1 *Projet de norme. Mélanges bitumineux - Spécifications des matériaux - Partie 1 : enrobés bitumineux*. CEN, février 2007.

AFNOR NF EN 13108-21. *Mélanges bitumineux - Spécifications des matériaux - Partie 21 : contrôle de la production en usine*. CEN, 32 p, juin 2006.

AFNOR NF EN 13242 *Granulats pour matériaux traités aux liants hydrauliques et matériaux non traités utilisés pour les travaux de génie et pour la construction des chaussées*, CEN, août 2003b.

AFNOR, NF EN 13526 *Émissions de sources fixes – Détermination de la concentration massique en carbone organique total à fortes concentrations dans les effluents gazeux : méthode du détecteur continu à ionisation de flamme*. CEN, mai 2002.

AFNOR NF EN 1426. *Bitumes et liants bitumineux. Détermination de la pénétrabilité à l'aiguille*, 1999 a.

AFNOR NF EN 1427. *Bitumes et liants bitumineux. Détermination de la température de ramollissement. Méthode Bille et Anneau*, 1999 b.

AFNOR NF EN 1948-1. *Emissions de sources fixes – Détermination de la concentration massique en PCDD/PCDF et PCB de type dioxine – Partie 1 : Prélèvement des PCDD/PCDF*. 59 p., Juin 2006.

AFNOR NF EN ISO 14041. *Management Environnemental. Analyse du cycle de vie. Définition de l'objectif et du champ d'étude et analyse de l'inventaire*. Décembre 1998.

AFNOR NF P 98-150 . *Enrobés hydrocarbonés. Exécution des corps de chaussées, couches de liaison et couches de roulement*, décembre 1992. 1992b.

AFNOR NF P 98-260-2. *Essais relatifs aux chaussées - Mesure des caractéristiques rhéologiques des mélanges hydrocarbonés - Partie 2 : détermination du module complexe par flexion sinusoïdale*, 12 p, septembre 1992a.

AFNOR, NF X 12-619 *Émissions de sources fixes – détermination de la concentration massique en carbone organique total à de faibles concentrations dans les effluents gazeux : méthode du détecteur continu à ionisation de flamme*, CEN, septembre 1999. 1999d.

AFNOR. NF X 20-377. *Analyse des gaz - Méthodes d'analyse de l'oxygène basées sur les propriétés paramagnétiques de ce gaz*. 7 p, décembre, 1980

AFNOR NF X 20-380. *Analyse des gaz - Dosage du dioxyde de carbone - Guide pour le choix des méthodes de dosage*, 10 p, novembre 1979.

AFNOR NF X 43-018. *Air ambiant - Dosage des oxydes d'azote par chimiluminescence*, 7 p, mars 1983.

AFNOR, NF X 43-329 *Émissions de sources fixes – prélèvement et mesurage d'hydrocarbures aromatiques polycycliques à l'émission*, CEN, mai 2003. 2003a

AFNOR. NF X 43-550. *Qualité de l'air - Émissions de sources fixes - Expression des résultats issus de mesures à l'émission des installations industrielles*, 21 p, décembre 1999c.

AFNOR, XP T 66-065. *Détermination du Module Complexe*. Décembre 2003. 2003c

Barnthouse L. et al. *Life-Cycle Impact Assessment : The State-of-the-Art*. Society of Environmental Toxicology and Chemistry, 2nd edition, 1998.

Baroux R., Moneron P., Peres P. *Fabrication des enrobés – Analyse de l'influence des paramètres principaux de réglage et de conception des centrales sur la qualité des enrobés*. Bulletin de Liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées. N°173, 1991.

Besnier M.A. *Les Hydrocarbures polycycliques Aromatiques dans les Viandes et les Poissons Fumes*. Thèse de Doctorat – Université de Nantes, 1986.

Binet S., Bonnet P., Brandt H., Castegnaro M., Delsaut P., Fabries J.F., Huynh C.K., Lafontaine M., Morel G., Nunge H., Rihn B., Vu Duc T., et Wrobel R. *Development and Validation of a New Bitumen Fume Generation System which Generates Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Concentrations Proportional to Fume Concentrations*. Ann. Occup. Hyg., Vol 46, No. 7, pp. 617-628, 2002.

Bockhorn H. *Soot formation in combustion*. edited by Bockhorn H., Springer-Verlag. 1994.

Bonnet P., Binet S., Brandt H., Kriech A.J., Lafontaine M., Nunge H., Morele Y., Groot P. de, Wissel H. Castegnaro M. *Inhalation Study on Exposure to Bitumen Fumes. Part 1 : Development and Validation of the Equipment*. Ann. Occup. Hyg., Vol. 44, N°1, 15-29, 2000.

Borghi Roland. *Combustion turbulente*. Techniques de l'Ingénieur BE 8-325, 19p., 1987.

Brandt H., Groot P. *A Laboratory Rig for Studying Aspects of Worker Exposure to Bitumen Fumes*. Am. Ind. Hyg. Assoc. J., Vol. 60 : 182-190, 1999.

Brandt H., Lafontaine M., Kriech A.J., Groot P. de, Bonnet P., Binet S., Wissel H., Morele Y., Nunge H., Castegnaro M. *Inhalation Study on Exposure to Bitumen Fumes Part 2 : Analytical Results at Two Exposure Levels*. Ann. Occup. Hyg., Vol 44, No. 1, pp. 33-41, 2000.

Brosseaud A. *Vieillissement du bitume après moussage*. Travail d'étude et de recherche de maîtrise. Université de Nantes, 2001.

CIBER – Matériel routier. Catalogue de ventes, 2003.

CIFALI – CMI – Matériel routier. Catalogue de ventes, 2003.

CITEPA – Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique. *Calcul des émissions dans l'air – principes méthodologiques généraux*, 2005.

Collet Serge. *Facteurs d'émission – Emissions de dioxines et furannes et d'autres polluants liés à la combustion du bois naturels et adjuvants*. INERIS, 68 p., 2000.

Collin F. *Détermination des signatures granulométriques et chimiques de particules prélevées à l'échappement de moteurs Diesel en atmosphère urbaine*. Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 2000.

CONCAWE. *Bitumen et bitumen derivatives. Concawe's Petroleum Products and Health Management Groups*. Product dossier n° 92/104, 1992.

Control Technology Center, *Pilot-scale Evaluation of Potential for Emissions of Hazardous Air Pollutants From Combustion of Tire-Derived Fuel*. EPA – 600/R-94-070 USA, 1994.

Corté Jean-François et Di Benedetto Hervé. *Matériaux Routier Bitumineux. Mécanique et Ingénierie de Matériaux. Tome 1 – Description et propriétés des constituants*. Lavoisier, 234 p., 2004.

Corté Jean-François et Di Benedetto Hervé. *Matériaux Routier Bitumineux. Mécanique et Ingénierie de Matériaux Tome 2 – Constitution et propriétés thermomécaniques des mélanges*. Lavoisier, 283 p., 2005.

De La Roche C., *Propriétés Mécaniques des Enrobés Bitumineux – comportement, module, fatigue*. Mastère Infrastructure des Transports – module Matériaux. Ecole Nationale de Ponts et Chaussées, 25 p, 2004.

De Sars T. *Postes d'enrobage à chaud : Principe et réglage des brûleurs*. Matériels & Chantiers, N°152, mars 2006.

Dias Véronique, Vandooren Jacques. *Chimie de la combustion. Flammes à base d'hydrocarbures*. Techniques de l'Ingénieur AF 6 210, 15p., 2004.

DiTaranto M., Sautet JC., Samaniego JM. *Structural aspects of coaxial oxy-fuel flames*. Experiments in Fluids, 30, pp 253-261, 2001.

DRIRE adresse du site internet : http://www.drire.gouv.fr/environnement/intro_reg.html

Duriez, M. *Traité de matériaux de construction*. Ed. Dunod, 1950.

Durrieu F., Planche J., Lamontagne J., Mouillet V. et Kister J. *Application de la microspectroscopie infrarouge à l'étude du vieillissement de bitumes-polymères*. Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées. Ref.4434. N° 240, pp 15-26, 2002.

EAPA -European Asphalt Pavement Association -. *Environmental guidelines on Best Available Techniques (BAT) for the production of asphalt mixes*. Update document, 1996.

Ellison S.L.R., Rosslein M., Williams A. *Quantifier l'Incertitude dans les Mesures Analytiques*. Deuxième Edition. Guide EURACHEM/CITAC. Site internet <http://www.lne.fr>.

England G.C., McGrath T. P., Gilmer L., Seebold J. G., Lev-On M. et Hunt T. *Hazardous air pollutant emissions from gas-fired combustion sources : emissions and the effects or design and fuel type*. Chemosphere N° 42, pp 745-764, 2001.

EPA (U.S. Environmental Agency). Office of Air Quality Planning and Standards. Emission Measurement Center. Research Triangle Park, NC 27711. *Emissions Factor Documentation for AP-42. Hot Mix Asphalt Plant. Final Report*, 49 p., Feb 2004.

ERMONT – Fayat Group. Catalogue de ventes, 2003.

Esposito, Émile. *Cinétique chimique*. Techniques de l'Ingénieur A 1-620, 11p., 1987.

Esposito, Émile. *Température et composition des gaz brûlés*. Techniques de l'Ingénieur A 1-610, 16p., 1987.

Fontelle Jean-Pierre. *Environnement. Méthodes de quantification des émissions dans l'air*. Techniques de l'Ingénieur G 1 630, 2006.

Farcas F. *Etude d'une méthode de simulation du vieillissement des bitumes sur route*. Rapport CR-21, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées. Septembre 1998.

Farias O., Ngendakumana. *Influence of the Fuel-Air mixing on the flame spectrum and pollutants emission in a fuel oil boiler*. INFUB 1997, Vol 2.

Fava J. et al. *Life-cycle Assessment Data Quality : A Conceptual Framework*. Society of Environmental Toxicology and Chemistry and SETAC Foundation for Environmental Education, october 1992.

Gaestel C., Smadia R. et Lamminan K. A. *Contribution à la connaissance des propriétés des bitumes routiers*. Revue générale des routes et des aéroports, n° 466, juin 1971.

Garo. *Mécanismes de formation et destruction des particules de carbone dans une flamme de diffusion laminaire méthane-air*. Thèse de doctorat, université de Haute-Alsace, 1984

Gaz de France. *Combustibles Gazeux et Principes de la Combustion*. BT104., 67p., Janvier 1984.

Gonzalez - Flesca N., Leoz – Garziandia E. *Caractérisation des émissions de COV et de HAP par des résidus pétroliers sur la zone de dépollution*. Dossier Erika. Rapport 4. Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement. INERIS, 2000.

Goupy J. *La Méthode des Plans d'Expériences. Optimisation du choix des essais & de l'interprétation des résultats*. Ed. Dunod, 1988.

Groupement professionnel des bitumes (GPB). *Bitume Info, Numéro spécial 1*, 2003.

Haudiquert-Talbaut M. *Etude de la formation et de l'oxydation des suies dans les flammes de diffusion laminaires d'éthylène. Approches expérimentale et numérique*. Thèse de doctorat, Université de Rouen. janvier 1996.

Haynes B.S et Wagner H.GG. *Soot formation*. Prog.Energy Combust.Sc., vol 7, pp 229-273, 1981.

Herschkorn P. *Cours de routes. Couches de roulement*. Edition ENPC. 162 p., 1985.

Hicks J. *Asphalt Industry Cross-Sectional Exposure Assessment Study*. Appl. Occup. Environ. Hyg., Vol 10, 840 – 848, October 1995.

Hoang T. *Tronçons autoroutiers: une méthodologie de modélisation environnementale et économique pour différents scénarios de construction et d'entretien*. Thèse de doctorat du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, école doctorale MTGC. 327p. 2005

Hot-Mix adresse du site internet du magazine: <http://www.hotmixmag.com/>

IFE – Institut français de l'énergie. *Aide-mémoire du technicien*, 1982.

INERIS – Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques. *Fiche des données toxicologiques et environnementales des substances chimiques*. Version N° 1-2/juin 2003.

INRS – Métropol. *Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)*. Fiche 011/V01, 8/03/2005 (<http://www.inrs.fr>).

Jacob V., Denis I. et Foster P., *La métrologie des composés organiques volatils (COV) : méthodes et difficultés*. Analysis Magazine, 1998, 26, N°9, p. 33-37.

Jacobowicz I., *Fours industriels*. Techniques de l'Ingénieur BE 8 842 – 1, 18p.

Jullien A., Moneron P., Quaranta-Millet G et Gaillard D., *Air emissions from pavement layers composed of varying rates of reclaimed asphalt*. Resources, Conservation & Recycling 47, 356-374, 2006a.

Jullien A et al., *Analyse de Cycle de Vie appliquée à un chantier d'entretien routier sur la RN 76 - Evaluation technique et environnementale d'une couche de liaison d'enrobé bitumineux pour différents taux de recyclage*, ERLPC, 2006b

Kennedy I.A. *Models of soot formation and oxydation*. Prog. Energy Combust. Sc., vol 23, pp 95-132, 1997

Korstanje L. J., Visser B. M., Jacobs R. A. A. M. *Correlations between the effects of air preheat temperature, furnace temperature and burner design on the NOx emission of gas fired process burners*. INFUB 1997, Vol 2.

Kriech J., Kurek J., Wissel H, *Effects of mode of generation on the composition of asphalt fumes*. Asphalt Institute - Executive Offices and Research Center (sur http://www.asphaltinstitute.org/Upload/Effects_Mode_Geration_Composition_Fumes.pdf 21/04/2004), 1992.

Kurek J., Wissel H., Kriech A., Osborn L., Blackburn G., *Laboratory Generation and Evaluation of Paving Asphalt Fumes*. Asphalt Institute - Executive Offices and Research Center 1997 (http://www.asphaltinstitute.org/Upload/Lab_Generation_Evaluation_Paving_Asphalt_Fumes.pdf 21/04/2004), 1997.

Labegorre B., Lesieur C., Salentey L., Vervisch L. et Sautet JC. *Turbulent combustion in a separated-jets burner*. Joint International Combustion Symposium, Kauai, Hawaii, USA. Sept 2001.

Lamontagne Jérôme, Durrieu Françoise, Mouillet Virginie, Planche Jean-Pascal, Kister Jacky. *Application de la microspectroscopie infrarouge à l'étude du vieillissement de bitumes-polymères*, Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées N°240, pp 15-25. ISSN 1269-1496. 2002.

LCPC - Laboratoire Central des Ponts et Chaussées-. *Pouvoir prédictif de l'essai RTFOT, compte-rendu de synthèse de l'expérimentation*. Série chaussées, 1992.

LCPC - Laboratoire Central des Ponts et Chaussées-. *Susceptibilité au vieillissement des bitumes. Expérimentation A08*. Collectif du sous-groupe Qualité des bitumes. Avril 1997.

MA 400 – HAP - *Méthode d'analyse : Détermination des hydrocarbures aromatiques polycycliques : dosage par chromatographie en phase gazeuse couplée à un spectromètre de masse*. Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec. Edition 05-12-2001. Révision 24-11-2003.

Madani T. *Distribution des temps de séjours et réseaux de neurones formels pour la caractérisation des tambours-sécheurs-enrobeurs en vue de leur commande*. Thèse de doctorat – Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines, novembre 2005.

Mahajan T.B., Plows F.L., Gillette J.S., Zare R.N., Logan G.A. *Comparison of Microprobe Two-Step Laser Desorption/Laser Ionization Mass Spectrometry and Gas Chromatography/Mass Spectrometry Studies of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Ancient Terrestrial Rocks*. American Society for Mass Spectrometry, 2001.

Maillard S. *Fissuration et autoréparation des liants bitumineux – apports de l'essai de Rupture Locale Répétée sur Bitume*. Thèse de Doctorat. École Centrale de Nantes et Université de Nantes. 2005.

Marvillet, J. et Verschaeve, A. *Contribution à l'étude de l'évolution des bitumes à l'enrobage*. Eurobitume, 1981.

McGowan A., Hawkins J. Cosa Instruments Corporation. *Theoretical introduction to the use of a residual oxygen measurement method for the analysis of combustion air requirement index (CARI) and Wobbe index of fuel gases*, 2005.

Miller C.A., Srivastava R.K. *The combustion of Orimulsion and its generation of air pollutants*. Progress in Energy and Combustion Science, Vol 26, 131 – 160, 2000.

Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement, *Note méthodologique sur les études d'environnement dans les projets routiers « volet air »*.

Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement, *Note méthodologique sur les études d'environnement dans les projets routiers « volet air - Annexe technique à la note méthodologique sur les études d'environnement »*.

Monéron P. *Bilan énergétique par centrales d'enrobage et apport par la compréhension du fonctionnement des Tambours Sécheurs Enrobeurs*. Journées Sciences de l'Ingénieur, Giens, France, 1994a.

Monéron P. *Bilan énergétique sur centrales d'enrobage*. Rapport 1 33 32 4, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, 1986.

Monéron P. *Économies d'Énergie sur Centrales d'Enrobage*. Rapport du Laboratoire des Ponts et Chaussées, 74p., 1993b.

Monéron P. *Emission de particules solides dans l'atmosphère lors de la fabrication des enrobés bitumineux*. Études et recherches des Laboratoires des Ponts et Chaussées, 67p., 1994b.

Monéron P. *Régénération et Recyclage des Enrobés – Évolution des Centrales Tambour – Sécheur – Enrobeur et de leur Aptitude à l'Utilisation des Matériaux Recyclés*. Bulletin de Liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées. N°184, 3-17, 1993a.

Monéron P., Jullien A., Ventura A., *Analyse de mesures d'émissions gazeuses sur le TSM 17 du Parc Routier de Blois – Inventaire de conditions de fabrication d'une grave bitume de classe 2*, rapport de contrat n° TGCE/SDD/03-06 , 55 p. + annexes, juin 2006.

Monéron P., Ventura A., Paranhos R., Jullien A., Schemid M., Lombardi B. et de Sars T. *Airbone emissions of a hot mix asphalt process*. Transport Research Board of the National Academies, 86th Annual Meeting, January 21-25 2007.

Niemeier R.W., Thayer P.S., Menzies K.T., von Thuna P., Moss C.E. et Burg J. *A Comparaison of the Skin Carcinogenicity of Condensed Roofing Asphalt and Coal Tar Pitch Fumes*. In Polyaromatic Hydrocarbons: A Decade of Progress, Tenth International Symposium, pp. 609-647, Cooke and A.J. Dennis Eds. Battelle Press, Columbus, OH, USA, 1988.

NIOSH. U.S. Depart of Health, Education and Welfare, *Hazard Review – Health Effects of Occupational Exposure to Asphalt*. N° 2001-110, 132p., 2000.

NIOSH. Manual of Analytical Methods (NMAM), U.S. Depart of Health, Education and Welfare, Fouth Edition. *Benzene-Soluble Fraction and Total Particule (Asphalt Fume), Methode 5042, Issue 1*, 1998.

NIOSH. Manual of Analytical Methods, U.S. Depart of Health, Education and Welfare, *Polynuclear Aromatic Hydrocarbons by HPLC. Method 5506*, Janvier 1998.

Nouvion S., Ventura A., Jullien A., Monéron P. Schemid M., *Emissions à l'atmosphère liées à l'élaboration d'enrobés en centrale d'enrobage à chaud*, Congrès européen ORGAGEC, Nantes, 9p, 4-5octobre 2005.

Paranhos R., Monéron P., Jullien A., de-La-Roche C et Sautet JC. *Etude de la combustion dans une centrale d'enrobage*. 17^{ème} Congrès Français de Mécanique, 2005.

Paranhos R., Béguin A., Petiteau C., Monéron P. et de La Roche C. *Laboratory characterization on hot mix asphalt fumes during mixing linked with mechanical performances*. ICAP Québec 2006 - 10th International Conference on Asphalt Pavement, August 12 to 17, Quebec city, 2006.

Paranhos R., de La Roche C., Jullien A. et Sautet J-C. *Caracterização em laboratório das emissões do CBUQ*. Magazine ESTRADAS (Porto Alegre, Brésil), ISSN 1807-426X N.10, p. 65-72, août 2006.

Paranhos R., Ventura A., Jullien A., Monéron P. *Smoke-stack airborne emissions of a hot mix asphalt plant for life cycle inventory available data*. 2nd International Conference on Green and Sustainable Chemistry and 9th Annual Green Chemistry and Engineering Conference, Washington DC, June 20-24, 2005.

Petersen J.C., *A thin film accelerated aging test for evaluating asphalt oxidative aging*. Proceedings Association of Asphalt Paving Technologists, Preprint volume, 1989.

Pickenäcker K., Trimis D., Wawrzinek K. *Excess air controlled operation of boilers and furnaces by means of Wobbe number measurement*. INFUB 2000, Vol 1.

Ramond G., Bononi A., Pastor M. *Modification des caractéristiques rhéologiques des bitumes au cours de leur évolution à l'enrobage*. Bulletin de liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées. Thématique – Bitumes et enrobés bitumineux, Numéro hors série 3-13, 1992.

Ramond G, Bononi A., Pasto M.. *Modification des caractéristiques réhologiques des bitumes au cours de leur évolution à l'enrobage*. Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées N° 168, juillet- août 1990a.

Ramond G., Such C. *Bitumes et bitumes modifiés. Relations structures, propriétés et composition*. Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées. Thématique – Bitumes et enrobés bitumineux, Numéro hors série 23-45, 84 p., 1990b.

Ramond G., Such C. *Le module complexe de liants bitumineux – traitement des résultats expérimentaux, influence de la nature du liant, évolution au vieillissement, relation entre le module du liant et celui des composites*. Études et recherches des Laboratoires des Ponts et Chaussées. Routes CR32, 2003.

Rechatin C. et al. *Indicateurs de performance environnementale de la France*. Institut Français de l'Environnement, 1997.

Régis C., *Cours de routes. Assises de chaussées*. Edition ENPC. 144 p, 1985.

Reinke G., Swanson M., Paustenbach D., Beach J. *Chemical and mutagenic properties of asphalt fume condensates generated under laboratory and field conditions*. Genetic Toxicology and Environmental Mutagenesis, Vol. 469, 41 – 50, 2000.

Renoux A., Boulaud D. *Les Aérosols – Physique et métrologie*. Ed. Lavoisier Technique & Documentation, 1998.

Rogaume Y.; Gadiou R. ; Schwartz D. ; Jabouille F. ; Auzanneau M. ; Goudeau J.-C. *Reducing NO_x emissions during incineration. Industrial furnaces and boilers*. European Conference N° 5, Espinho-Porto , PORTUGAL avril 2000.

Rogge W.F., Hildemann L.M., Cass G.R., Simoneit B.R. *Sources of Fine Organic Aerosol*. Environmental Science and Technology, Vol.31, pp 2726 – 2730, 1997.

Salentey L., Boushaki T., Sautet JC., Labégorre B.. *Structural aspects of oxy-flames in a separated-jets burner*. European Combustion Meeting. Belgique, 2005.

Samaniego N., Labégorre B., Egolfopoulos F.N., DiTaranto M., Sautet J.-C. et Charon O. *Mechanism of Nitric Oxide Formation in Oxygen-Natural Gas Combustion*. Twenty-Seventh Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp. 1385 – 1392, 1998.

Sautet JC, Salentey L., Boushaki T., et Labégorre B. *Measurements in oxy-flames generated by a separated-jet burner*. European Combustion Meeting. Orléans, France, 2003.

Sautet JC., Boushaki T., Salentey L. et Labégorre B.. *Oxy-combustion of interacting separated jets*. Combustion Science and Technology, 178, pp 2075-2096, 2006.

Sautet JC., Salentey L., DiTaranto M. et Samaniego JM.. *Effects of the confinings on the measured lengths of natural gas-oxygen, non-premixed flames*. Combustion Science and Technology, 166, 131-150, 2001.

SETRA – Guide technique- *Conception et dimensionnement des structures de chaussées*. Ed LCPC-SETRA, Paris, décembre 1994.

SESA – Département de La Sécurité de l'Environnement – Service des eaux, sols et assainissement. *Déchets de démolition des routes*. Directive cantonale, 2002.

Shell Bitumes. *Bitumes – Techniques et utilisations*. 1991.

Siegmann K., Satter K. *Formation mechanism for polycyclic aromatic hydrocarbons in methane flames*. Journal of Chemical Physics. American Institute of Physics. Vol 112, N° 2, p 698 – 709, 2000.

Sivak D.A., Menzies K. T., Betes, K., Wortington, A., Ross, A. and Latta, R. U.S. Department of Health and Human Services contract (NIOSH), 200-83-2612, 1989.

Strategic Highway Research Program. National Research Council - SHRP-A-383. *Selection of Laboratory Aging Procedures for Asphalt-Aggregate Mixtures..* ISBN 0-309-05762-0, 1994.

Strategic Highway Research Program. National Research Council - SHRP -A-384. *Aging : Binder Validation. Strategic Highway Research Program.* ISBN 0-309-05802-3, 1994.

Swanson M. *Combustion*. Hot-Mix Magazine. Vol. 7, N°2, 2003.

Tang B., Lu X, Isacsson U. *Asphalt Emissions – Health Aspects, Sampling and Analysis*, Royal Institute of Technology. Department of Infrastructure and Planning. Kungl Tekniska Högskolan, Stockholm. Report, 1999.

Tang S., Johnson R., Lami T., Webster W., Tagliaferro T., Munn J., Barnes C., Newkirk K., Rivenburgh D., Guerrieri D. *Monitoring of PM-bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Diesel Vehicles by Photoelectric Aerosol Sensor (PAS)*. Automotive Emissions Laboratory – New York State Department of Environmental Conservation, 2001.

Thayer, P.S., Menzies, K.T. and Theina, P.C. U.S. Department of Health and Human Services contract (NIOSH), 210-78-0035, 1981.

Toupance G. et Person A. *Pollution atmosphérique gazeuse. Principes de mesure*. Techniques de l'Ingénieur P 4 030, 2005 a.

Toupance G. et Person A. *Pollution atmosphérique gazeuse. Recommandations techniques*. Techniques de l'Ingénieur P 4 032, 2005 c.

Toupance G. et Person A.. *Pollution atmosphérique gazeuse. Mesures des gaz*. Techniques de l'Ingénieur P 4 031, 2005 b.

Tremblay G., Viateur B., Picard JF. *Conséquence du chauffage des granulats sur la performance des enrobés*. Bulletin d'information technique – DLC Québec. Vol. 1, N°11, 1996.

USIRF – Union des syndicats de l'industrie routière française. *Les enrobés bitumineux* – Tome 1, 2001.

Ventura A., Hoang T., Jullien A. et Monéron P. *Integrating Lifetime Aspects into Initial Evaluation of Road : How to proceed ?* 2nd International Symposium of Integrated Lifetime Engineering of Buildings and Civil Infrastructures. Kuopio, Finland, pp 67-72, Décembre 1-3, 2003.

Ventura A., Monéron P., Jullien A., Schemid M. et Paranhos R. *Approche multi-échelle de la collecte des données sur une centrale d'enrobage*. Risques sanitaires et environnementaux, Congrès européen ORGAGEC, p. 187-197, 4-5 octobre 2005.

Veynante, Denis. *Flamme de diffusion laminaire*. Techniques de l'Ingénieur BE 8-320, 18p., 1987

Virranainen V. *Prélèvements et analyses des fumées émises lors de la fabrication d'enrobés bitumineux, en fonction des paramètres de fabrication*. Rapport de stage – Master 2 Professionnel « Analyse et Contrôle des produits industriels », Université de Nantes, août 2006.

Vo-Dinh T., Fetzer J, Campiglia A.D. *Monitoring and characterization of polyaromatic compounds in the environment*. Talanta 47 943-969, 1998.

Wagner H.G.G. *Soot formation in combustion*. 17th Int. Symp. On Combustion, The Combustion Institute, pp 3-19, 1978

Wallcave L., et al. *Differences between petroleum asphalt, coal-tar pitch and road tar*. Research Report 78-1. College Park MD : Asphalt Institute, 1971.

Whiteoak D. *The Shell Bitumen Handbook*. Publish by Shell Bitumen U.K., 1990.

Williams, M.L., Landel, R.F. et Ferry, J.D. *The temperature dependence of relaxation mechanism in amorphous polymers and others glass-forming liquids*. J. Am. Chem. Soc., vol 20, p. 3701-3707, 1955.

Xie L, Hayashi S, Hirose K. *NO_x formation in turbulent lean-premixed combustion with minimum heat losses*. The combustion Institute. Twenty-Sixty Symposium on Combustion, pp 2155-2160, 1996.

Zeldovich A. *Acta Physicochim*. URSS 21,577, 1946

LEXIQUE

- **Analyse de Cycle de Vie (ACV)** : L'ACV est une méthode normalisée caractérisant les charges environnementales de l'ensemble des activités associées à un produit ou un service. Elle recense notamment les quantités de matière et d'énergie entrant et sortant du système considéré.
- **Béton bitumineux semi-grenu (BBSG)** : couche de roulement qui subit directement les agressions du trafic et du climat ;
- **Bitume soufflé** : Bitume oxydé par soufflage d'air dans un bitume ou un bitume fluxé à chaud.
- **Carbonyl** : Fonction chimique $C=O$ se formant lors de l'oxydation ;
- Combustion complète en défaut d'air : c'est la combustion donnée par 1 Nm^3 de gaz associé à un volume d'air inférieur à l'air stœchiométrique ;
- Combustion complète en excès d'air : c'est la combustion donnée par 1 Nm^3 de gaz associé à un volume d'air supérieur à l'air stœchiométrique ;
- Combustion incomplète : c'est la combustion donnée par 1 Nm^3 de gaz associé à un volume d'air quelconque et, en raison de conditions défavorables, une partie du gaz ne participe pas à la combustion ;
- Combustion stœchiométrique : c'est la combustion donnée par 1 Nm^3 de gaz associé à un volume d'air égal à l'air stœchiométrique ;
- Composé aromatique polycyclique (CAP) : composé contenant d'au moins deux cycles d'atomes de carbone du type benzène (cycle hexagonal avec trois double liaisons alternées avec trois liaisons simples) ;
- Composé organique : composé contenant au moins l'élément carbone et un ou plusieurs éléments suivants : hydrogène, halogène, oxygène, soufre, phosphore, silicium, ou azote (à l'exception des oxydes de carbone et des carbonates et bicarbonates minéraux) ;
- Composés organiques totaux émis (COT) : ensemble des composés organiques gazeux émis, comprenant donc les COV, les SV et tout autre matière organique se trouvant sous forme particulaire (exemple : HAP lourds) ;
- Composé organique volatil (COV) : tout composé organique, à l'exclusion du méthane, ayant une pression de vapeur de 0,01 kPa ou plus à une température de 293,15 Kelvin ou ayant une volatilité correspondante dans des conditions d'utilisation particulières. (Définition de l'arrêté du 29 mai 2000) ;
- Composé organique volatil non méthanique (COVNM) : tout composé organique volatil sauf le méthane ;
- Composés organiques semi-volatils (COSV) : composés organiques ayant une pression de vapeur saturante comprise entre 10^{-6} et 5.10^{-3} Pa, à 293 Kelvin ;
- Détecteur FID : détecteur à ionisation de flamme (FID) utilisé en chromatographie gazeuse. Dans le cadre de la thèse, c'est le détecteur utilisé dans l'analyseur « SRA-modèle 901 MET-NMET/TOC Mercury » ;

- Distillation simulée : normalement réalisée par Chromatographie en Phase Gazeuse (CPG), est basée sur le principe de séparation des composés, constituant l'échantillon à analyser, dans l'ordre de leur température d'ébullition ;
- EAPA : European Asphalt Pavement Association ;
- Entrées d'air : : il s'agit de l'air ambiant qui pénètre dans l'enceinte de la centrale par d'autres entrées que celle prévue au niveau du brûleur ;
- Goudron : terme générique s'appliquant à tout produit liquide, huileux, visqueux, de couleur brune ou noire, à forte odeur empyreumatique, obtenu par la distillation sèche de nombreuses matières organiques comme la houille, le bois etc. Le goudron de houille fut très utilisé en techniques routières. Il est en produits organiques depuis le benzène et ses dérivés jusqu'aux HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques) et CAP (composés aromatiques polycycliques renfermant des hétéro-atomes ;
- Grave-bitume (GB) : couche d'assise qui apporte à la chaussée, la résistance mécanique aux charges verticales induites par le trafic ;
- Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP): composés organiques, contenant uniquement du carbone et de l'hydrogène, et constitué par au moins 2 cycles aromatiques condensés. Peuvent faire partie de la fraction des Semi-volatils ou se trouver adsorbés à la surface de poussière minérale ;
- Luminescence : caractère propre à de nombreuses substances d'émettre de la lumière sous l'effet d'une excitation. Ce phénomène, produit avec un excellent rendement énergétique, prend le nom de chimiluminescence ;
- Matière particulaire totale (MPT) : partie « aérosol » des fumées du bitume. Elle comprend la partie minérale des fumées du bitume (poussière en provenance des granulats) et les MSB ;
- Matière soluble dans le benzène (MSB) : Partie organique des MPT du bitume et contenant des HAP ;
- Module de richesse : caractéristique de l'épaisseur de bitume à la surface des granulats. Est calculé en fonction des proportions des différentes classes granulométriques de la formule ;
- Nm³ : volume de référence appelé normal mètre cube. C'est la quantité de gaz qui, à une température de zéro (0) degré Celsius (273,15 Kelvin) et sous une pression absolue de 1,01325 bar (une atm au niveau de la mer), occupe un volume de un (1) mètre cube [http://www.thermexcel.com/french/ressour/gaz_comb.htm] ;
- Pénétrabilité : essai qui mesure la consistance exprimée comme la profondeur, en dixièmes de millimètre, 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 ;
- PCI : pouvoir calorifique inférieur du combustible liquide ou gazeux ;
- Potentiel d'émission (PE) : capacité du bitume ou de l'enrobé, à émettre de la fumée, pendant une durée donnée. Quantitativement, il représente l'aire sous la courbe d'émission ;
- Pouvoir calorifique : d'un combustible est la quantité de chaleur dégagée par la combustion complète sous pression atmosphérique normale de 101,3 kPa , de l'unité

de quantité de combustible, le combustible plus le carburant étant à 0 °C et les produits de la combustion étant à 0 °C. ;

- Pouvoir calorifique supérieur (PCS) : quand l'eau qui en résulte de la combustion du gaz hydrogène et des hydrocarbures est supposée ramenée à l'état liquide dans les produits de combustion. ;
- Pouvoir calorifique inférieur (PCI) : quand cette eau de combustion est supposée à l'état de vapeur dans les produits de combustion. Le rapport entre PCI et PCS dépend de la proportion des éléments carbone et hydrogène dans le gaz combustible. Pour les combustibles gazeux usuels : $PCI/PCS = 0,9$;
- Pouvoir calorifique par unité de masse : est le rapport PCS/ρ qui s'exprime donc en kWh/kg. Cette définition est importante quand on compare des gaz différents fournis liquéfiés hors de l'industrie gazière.
- Pouvoir comburivore (V_a) : ou air stoechiométrique d'un gaz est la quantité d'air nécessaire et suffisante pour assurer la combustion complète de l'unité de volume de ce gaz ;
- Pouvoir fumigène (V_{f0}) : est le volume, ramené aux conditions normales des produits de la combustion de 1Nm³ de gaz associé à l'air stoechiométrique ;
- Résine XAD-2 : copolymère de styrène-divinylbenzène, utilisé pour piéger les composés organiques semi-volatils ;
- Semi-Volatil (SV) : Les composés organiques semi-volatils sont des hydrocarbures dont la pression de vapeur est comprise entre 0,1 et 10⁻⁷ mm Hg et le point d'ébullition est compris entre 100 et 325 °C ;
- Sulfoxyde : Fonction chimique S=O ;
- Température de ramollissement Bille et Anneau (TBA) : essai qui consiste à déterminer la température pour laquelle un anneau de bitume supportant une bille d'acier, se déforme en s'allongeant jusqu'à atteindre un repère situé à une distance prédéterminée ;
- Teneur en liant : pourcentage massique de bitume dans la composition totale d'un enrobé bitumineux ;
- Thiol : auparavant nommé mercaptan du latin (*mercurius captans*) est un composé organique comportant un groupement thiol -SH (groupement sulfhydryle) attaché à un atome de carbone. Ce sont en général des composés à forte odeur.
- Vapeur humide : Vapeur contenant une importante quantité de particules d'eau en suspension (ébullition inachevée) ;
- Vapeur surchauffée : Vapeur se trouvant à une température supérieure à la température de saturation et ne contenant plus de particules d'eau en suspension ;
- Vieillissement du bitume : altération des propriétés chimiques et physiques du bitume ;
- Vitesse de fumées : vitesse de rejets gazeux dans la cheminée, calculée avec la pression dynamique mesurée avec un tube de Pitot sur les gaz aux conditions de service ;
- Volatilité d'un composé organique : est définie par sa constante de tension de vapeur à 20 °C ;

- Volatilité du bitume : notée Rec450, correspond au pourcentage de la masse du bitume distillé dont le point d'ébullition est inférieur à 450 °C ;

ANNEXES

1 Essais de caractérisation du bitume

1.1 Extraction du liant

Appelée « méthode de Rouen » (NF EN 12697-3) [AFNOR, 2005b], cette méthode est classiquement utilisée pour extraire le bitume d'un enrobé bitumineux, en vue de réaliser des essais de caractérisation (pénétrabilité, TBA) et des contrôles par Infrarouge. Cette méthode, qui permet de récupérer environ 150 g de bitume, comprend plusieurs étapes (Figure A – 1) :

- i. Etape 1 : on fait chauffer 3 kg d'enrobé bitumineux pendant une durée de 2 heures (programmer à veille) à 100 °C ;
- ii. Etape 2 : on mélange ce prélèvement à 3 litres de solvant (perchloréthylène), pour solubiliser l'enrobé et le bitume ;
- iii. Etape 3 : on agite ensuite pendant 40 minutes;
- iv. Etape 4 : puis on procède à une filtration du mélange sur deux tamis de dimensions 1 mm x 0,8 mm et 80 mesh pour pouvoir séparer les granulats et une partie des fines du mélange ;
- v. Etape 5 : on sépare ensuite la totalité des fines du mélange bitume et perchloroéthylène par centrifugation, pendant environ 60 minutes ; afin d'obtenir une centrifugation efficace ; cette étape doit être répétée deux fois ;
- vi. Etape 6 : on distille le mélange à l'aide de l'évaporateur rotatif (rotavapor) équipé d'un système réfrigérant, afin d'évaporer le solvant perchloroéthylène ; on récupère le bitume pur extrait d'un côté, et le solvant de l'autre. On distingue plusieurs phases :

Phase 1 – on commence la distillation à une température de 90 °C pendant deux à trois heures, en imposant une pression de 100 mbar ;

Phase 2 – lorsque nous avons récupéré la totalité du solvant, on porte progressivement le bain d'huile à une température de 170 °C afin d'éliminer toute trace de solvant ;

Phase 3 – à ce moment, on diminue la pression du système de distillation jusqu'à 30 mbar, tout en maintenant une différence de pression de 2 mbar, pendant 15 minutes ;

Phase 4 – on vérifie ensuite, par spectroscopie infrarouge, que tout le solvant perchloroéthylène s'est totalement volatilisé, et qu'on a un bitume extrait pur ; si c'est le cas, l'extraction a été réalisée avec succès ; sinon il convient de maintenir de nouveau le mélange pendant 15 minutes à 170 °C.

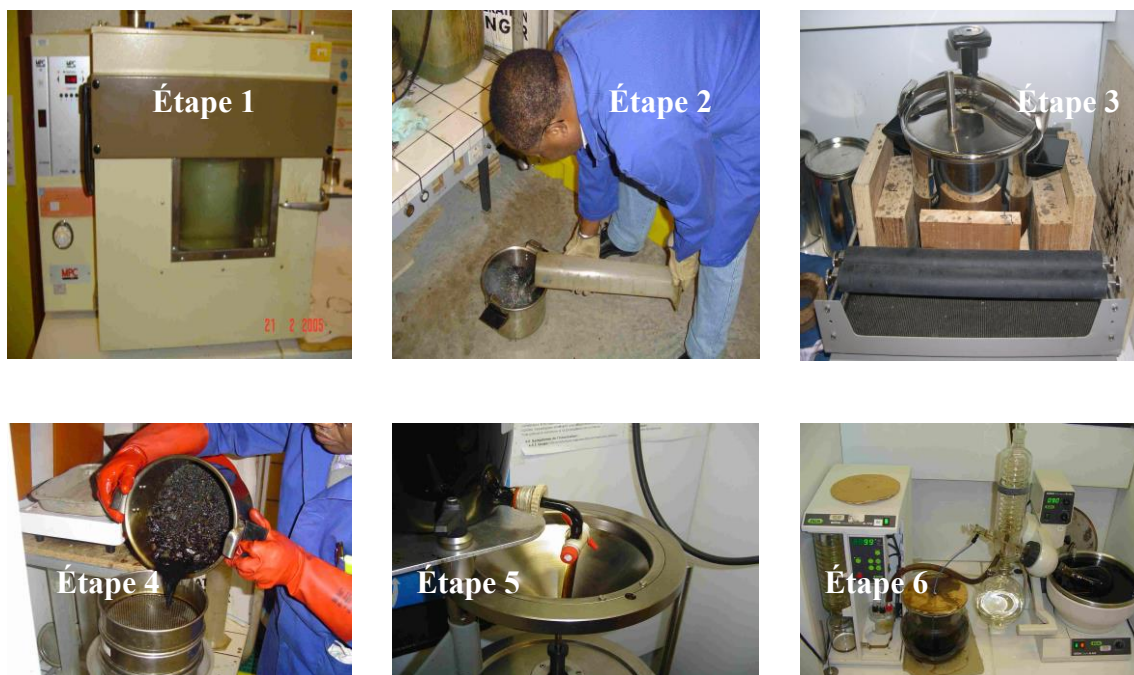


Figure A - 1 – Les des étapes de l'extraction du liant

Une deuxième méthode d'extraction peut être envisagée, l'extraction par SOXHLET. Cette méthode d'extraction est beaucoup plus « douce » que la méthode d'extraction classique (méthode de Rouen) car les températures de chauffage atteintes ne sont plus de 170 °C, mais d'environ 80 °C et son extraction ne se fait pas sous vide, ce qui permet une perte continue des volatils. Toutefois la quantité de bitume récupérée par la méthode SOXHLET est moins importante (environ quelques grammes) et est destinée à d'autres analyses telles que la distillation simulée ou la spectrométrie Infrarouge.

Compte tenu des résultats obtenus, deux questions ont été posées relatives à un problème d'extraction du bitume ou le type d'extraction (peut-il influencer ces résultats ?). Pour répondre à ces questions, nous avons refait une extraction en utilisant la méthode d'extraction par SOXHLET. Malheureusement le résultat d'infrarouge réalisé sur un enrobé a été masqué parce qu'il est resté des fines dans le bitume extrait. Par contre, nous avons fait une extraction « à blanc » en utilisant les deux méthodes décrites, Rouen [NF EN 12697-3] [AFNOR, 2005b] et SOXHLET, pour savoir si l'extraction du bitume peut vieillir encore plus le bitume. Les résultats de la spectrométrie infrarouge des trois essais réalisés sont présentés dans la Figure A - 2.

Les résultats montrent qu'il n'y a pas de différence entre les deux types d'extractions réalisées (Rouen et SOXHLET). En revanche, une petite différence d'oxydation a été trouvée par rapport à l'essai réalisé avec le bitume d'origine.

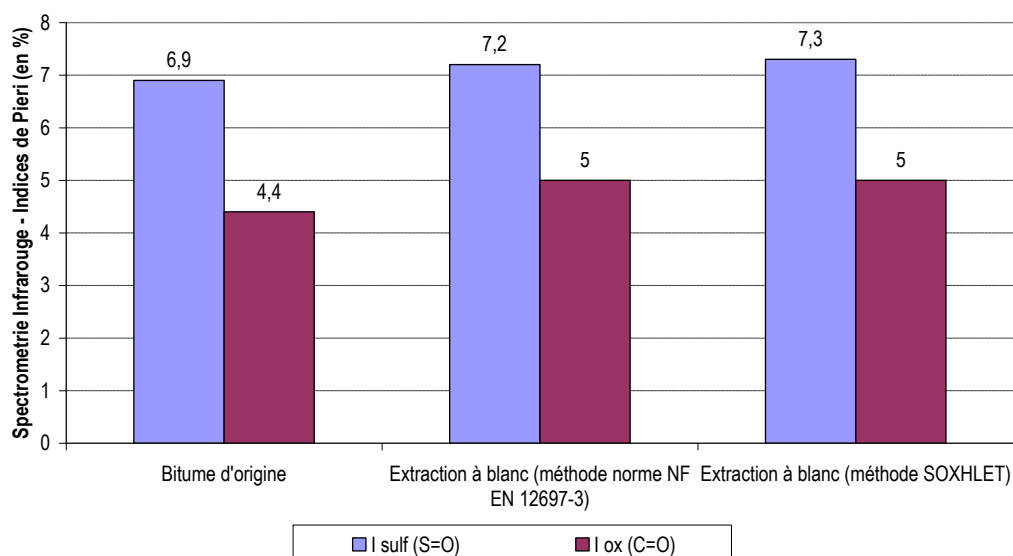


Figure A - 2 – Résultats de la spectrométrie infrarouge sur le bitume d'origine – essais à blanc

1.2 Essais chimiques

1.2.1 Essai de spectrométrie Infrarouge

Les techniques spectroscopiques permettent de suivre le vieillissement du bitume par l'apparition de fonctions sulfoxydes, puis les cétones et enfin carboxyliques. En effet, l'analyse infrarouge permet d'étudier les groupes fonctionnels contenant d'oxygène ou du soufre et ainsi, nous pouvons suivre l'oxydation d'un bitume.

Généralement, l'interprétation d'un spectre infrarouge d'un liant routier peut renseigner sur son état d'oxydation, la présence des principaux additifs (polymères, acides ou tensioactifs), la présence de matières minérales, ou de goudron. Un matériau absorbe partiellement un rayonnement infrarouge pour des longueurs d'onde λ données (ou nombre d'onde $q = 1/\lambda$), qui sont caractéristiques des liaisons chimiques présentes dans les molécules constitutives du matériau. Le spectromètre IRTF soumet un échantillon à un rayonnement infrarouge, et mesure la quantité absorbée en fonction de la longueur d'onde du rayonnement incident. Elle permet d'observer les transitions vibrationnelles des molécules suite à une radiation Infrarouge et donne une idée des groupements fonctionnels en présence. Elle donne aussi des indices qui sont obtenus en faisant le rapport entre les aires de chaque bande déterminée en dessous d'une ligne de base choisie de façon arbitraire au départ, et l'aire totale des bandes. L'indice est donc d'autant plus élevé que l'oxydation ou la sulfoxycité est importante, et donc que le vieillissement est important. Le spectre d'un liant bitumineux ainsi obtenu comporte plusieurs bandes d'absorption caractéristiques.

Le LCPC dispose d'un logiciel développé par Pieri, utilisant pour référence les résultats obtenus sur un bitume standard, qui permet de comparer les indices de sulfoxycité (S=O) et d'oxydation (C=O) correspondant à chaque échantillon analysé, et ainsi de quantifier le vieillissement du bitume.

Afin de représenter les espèces chimiques présentes dans le bitume, Pieri a mis au point des indices spectrométriques calculés à partir des aires des pics. Pour calculer ces indices, il faut définir les bornes d'intégration des bandes de vibration caractéristique d'un bitume. On calcule ensuite les aires entre les bornes d'intégration et les indices de Pieri sont les rapports d'aires. Seuls les indices d'oxydation et de sulfoxyde permettent d'observer le vieillissement chimique par oxydation du bitume. Alors : (1) indice d'oxydation = $A_{I}/\Sigma A$ et

(2) indice de sulfoxyde = $A_6/\Sigma A$, avec $\Sigma A = A_{14} + A_1 + A_2 + A_3 + A_4 + A_0 + A_6 + A_8 + A_9 + A_{10} + A_{11}$ (les indices sont fournis automatiquement par le logiciel intégré au spectromètre du LCPC). La répétabilité des essais a été réalisée au laboratoire et elle est estimée à plus au moins 0,5 % sur la valeur d'indice obtenue.

Le Spectromètre Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) permet l'enregistrement d'un spectre entre 4000 et 400 cm^{-1} , avec une trentaine d'accumulations afin d'augmenter le rapport signal sur bruit (S/B) (Figure A - 3). La vapeur d'eau et le dioxyde de carbone, absorbant les rayons IR respectivement dans les zones 3500-3200 cm^{-1} et 1700-1500 cm^{-1} , et 2200 cm^{-1} , il est nécessaire de réaliser un test au préalable dans l'enceinte à vide avant d'introduire l'échantillon ; les bandes correspondantes à ces éléments sont soustraites au spectre de l'échantillon obtenu.

L'analyse par Spectroscopie Infrarouge est nécessaire, mais pas suffisante pour conclure au vieillissement d'un bitume. En effet, elle vient généralement compléter les essais de caractérisation du bitume, à savoir la mesure de pénétrabilité et de la température de ramollissement entre bille et anneau (ou TBA). La position, le nombre et l'intensité des bandes renseignent sur la nature et la concentration des groupements fonctionnels (OH, C=O,...) et structuraux (CH_2 , CH_3 , C=C,...) présents au sein de l'échantillon analysé. Dans notre domaine d'étude, seuls les indices des fonctions carbonyl et sulfoxyde nous intéresseront, car ils représentent le vieillissement chimique par oxydation du bitume.

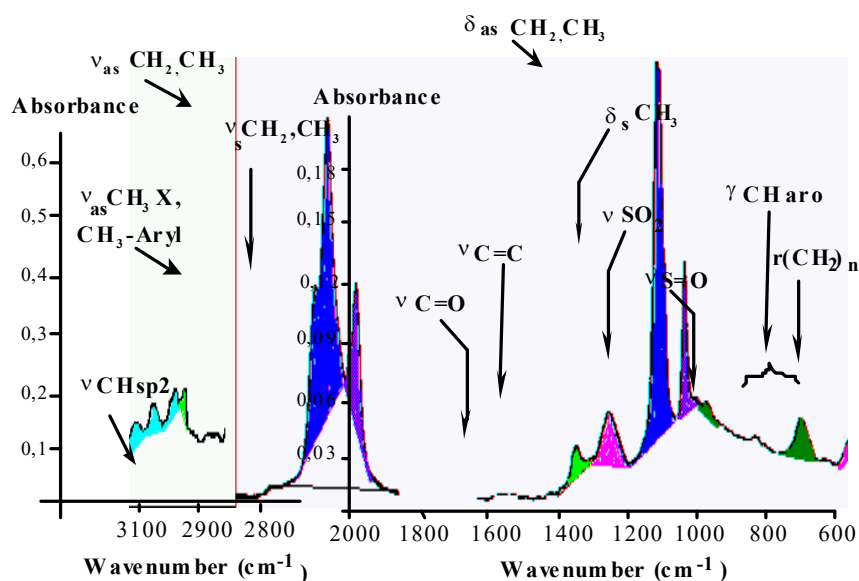


Figure A - 3 - Exemple d'un spectre d'infra rouge par transformé de Fourier (IRTF) caractéristique du bitume

1.2.2 Essai de distillation simulée

La présence, soit volontaire, soit accidentelle (pollution au cours du transport, de l'enrobage, ou sur le chantier) dans le bitume de produits volatils nécessite un contrôle dans la mesure où ces derniers modifient les caractéristiques du liant dans le temps, et favorise le phénomène de durcissement. En application routière, cette technique sert de support à détecter la présence des polluants (goudron, fluidifiant du bitume). La distillation simulée permet, aussi, de voir s'il y a un vieillissement du bitume par évaporation concernant les composés volatils présents dans le liant. Cette technique d'analyse, dans le cadre de la thèse, a surtout permis de déterminer la volatilité du bitume : en effet, à partir des températures d'ébullition fournies par le temps de rétention de chaque fraction volatile et du pourcentage distillé détecté.

La distillation simulée, réalisée par Chromatographie en Phase Gazeuse (CPG), est basée sur le principe de séparation des composés, constituant l'échantillon à analyser, dans l'ordre de leur température d'ébullition. Il est possible de faire une corrélation entre les temps de rétention des composés sur la colonne chromatographique et leur température d'ébullition, afin d'obtenir une courbe de distillation (Figure A-4). Un Détecteur à Ionisation de Flamme (FID) permet de quantifier le pourcentage distillé par rapport à un étalon externe en intégrant la surface sous le chromatogramme. Si la séparation est bonne, chaque pic correspondra à une espèce chimique. Si l'injection est correcte, la surface des pics représente la quantité de chaque soluté.

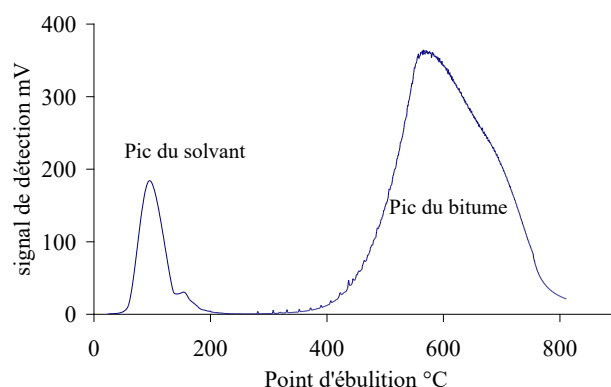


Figure A - 4 – Schéma de séparation chimique des constituants du bitume [LCPC]

La distillation donne une corrélation entre les temps de rétention des composés sur la colonne chromatographie et leur température d'ébullition et il est possible d'obtenir une courbe de distillation. Par contre, le procédé nécessite un étalonnage externe. L'étalon externe se constitue de n-alcanes de C5 à C120 dont on connaît les températures d'ébullition. Chacun de ces alcanes sort de la colonne avec un temps de rétention donné. Il est possible ainsi d'établir la corrélation temps de rétention / température d'ébullition. Ensuite, par chaque échantillon étudié, on enregistre un chromatogramme sur lequel est représentée la sortie des composés, repérée par un pic, selon leur temps de rétention. A partir de la calibration réalisée, on peut faire correspondre une température d'ébullition à chaque temps de rétention obtenu. Le temps de rétention est alors utilisé comme l'équivalent de la température de distillation. Le chromatogramme obtenu permet donc de tracer la courbe % de produit distillé en fonction de la température, nécessaire pour étudier le vieillissement du bitume par évaporation.

Le chromatographe utilisé est équipé d'un injecteur diviseur, d'une colonne capillaire et d'un détecteur à ionisation de flamme (FID). La phase mobile est un gaz vecteur (hélium) qui circule en permanence dans la colonne. L'appareillage nécessaire est le suivant :

- L'injecteur : le type utilisé est l'injecteur à diviseur de flux (splitter). Le gaz vecteur circule, hélium, qui pénètre dans l'injecteur se divise en deux flux : 1 % pénètre dans la colonne et 99 % s'échappent par fuite dans l'atmosphère. Cette technique permet des injections très faibles, de l'ordre de 1 à 10 μL ;
- La colonne : le type utilisé est capillaire. Dans ce type de colonne, la phase stationnaire est déposée sous la forme d'un film régulier, d'épaisseur 0.1 à 5 μm , adhérent à la paroi interne du capillaire. Ces colonnes ont un diamètre variant de 0.05 à 0.6 mm pour une longueur typique de 10 pouvant aller jusqu'à 100 m. La colonne est placée dans le four du chromatographe afin de la mettre à la température voulue ;
- Le détecteur : le type utilisé est le détecteur à ionisation de flamme (FID = Flamme Ionisation Detector). Ce détecteur est le plus couramment utilisé pour détecter les substances organiques hydrocarbonées.

Il y a production d'une flamme selon le principe suivant : le combustible (hydrogène) est mélangé au gaz vecteur (hélium), puis brûlé dans un excès de comburant (l'oxygène de l'air). Les composants de l'échantillon, séparés lors de leur passage dans la colonne, sont brûlés dans la flamme. Il y a alors un arrachement de protons et formation d'ions. Ces ions sont alors collectés par une électrode de polarisation portée à un potentiel de 200 V. Le passage d'un composé brûlé et ionisé provoque une variation de potentiel entre cette électrode et l'électrode de détection. Cette variation est amplifiée et transmise au détecteur.

1.2.3 Composition chimique du bitume au IATROSCAN

La séparation des bitumes en familles génériques peut être réalisée par IATROSCAN, selon le mode opératoire développé au LCPC. Il s'agit de séparer des composés insolubles dans le n-heptane appelés « asphaltènes » et de composés solubles dans le n-heptane appelés « maltènes ». Les « maltènes », regroupent trois espèces chimiques : les saturés, les aromatiques et les résines (Figure A - 5).

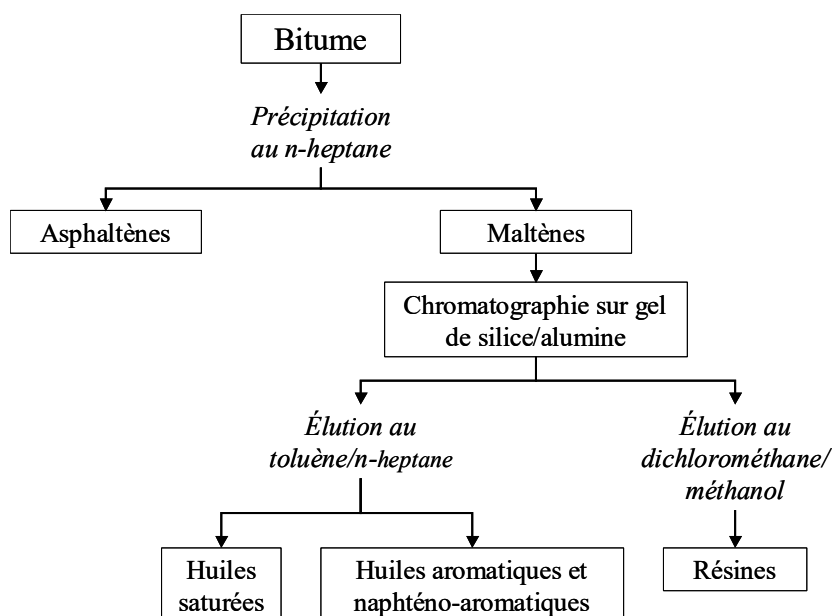


Figure A - 5 – Schéma de séparation chimique des constituants du bitume [LCPC]

Mode opératoire LCPC :

Solvants utilisés : chloroforme pour HPLC, n-heptane pour HPLC, dichlorométhane pour HPLC et méthanol pour HPLC.

Matériels utilisés : 3 cuves d'élution normales, chromarods SIII et une seringue de 10 μ l à aiguille biseautée.

Mode opératoire :

- Préparation de cuves d'élution (Figure A - 6) :
 - Préparation des cuves une heure avant le début des éluions ;
 - Les solvants sont versés dans chaque cuve afin d'avoir un niveau identique
- Activation des chromatods :
 - L'activation de chromarods se fait avant la préparation des échantillons (vitesse de brûlage 30 sec/chromarods et débit d'hydrogène 160 ml/min) ;
 - Deux passages sont effectués.
- Préparation des échantillons :
 - Préparer une solution bitumineuse de concentration 20 g/l dans du chloroforme
- Développement de l'échantillon :
 - Déposer 1 μ l de solution bitumineuse 5 min. après la mise en solution ;
 - Sécher 1 min dans une étuve à 80 °C ;
 - Eluer dans le n-heptane ;
 - Sécher 1 min dans une étuve à 80 °C ;
 - Eluer dans un mélange toluène/n-heptane (80/20) ;
 - Sécher 1 min dans une étuve à 80 °C ;
 - Eluer dans un mélange dicholométhane/méthanol (95/5) ;
 - Sécher 1 min dans une étuve à 80 °C ;
- Lecture de familles génériques :
 - Après avoir placé les chromarods dans l'appareil (Figure A - 6), attendre 5 min avant d'effectuer le brûlage ;
 - Brûler les chromarods
- Nettoyage des chromarods (après chaque manipulation)

Les composés des solutions bitumineuses sont identifiés par analogie entre leur temps de rétention et celui de composés contenus dans un mélange standard déposé sur le premier rod. La quantification se fait par intégration des pics des chromatogrammes. Un analyseur spécifique est couplé en sortie au logiciel d'exploitation développé.



Figure A - 6 – Détails du IATROSCAN et de la cuve à développement

1.3 Essais physiques

1.3.1 Essai de pénétrabilité

La pénétrabilité est la consistance exprimée comme la profondeur, en dixièmes de millimètre, 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 (Figure A - 7).

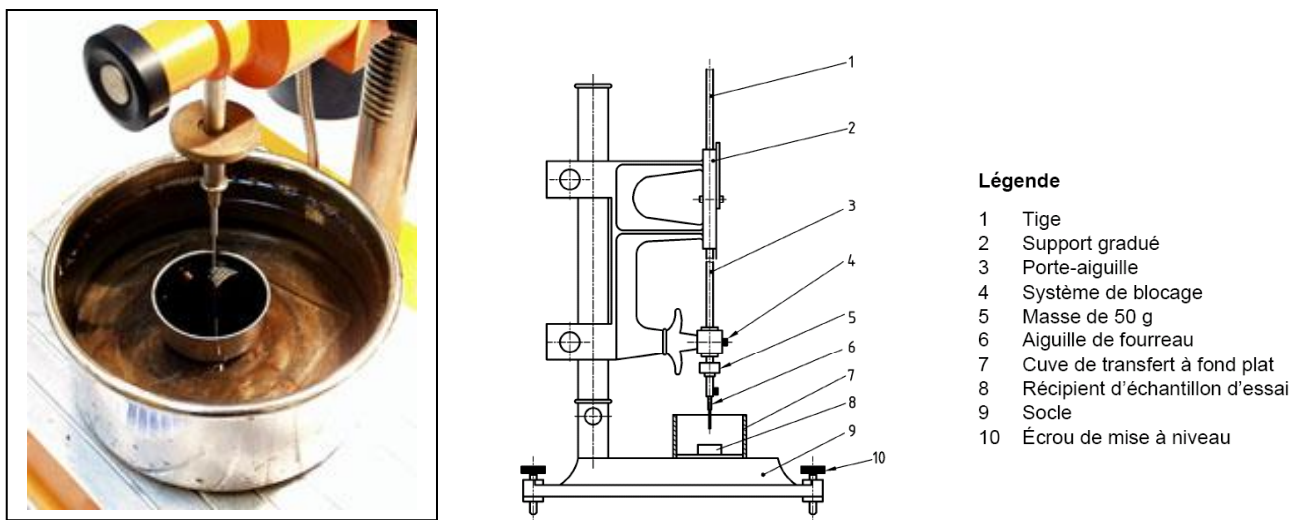


Figure A - 7 - Appareil de mesure de la pénétrabilité

Selon la norme Norme française NF EN 1426 [AFNOR, 1999a], on mesure la pénétration d'une aiguille de référence dans l'échantillon d'essai conditionné. Les conditions opératoires qui s'appliquent aux pénétrations inférieures ou égales à $500 \times 0,1$ mm, sont : température 25°C , charge appliquée 100 g et la durée d'application de la charge 5s. Elle s'exprime en dixièmes de millimètre. Cette mesure peut être réalisée à différentes températures et fournir une information sur la susceptibilité thermique du liant.

Le matériel et la verrerie nécessaires sont les courants de laboratoire, ainsi que : (1) un pénétromètre, dispositif permettant au porte-aiguille de se déplacer verticalement sans frottement mesurable, et permettant la détermination de la pénétration de l'aiguille au dixième de millimètre près ; (2) une aiguille de pénétration, en acier inoxydable trempé à cœur, revenu et poli, de type X105CrMo17(1.4125). La masse de l'ensemble fourreau annulaire/aiguille doit être de $2,50 \text{ g} \pm 0,05 \text{ g}$; (3) récipient d'échantillon d'essai, cylindrique, à fond plat, en verre ou en métal. La profondeur interne du récipient doit être supérieure d'au moins 10 mm à la pénétration attendue et elle ne doit pas être inférieure à 35 mm. Son diamètre intérieur doit être au moins de 55 mm et au plus de 70 mm ; (4) bain-marie, d'une capacité d'au moins 10 l, et capable d'assurer la stabilité de la température de l'échantillon d'essai dans une plage de $\pm 0,1^\circ\text{C}$; (5) cuve de transfert, pour les essais conduits en dehors du bain-marie. Cette cuve doit avoir une capacité minimale de 350 ml et être suffisamment profonde pour permettre au récipient d'échantillon d'essai d'être complètement recouvert d'eau et (6) dispositif de chronométrage, précis à 0,1 s ; (7) thermomètres, à tige solide.

Il faut effectuer au moins trois déterminations validées avec trois aiguilles différentes sur des points de la surface de l'échantillon situés à au moins 10 mm du bord du récipient, et à au moins 10 mm les uns des autres. La plage maximale de déterminations valables, pour les

essais menés dans les conditions d'une température de 25 °C, une charge appliquée de 100 g et un temps de charge de 5 s (Tableau A - 1). Les trois déterminations ne doivent être acceptables que si la plage des déterminations n'excède pas les valeurs données.

Tableau A - 1 - Plage de détermination valables

	<i>Pénétration en 0,1 mm</i>			
	<i>Jusqu'à 49</i>	<i>50 à 149</i>	<i>150 à 249</i>	<i>250 et plus</i>
Ecart maximum entre la détermination la plus élevée et la plus basse	2	4	6	8

La valeur de pénétrabilité est exprimée en dixièmes de millimètre arrondie au nombre entier le plus proche, sous la forme de la moyenne des déterminations acceptables. Considérant la fidélité et la répétabilité d'essai, la différence entre deux résultats successifs obtenus par le même opérateur, avec le même appareillage, dans des conditions opératoires identiques et sur un même produit, ne devrait pas, au cours d'une longue série d'essais effectués en appliquant normalement et correctement la méthode d'essai, dépasser plus d'une fois sur vingt les valeurs données dans le tableau ci-après.

Reproductibilité d'essais : la différence entre deux résultats d'essai uniques et indépendants, obtenus par des opérateurs différents travaillant dans des laboratoires différents sur des produits identiques, en appliquant correctement et normalement la méthode d'essai, ne devrait pas, sur le long terme, dépasser plus d'une fois sur vingt les valeurs données dans le Tableau A - 2.

Tableau A - 2 - Répétabilité et reproductibilité des essais de pénétrabilité

<i>Conditions opératoires</i>	<i>Pénétration en 0,1 mm</i>	<i>Répétabilité r</i>	<i>Reproductibilité R</i>
25 °C, 100g, 5s	< 50	2	3
	≥ 50	4 % de la valeur moyenne	6 % de la valeur moyenne
15 °C, 100g, 5s	≥ 50	5 % de la valeur moyenne	8 % de la valeur moyenne
5 °C, 200g, 60s	< 50	2	4
	≥ 50	9 % de la valeur moyenne	13 % de la valeur moyenne

Protocole de mesures :

Préparation de l'essai : Afin de prélever et manipuler plus facilement le bitume, on le rend plus fluide en le préchauffant à 140 °C pendant environ 1 heure. Il est ensuite homogénéisé puis versé dans deux gobelets de diamètre 55 mm et de profondeur 35 mm. Les deux échantillons sont alors placés quelques minutes à l'étuve pour chasser les bulles d'air formées et qui pourraient fausser les mesures. Enfin, le bitume « coulé » dans les gobelets, est refroidi à l'air ambiant, en le protégeant de toute poussière. Enfin, les gobelets sont placés dans un bain thermostaté à 25 °C, pendant une heure et demie.

Exécution de l'essai : Avant de commencer l'essai, l'aiguille est nettoyée avec un solvant (perchloréthylène). Ensuite, on place un gobelet dans un récipient de transfert, rempli d'eau à 25 °C, afin de maîtriser la température du bitume pendant l'essai, la norme voulant que la mesure se fasse précisément à 25 °C. De plus, le volume d'eau placé au dessus de la surface de bitume va permettre de faciliter la visualisation de l'image de l'aiguille. La position initiale requise pour le test est de mettre en contact la pointe de l'aiguille avec son reflet symétrique, à la surface du bitume. Ce réglage effectué, on peut déclencher la mesure.

L'essai se fait avec un pénétromètre automatique répondant aux spécifications de la norme EN 1426 [AFNOR, 1999a], soit les paramètres suivants :

- Température du bitume : 25 °C ;
- Charge (poids de l'aiguille et de son support) = 100 grammes ;
- Durée de l'essai : 5 secondes.

On réalise, sur le même gobelet, 3 mesures, à des points distants les uns des autres de 10 mm. Les valeurs obtenues sont exprimées en dixième de millimètres.

1.3.2 Essai de Température de Ramollissement Bille et Anneau (TBA)

Ce test consiste à déterminer la température pour laquelle un anneau de bitume supportant une bille d'acier, se déforme en s'allongeant jusqu'à atteindre un repère situé à une distance prédéterminée [NF EN 1427] [AFNOR, 1999b]. 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 lui imposer une déformation irréversible (Figure A - 8).

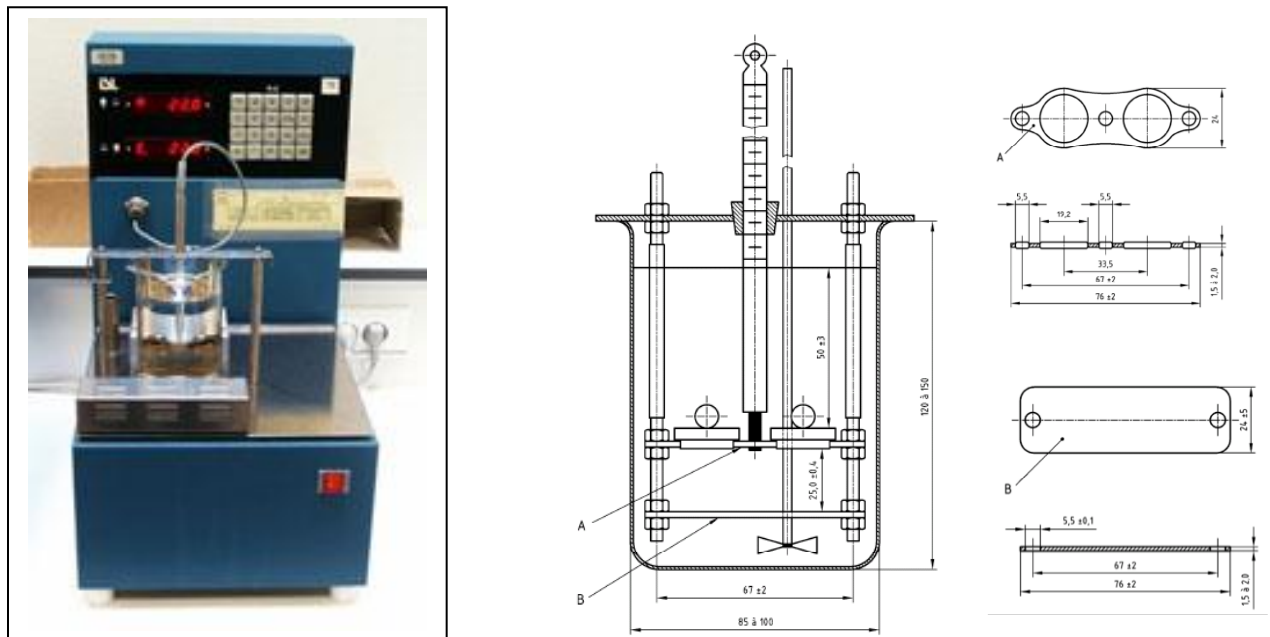


Figure A - 8 - Appareil de mesure de la TBA

La pénétrabilité est d'autant plus faible, et la température du point de ramollissement entre bille et anneau d'autant plus élevée, que le bitume est dur, et donc qu'il est vieilli.

Selon la norme EN 1427 [AFNOR, 1999b], la détermination de la température de ramollissement (TBA) est obtenue comme suit : deux disques horizontaux de bitume, moulés dans des anneaux de laiton à épaulement, sont chauffés dans un bain liquide avec un taux d'élévation de la température contrôlé, alors que chacun soutient une bille d'acier. La température de ramollissement notée doit correspondre à la moyenne des températures auxquelles les deux disques se ramollissent suffisamment pour permettre à chaque bille, enveloppée de liant bitumineux, de descendre d'une hauteur de $25,0 \text{ mm} \pm 0,4 \text{ mm}$.

L'essai est réalisé avec de l'eau distillée fraîchement bouillie ou eau déminéralisée. L'appareillage bille et anneau, qu'il soit manuel, semi-automatique ou automatique, et composé des éléments suivants : (1) anneaux, au nombre de deux, en laiton, à épaulement ;

(2) plaque de coulage, métallique, plate et uniforme d'environ 50 mm x 75 mm, et d'une épaisseur comprise entre 1,5 mm et 2,0 mm, avec les rebords tournés vers le bas ; (3) billes, au nombre de deux, en acier, de $9,50 \text{ mm} \pm 0,05 \text{ mm}$ de diamètre et d'une masse de $3,50 \text{ g} \pm 0,05 \text{ g}$; (4) dispositifs de guidage des billes, en laiton, et au nombre de deux, permettant de centrer les billes d'acier, un pour chaque anneau ; (5) porte-anneaux et assemblage, support en laiton (A) pouvant soutenir les deux anneaux en position horizontale ; (6) bain, un bécher en verre pouvant être chauffé, d'un diamètre intérieur d'au moins 85 mm et d'une profondeur d'au moins 120 mm à partir du fond du bécher ; (7) thermomètres ; (8) agitateur : soit un agitateur magnétique chauffant muni d'un barreau aimanté revêtu de manière appropriée, d'une longueur d'environ 40 mm et d'un diamètre de 8 mm, pour assurer l'uniformité de la distribution de chaleur dans le bain, soit un agitateur à hélice fonctionnant à vitesse modérée. L'agitateur doit être placé de sorte à ne pas perturber les échantillons au cours de l'essai. La vitesse de rotation du barreau doit être d'environ 100 min⁻¹.

À la place des éléments d'appareillage décrits, on peut employer un appareillage semi-automatique ou automatique après l'avoir étalonné. Les résultats obtenus doivent être identiques à ceux de la méthode manuelle, et être dans les limites de fidélité de la méthode manuelle. Si l'appareillage automatique est utilisé, il doit être étalonné autant de fois que nécessaire, mais au moins une fois par an. Pour chaque ensemble bille et anneau, noter la température indiquée par le thermomètre au moment où le liant bitumineux qui entoure la bille touche la plaque inférieure si la mesure est effectuée à l'aide de la méthode manuelle ou touche le rayon lumineux si un appareillage semi-automatique ou automatique est employé. Répéter l'essai si l'écart entre les deux températures dépasse 1 °C pour les températures de ramollissement inférieures à 80 °C, ou 2 °C pour les températures de ramollissement supérieures à 80 °C.

Fidélité et reproductibilité des essais :

- La fidélité et la répétabilité d'essai : la différence entre deux résultats d'essais obtenus par le même opérateur avec le même appareillage, dans des conditions opératoires identiques et sur un même produit, en appliquant correctement et normalement la méthode d'essai, ne devrait pas, sur le long terme, dépasser plus d'une fois sur vingt les valeurs données dans le tableau ci-après. Dans nos essais, la valeur à tenir en considération est 1 ;
- La reproductibilité d'essais : la différence entre deux résultats d'essais uniques et indépendants, obtenus par des opérateurs différents travaillant dans des laboratoires différents sur des produits identiques, en appliquant correctement et normalement la méthode d'essai, ne devrait pas, sur le long terme, dépasser plus d'une fois sur vingt les valeurs données dans le Tableau A - 3. Dans nos essais, la valeur à tenir en considération est 1.

Tableau A - 3 - Répétabilité et reproductibilité des essais de TBA

<i>Liquide de bain</i>	<i>Type de bitume</i>	<i>Répétabilité r (°C)</i>	<i>Reproductibilité R (°C)</i>
Eau	non modifié	1	2
Eau	modifié	1,5	3,5
Glycérol	oxydé	1,5	5,5

Protocole de mesures :

Préparation de l'essai : Le bitume est chauffé à 140 °C pendant une heure environ, afin de le rendre plus fluide et donc plus manipulable. Quatre anneaux de 16 mm de diamètre sont

placés sur une plaque recouverte d'un produit anti-adhésif. On y verse ensuite le bitume chaud avec un léger surplus et on laisse refroidir à l'air ambiant. Après une demi-heure, on arase les anneaux de bitume à l'aide d'une spatule chauffée. Les anneaux remplis de bitume sont ensuite placés dans une enceinte à 5 °C, pendant un quart d'heure. L'eau nécessaire à l'essai est mise dans l'enceinte à 5 °C, plusieurs heures avant.

Exécution de l'essai : Les anneaux sont placés sur un socle que l'on met dans un bécher rempli d'eau à 5 °C. Ensuite, on place des billes de 9.5 mm de diamètres et de masse 3.5 g, sur les disques de bitume immergés. L'ensemble est chauffé à une vitesse constante de 5 °C / min, à partir d'une température initiale de 5 °C. Le point de ramollissement bille-anneau est la température à laquelle le poids de la bille provoque une déformation verticale du bitume jusqu'à un repère prédéfini. En effet, plus la température augmentera, plus le bitume se ramollira.

1.4 Essais physico-chimiques

1.4.1 Essai de vieillissement accéléré (RTFOT)

A l'enrobage, l'oxydation chimique est importante car l'apport énergétique est intense (température et oxygène de l'air). La simulation en laboratoire de cette évolution du bitume est usuellement réalisée par l'essai RTFOT (*Rolling Thin Film Oven Test*) (NF 12607-1] [AFNOR, 2000] .

Le bitume est placé dans des cylindres en verre dont l'axe est horizontal ; ces cylindres sont eux-mêmes fixés sur un tambour tournant horizontalement sur son axe (Figure A 9). Le bitume est exposé en étuve à des courants d'air chaud à 163 °C pendant 75 min. Ce procédé a l'avantage de soumettre le bitume à une oxydation en profondeur, le film de bitume exposé étant renouvelé lors de la rotation des cylindres [Corté et Di Benedetto, 2005].

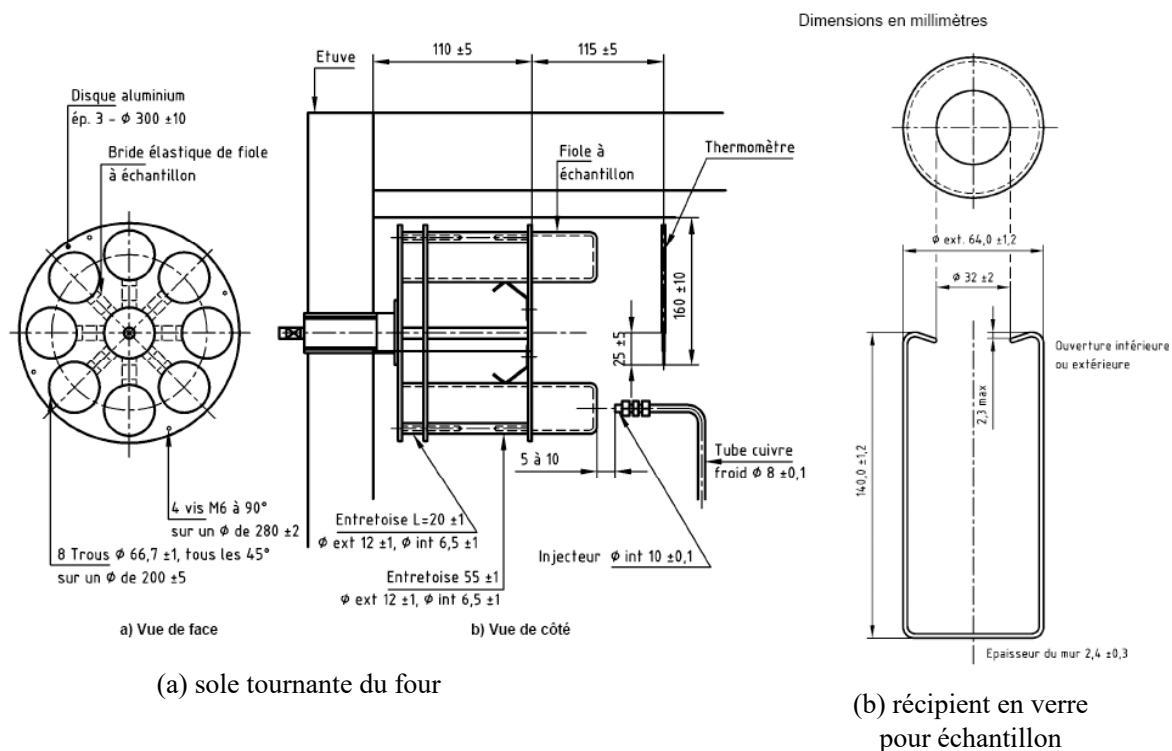


Figure A 9 – Principe de fonctionnement du four RTFOT –[NF 12607-1] [AFNOR,2000]

Le RTFOT reproduit l'oxydation et les pertes de matières volatiles qui apparaissent dans la centrale d'enrobage et lors de sa mise en œuvre. Ceci a été confirmé par les observations faites sur une population importante de chantiers [LCPC, 1992].



a – Détail du four et de la cheminée



b – Détail des cylindres en verre et de l'injection de l'air chaud

Figure A - 10 – Four RTFOT du LCPC

1.5 Essais mécaniques

1.5.1 Essai de module complexe

La réalisation des essais de module complexe, soit pour l'enrobé bitumineux, soit pour le bitume, passe par une préparation des échantillons. Dans le cas du module complexe des enrobés, après le malaxage et la confection d'une plaque d'enrobé, celle-ci est sciée selon la norme française NF P 98-260-2 [AFNOR, 1992a] (Figure A - 11).



Figure A - 11 - Sciage et confections des éprouvettes trapézoïdales d'enrobé bitumineux

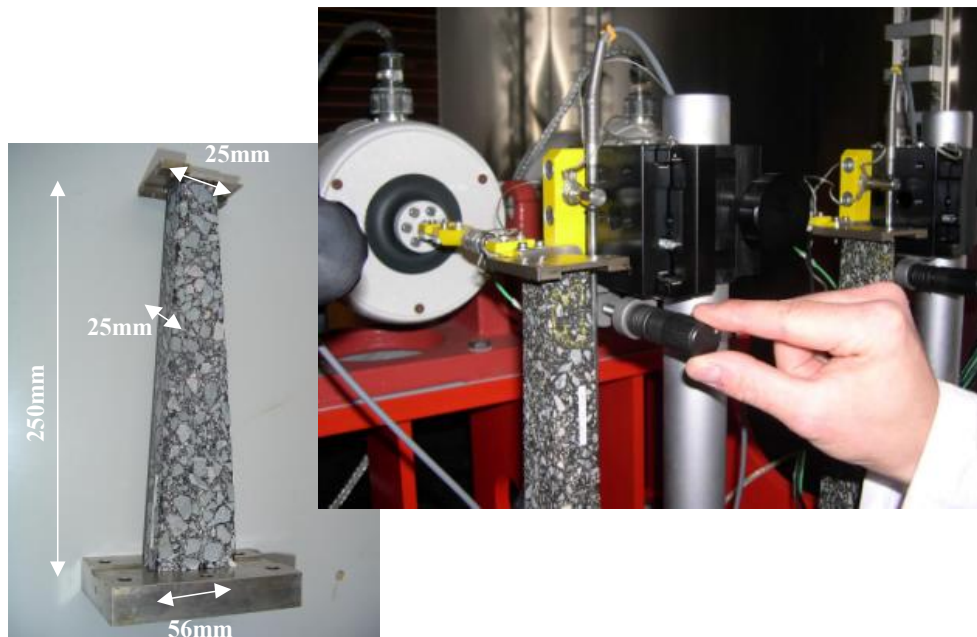


Figure A-12 – Géométrie des éprouvettes d'enrobé bitumineux[NF P 98-260-2] [AFNOR, 1992a]

Dans le cas du bitume, la taille et la géométrie des éprouvettes sont choisies selon le domaine de température et le type de sollicitation appliqué. Les dimensions courantes du corps d'épreuve, pour le bitume à traction, sont $h = 16 \text{ mm}$ et $D = 8 \text{ mm}$ (Figure A - 13) et pour l'enrobé, sont $h = 250 \text{ mm}$, $l = 56 \text{ mm}$ et $e = 25 \text{ mm}$ (Figure A-12).

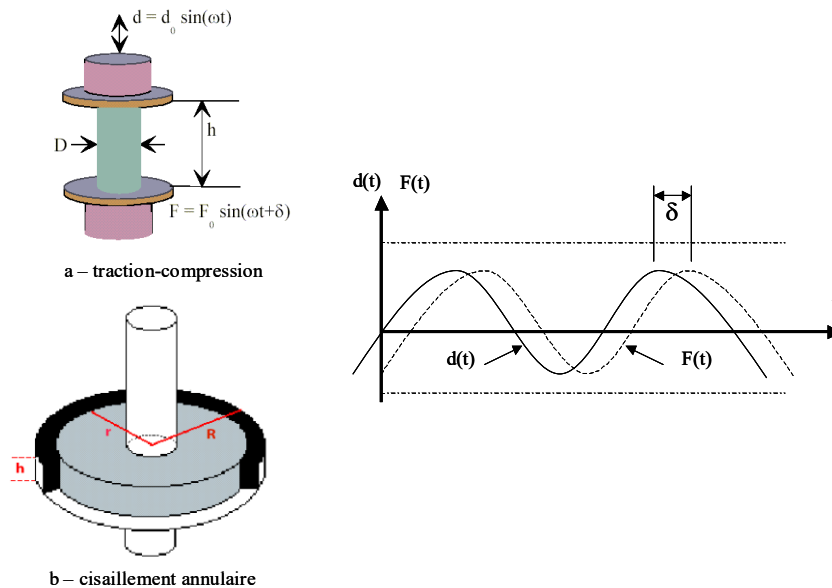


Figure A - 13 – Detaille des éprouvettes de bitume

Les mesures du module complexe sont effectuées dans le domaine des petites déformations pour que la réponse du matériau soit viscoélastique linéaire. Une force $F(t)$ sinusoïdale d'amplitude F_0 et fréquence f est appliquée à l'éprouvette comme suit :

$$F(t) = F_0 \sin(\omega t) \quad \text{avec} \quad \omega = 2\pi f \quad (\text{A - 1})$$

Le module complexe E^* est le nombre complexe défini comme le rapport entre l'amplitude de la contrainte sinusoïdale de pulsation ω appliquée au matériau $\sigma = \sigma_0 \sin(\omega t)$ et l'amplitude de la déformation sinusoïdale qui en résulte. Sa représentation dans le plan complexe est donnée par la relation :

$$E^* = |E^*| e^{i\delta} \quad (\text{A - 2})$$

où $|E^*|$ est la norme du module complexe, appelé module de rigidité et δ est l'angle de phase du matériau.

Ce module étant dépendant de la température et de la fréquence, on effectue cet essai pour différentes fréquences (en pratique 1 ; 3 ; 10, 30 Hertz) et différentes températures (en pratique -10 ; 0 ; 10 ; 20 ; 30 ; 40 °C) et on note pour chaque couple (θ , F), les valeurs du module de rigidité et d'angle de phase du matériau [De-La-Roche, 2004]. Les résultats sont souvent présentés sous forme de « courbes isothermes » (norme du module complexe en fonction de la fréquence pour chacune des températures d'essai), de « courbes isochrones » (norme du module complexe en fonction de la température pour chacune des fréquences d'essai) ou de courbes maîtresses.

Les courbes maîtresses sont obtenues à partir de ces isothermes ou isochrones. Les résultats peuvent être exprimés dans le plan de Cole et Cole, où interviennent les parties réelle et imaginaire du module complexe ; ou encore dans l'espace de Black, où intervient l'angle de phase caractérisant le retard de la déformation par rapport à la contrainte, dû au caractère viscoélastique du matériau (Figure A - 14).

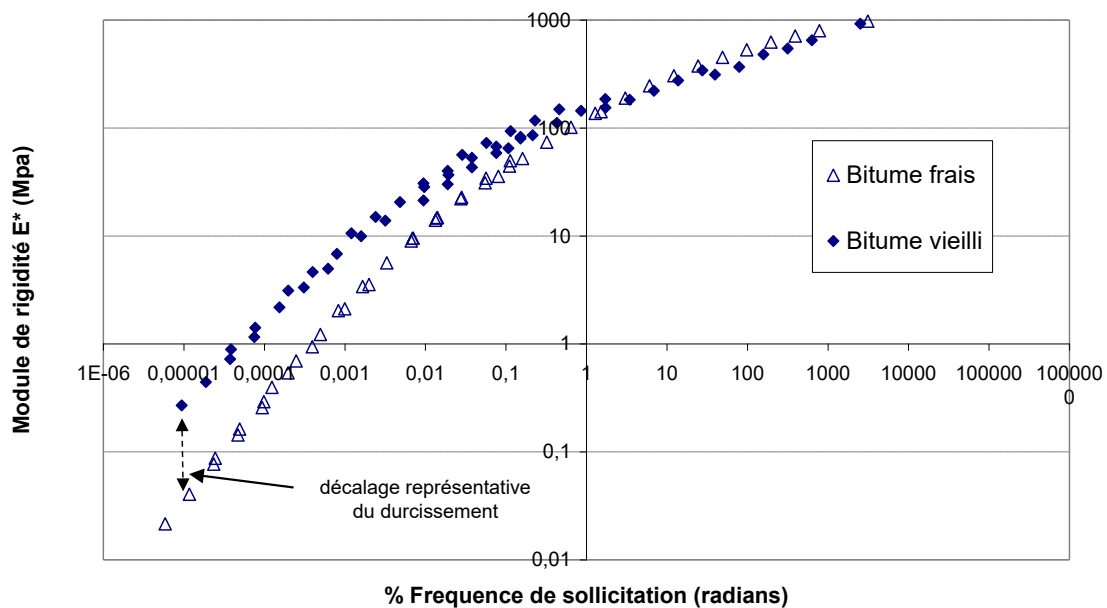


Figure A - 14 - Exemple de courbes maîtresses à 0 °C d'un bitume 35/50 frais et vieilli d'après [Corté et Di Benedetto, 2005]

Une courbe maîtresse est tracée à partir d'un réseau d'isothermes en déterminant un coefficient de translation $\log(a_i)$ en fonction de la température. Le facteur de translation $\log(a_T)$, selon Williams, Landel et Ferry [Williams et al, 1955] est calculé comme suit :

$$\log(a_T) = \frac{-C_1(T - T_s)}{C_2 + (T - T_s)} \quad (\text{A - 3})$$

Où C_1 et C_2 sont les paramètres caractéristiques du produit (enrobé) et T et T_s sont respectivement la température d'essai et la température de référence (°C) choisie arbitrairement. Une courbe maîtresse permet d'obtenir des valeurs de module pour des fréquences inaccessibles par l'expérimentation. Elle est généralement déterminée pour une température de référence de 10 °C pour les enrobés et de 25 °C pour les bitumes.

Dans le cas de la détermination du module complexe de l'enrobé, le module complexe est calculé à partir des valeurs de contrainte et de déformations maximales subies par l'éprouvette. Ce module est dépendant des caractéristiques géométriques des éprouvettes, ainsi que du déplacement et de la force en tête de l'éprouvette. Cet essai est, comme pour le bitume, également réalisé à 6 températures (entre -10 et +40° C) et à 4 fréquences pour chacune des températures donnée (1Hz, 3Hz, 10Hz, 30 Hz). Il est prouvé expérimentalement que le module de l'enrobé bitumineux diminue lorsque la température croît ; de manière analogue, la raideur (rapport entre une variation de force et la variation correspondante du déplacement en translation ou en rotation) de l'enrobé diminue, à température constante, lorsque la fréquence de la sollicitation décroît [Corté et Di Benedetto, 2005].

2 Technologies de brûleurs et combustion

2.1 Grandeurs caractéristiques de la combustion stœchiométrique

2.1.1 Grandeurs relatives au rapport Air/Fuel

Le pouvoir comburivore ou air stœchiométrique (V_a) d'un gaz est la quantité d'air nécessaire et suffisante pour assurer la combustion complète de l'unité de volume de ce gaz [Gaz de France, 1984].

L'air stœchiométrique permet d'obtenir la combustion complète sans excès ni défaut d'air et il est exprimé en Nm^3 d'air/ Nm^3 de gaz. Comme autres grandeurs, nous avons :

la fraction de mélange : rapport massique du carburant au mélange

le rapport carburant / air (Fuel Air Ratio)

la richesse : rapport de la fraction de mélange à sa valeur stœchiométrique

$$\phi = \frac{\left[\frac{\text{fuel}}{\text{Ox}} \right]}{\left(\left[\frac{\text{fuel}}{\text{Ox}} \right] \right)_{\text{Sto}}} \quad \text{ou} \quad \phi = \frac{\frac{Y_{\text{fuel}}}{Y_{\text{Ox}}}}{\left(\frac{Y_{\text{fuel}}}{Y_{\text{Ox}}} \right)_{\text{Sto}}} \quad (\text{A} - 4)$$

si $\phi < 1 \rightarrow$ pauvre (en excès d'air)

si $\phi > 1 \rightarrow$ riche (excès de carburant)

le facteur d'air (rapport du débit d'air au débit stœchiométrique obtenu par le pouvoir comburivore)

$$n = \frac{1}{\phi} \quad n < 1 \text{ en milieu réducteur et } n > 1 \text{ en milieu oxydant}$$

- l'excès d'air : le facteur d'air moins un (exprimé en %)

$$e(\%) = \frac{1 - \phi}{\phi} \times 100 \quad (\text{A} - 5)$$

- le facteur de défaut d'air

$$d(\%) = \frac{\phi - 1}{\phi} \times 100 = (1 - n) \times 100 \quad (\text{A} - 6)$$

2.1.2 Grandeurs relatives aux fumées

Le pouvoir fumigène est le volume, ramené aux conditions normales des produits de la combustion de 1Nm^3 de gaz associé à l'air stœchiométrique. Il est exprimé en Nm^3 de produits de combustion/ Nm^3 de gaz.

Pouvoir fumigène humide ($V'f_0$) : l'eau produite par la combustion étant à l'état de vapeur, c'est le volume qui est réellement à évacuer.

Pouvoir fumigène sec (Vf_0) : l'eau produite par la combustion est supposée condensée et l'on ne tient compte que du volume des corps gazeux.

Pour les gaz distribués, le pouvoir fumigène rapporté au kWh (PCI) est compris entre 1,00 et 1,07.

Gaz carbonique total (V_{CO_2}) (carbone total) est le volume en Nm^3 de l'anhydride carbonique résultant de la combustion complète de 1 Nm^3 de gaz. Il s'exprime en Nm^3CO_2/Nm^3 gaz.

Vapeur d'eau totale (V_{H_2O}) (hydrogène total) est le volume en Nm^3 de la vapeur d'eau produite par la combustion complète de 1 Nm^3 de gaz.

Teneur maximale en CO_2 des produits de combustion secs (appelé CO_2 max): et désigné par γ_{CO_2} est le rapport du gaz carbonique total au pouvoir fumigène sec :

$$(\gamma_{CO_2})_0 = \frac{V_{CO_2}}{V_{f_0}} \quad (A - 7)$$

Le γ_{CO_2} est proche de 12% pour les gaz naturels.

2.1.3 Types de combustion

On peut distinguer 4 types de combustion [Gaz de France, 1984] :

- la combustion stœchiométrique ;
- la combustion complète en excès d'air ;
- la combustion complète en défaut d'air ;
- la combustion incomplète.

Combustion stœchiométrique : C'est la combustion donnée par 1 Nm^3 de gaz associé à un volume d'air égal à l'air stœchiométrique (Figure A - 15).

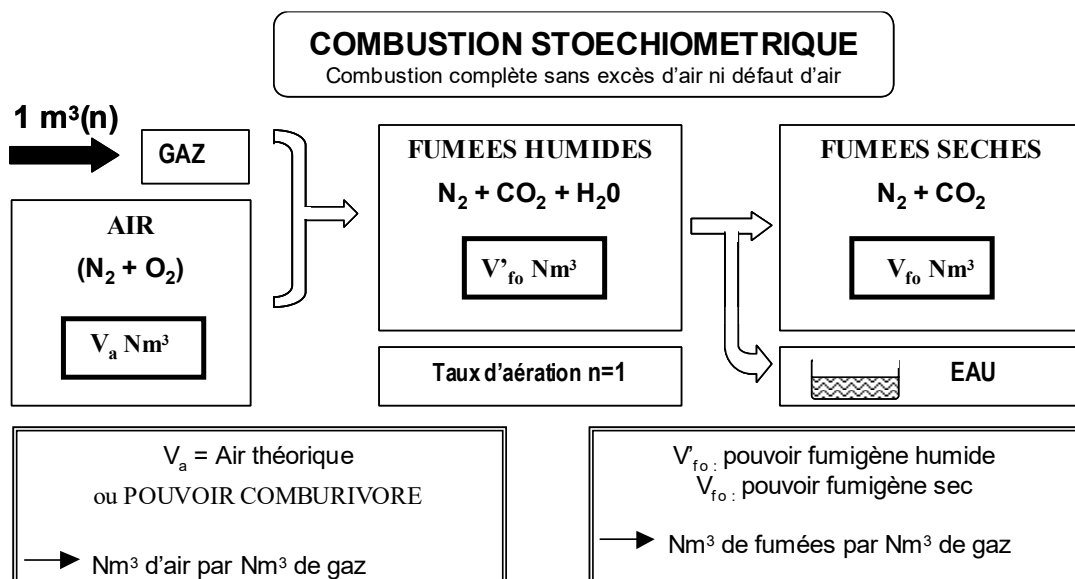


Figure A - 15 – Combustion stœchiométrique

Tout le carbone et tout l'hydrogène sont oxydés et tout l'oxygène de l'air est utilisé. Les produits de combustion ne contiennent que : CO_2 , H_2O et N_2 .

Le volume des produits de combustion est minimal (= au pouvoir fumigène)

Ce type de combustion est difficile à réaliser dans la pratique car il nécessite de fournir au brûleur l'air et le gaz très rigoureusement dans les proportions stœchiométriques.

Combustion complète en excès d'air : C'est la combustion donnée par 1 Nm³ de gaz associé à un volume d'air supérieur à l'air stœchiométrique (Figure A - 16).

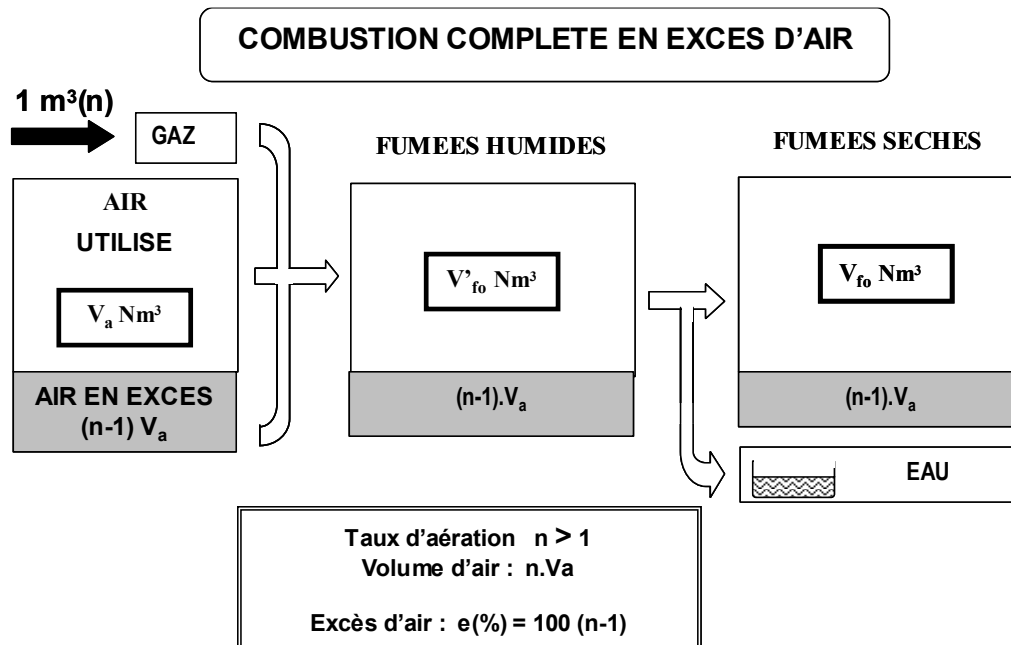


Figure A - 16 - Combustion complète en excès d'air

Pour chaque m³ de gaz :

- une partie de l'air associé, égal à l'air stœchiométrique, sert à assurer l'oxydation complète du carbone et de l'hydrogène ;
- le reste, l'air en excès, ne participe pas à la combustion et se retrouve, intégralement, dans les produits de combustion qui comprennent : CO₂, H₂O, N₂ et O₂

Ce type de combustion est le plus courant.

Combustion complète en défaut d'air (utilisation totale de l'oxygène) : C'est la combustion donnée par 1 Nm³ de gaz associé à un volume d'air inférieur à l'air stœchiométrique (Figure A - 17).

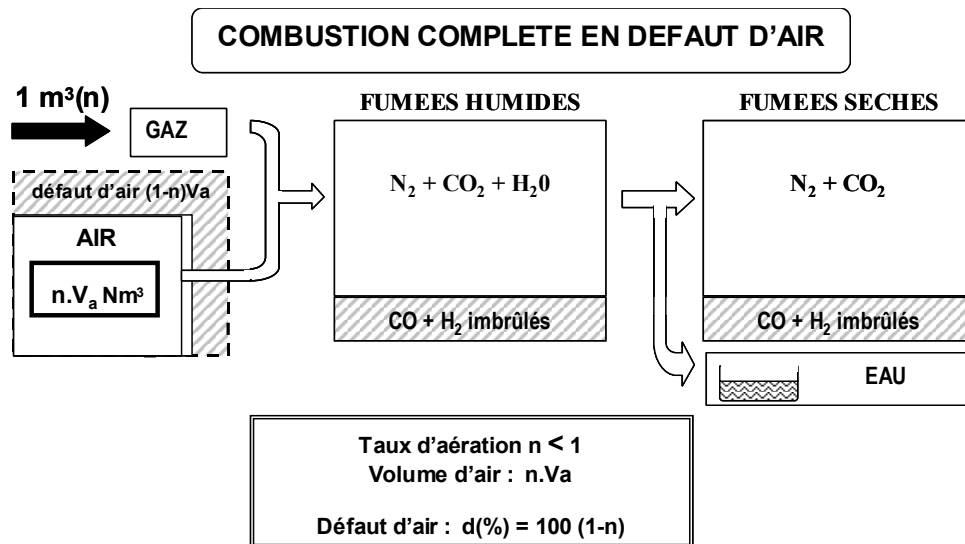


Figure A - 17 - Combustion complète en défaut d'air

On trouve dans les produits de combustion :

- des imbrûlés : CO , H_2 et, pour des défauts d'air importants, méthane et carbone suie ;
- N_2 , CO_2 et H_2O

Ce type de combustion est parfois recherché dans certaines applications industrielles en raison de l'action de tels produits de combustion sur la charge de certains fours. Il est très difficile à réaliser dans la pratique.

Combustion incomplète : Un Nm^3 de gaz est associé à un volume d'air quelconque et, en raison de conditions défavorables, une partie du gaz ne participe pas à la combustion.

Cette combustion se caractérise par la présence simultanée d'oxygène et d'imbrûlés dans les produits de combustion (Figure A - 18).

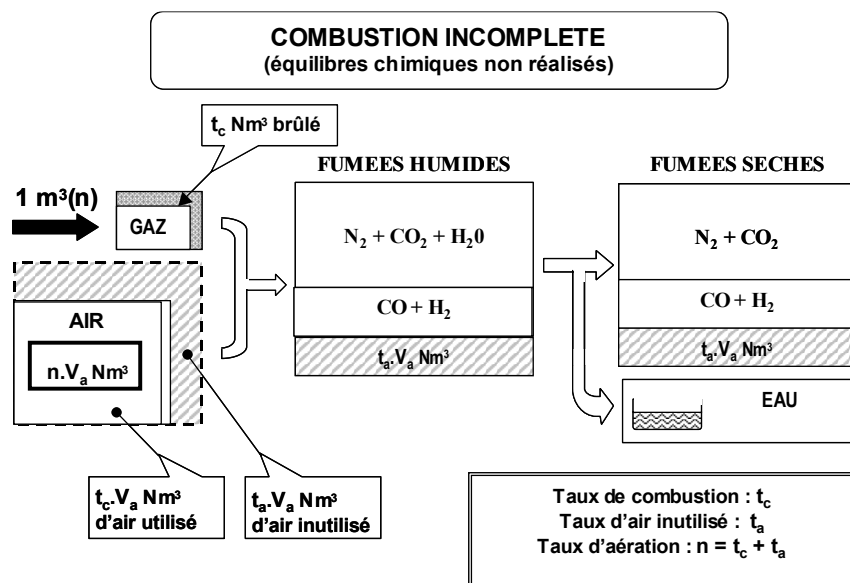


Figure A - 18 - Combustion incomplète

Ce type de combustion se rencontre lorsque le gaz et l'air disponibles ne se combinent pas totalement dans la zone de combustion. Ce peut être le résultat de la détérioration d'un brûleur, qui assure un mélange imparfait, ou d'un refroidissement brutal provoquant l'arrêt de la combustion. On peut également rencontrer une telle combustion sur des fours industriels lorsqu'une partie de l'air est aspirée par des ouvertures du fait de la dépression régnant dans l'enceinte.

Cette combustion n'est jamais souhaitable et correspond à des équipements mal réglés ou détériorés.

2.1.4 Rendement de combustion

La puissance fournie à l'appareil par le brûleur est appelée puissance du brûleur. Elle s'exprime en kilowatts de pouvoir calorifique du gaz (sur PCS ou PCI).

Les produits de combustion (gaz brûlés) emportent à la cheminée une certaine quantité de chaleur par unité de temps. Cette puissance perdue s'appelle pertes par des produits de combustion ou pertes par les fumées [Esposito, 1987]. Elles s'expriment en kW. Elles comprennent la chaleur d'échauffement des gaz constituant les produits de combustion (chaleur sensible) et, le cas échéant, une certaine quantité de chaleur latente qui est celle qu'auraient fournie les imbrûlés si ceux-ci avaient été complètement oxydés. On peut considérer aussi comme pertes la chaleur latente de vaporisation de l'eau produite par la combustion. Il y a encore les pertes par les parois et les ouvertures diverses. Après avoir déduit toutes les pertes de la puissance d'entrée de l'appareil fournie par le brûleur, il reste la puissance utile en kW.

Rendements : Le rendement utile est le rapport de la puissance utile et la puissance fournie par le brûleur :

$$R_u = \frac{\text{Puissance utile}}{\text{Puissance brûleur}} \text{ ou}$$

$$R_u = \frac{\text{Puissance brûleur} - \sum \text{pertes}}{\text{Puissance brûleur}} \quad (A - 8)$$

Rendement de combustion R_g

$$R_g = \frac{\text{Puissance utile} + \text{pertes}_{\text{parois+divers}}}{\text{Puissance brûleur}} \quad (A - 9)$$

$$R_g = \frac{\text{Puissance brûleur} - \text{pertes}_{\text{produits combustion}}}{\text{Puissance brûleur}} \quad (A - 10)$$

2.2 Brûleurs des fours industriels

Il existe de nombreux types de brûleurs, certains spécifiques à un seul type de four ou/et à un seul combustible. La conception d'un brûleur de four est fonction (1) du combustible et de la façon dont se fait le mélange combustible-comburant, (2) de l'espace disponible dans l'enceinte où se déroule la combustion et (3) de la forme que l'on souhaite donner à la flamme [Borghini, 1987] :

- Brûleur à prémélange : le mélange entre le combustible et le comburant se fait préalablement à son introduction dans le four. Ils sont uniquement à combustible

gazeux. Ils produisent des flammes courtes et permettent d'obtenir localement des températures très élevées. Des précautions doivent être prises pour éviter la propagation de la combustion vers l'amont ;

- Brûleur à flamme de diffusion : le mélange entre le combustible et le comburant se fait à la sortie du brûleur ou au nez du brûleur. Ces brûleurs concernent les combustibles gazeux, liquides et solides (pulvérisée). Les formes de flamme peuvent être très variées

2.2.1 Brûleurs à flamme de prémélange

Selon Dias [Dias et Vandooren, 2004], dans ce type de brûleur le combustible et le comburant sont préalablement mélangés avant de brûler (Figure A - 19). En régime laminaire trois zones caractérisent la flamme sur le brûleur : (1) zone sombre correspondant aux gaz frais provenant du brûleurs, (2) zone lumineuse appelée front de flamme et (3) zone finale correspondant aux produits finaux de combustion.

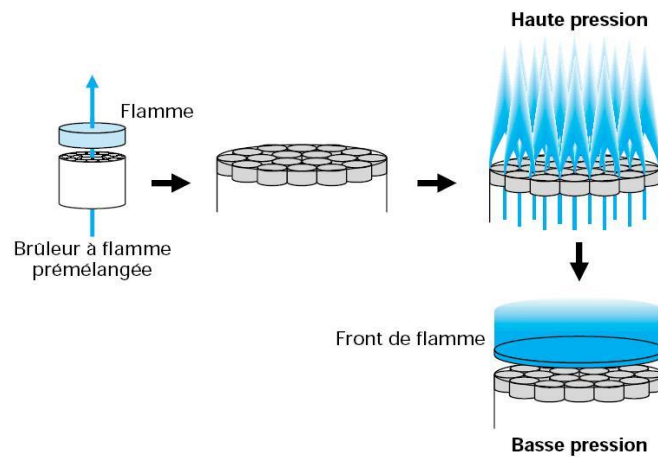


Figure A - 19 - Différentes zones de flamme d'après [Dias et Vandooren, 2004]

2.2.2 Brûleurs à flamme de diffusion

Un autre type de brûleur est à envisager quand la combustion est contrôlée par la diffusion entre réactifs (combustible et comburant). Si le mélange est long à devenir homogène par rapport à la vitesse de réaction, la flamme sera dite de diffusion (Figure A - 20).

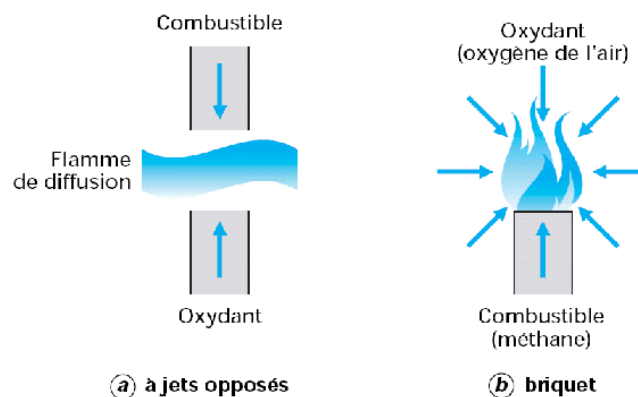


Figure A - 20 - Flammes de diffusion d'après Dias 2005 d'après [Dias et Vandooren, 2004]

Ces flammes de diffusion laminaire peuvent devenir des flammes de diffusion turbulentes par l'augmentation du débit de gaz. Le nombre de Reynolds (Re) définit le régime de la flamme. Dans un tube cylindrique, le nombre de Reynolds (adimensionnel) est défini par

$$Re = \frac{\rho V D}{\eta} \quad (A - 11)$$

Avec ρ = masse volumique du fluide (kg/m³) ;

V = vitesse moyenne de l'écoulement :

$$V = \frac{D_v}{S} \quad (A - 12)$$

D_v = débit volumique ;

S = section du tube (m²) ;

D = diamètre du tube (m) ;

η = viscosité dynamique du fluide (Pa.s).

Le régime d'écoulement est défini par le nombre de Reynolds :

Re < 2000 : écoulement laminaire ; flamme dite « silencieuse »

2000 < Re < 3000 zone de transition ; flamme « troublée »

Re > 3000 écoulement turbulent ; flamme « bruyante »

2.2.3 Rôle de l'atmosphère et de la pression

Contrôle de la pression dans les fours : la pression relative l'on cherche à maintenir dans l'enceinte (ou le laboratoire) d'un four est de l'ordre de quelques dizaines de pascals. Cette pression peut être soit positive (fours à chauffage direct), soit négative (fours tubulaires de l'industrie chimique).

Dans tous les cas, c'est un paramètre d'exploitation important qu'il faut suivre avec attention. En effet, un contrôle déficient de la pression peut entraîner des difficultés importantes :

- détérioration de la qualité du chauffage dans les fours à chauffage direct ;
- augmentation de la consommation spécifique et diminution du rendement ;
- détérioration de la combustion dans les fours équipés de brûleurs à air induit ;
- dégradation des parois en cas d'excès de pression.

Le contrôle de cette pression se fait (1) soit par action sur un registre placé dans le circuit d'évacuation des fumées (2) soit par la variation de la vitesse de rotation d'un extracteur des fumées (ventilateur).

Entrées d'air : il s'agit de l'air ambiant qui pénètre dans l'enceinte du four par d'autres entrées que celles prévues au niveau des brûleurs. L'air non contrôlé est préjudiciable à tous points de vue :

- il diminue le rendement de combustion ;
- il refroidit les produits lorsqu'il s'introduit à proximité du défournement ;
- il engorge le circuit d'extraction des fumées ;
- il modifie l'atmosphère gazeuse du four.

Les gaz présents dans les produits d'une combustion avec excès d'air (O_2 , CO_2 , H_2O) ont toujours, à haute température, une action sur les produits ou les constituants du four. Ces effets, l'oxydation et la décarburation peuvent, dans certains cas, être inacceptables et l'on pourra être amené : soit à rechercher une combustion avec défaut d'air (fours à chauffage sans oxydation, normalement pour le réchauffage des métaux), soit à utiliser un gaz d'atmosphère, élaboré par ailleurs que l'on mettra en contact avec les produits (fours de traitements thermiques à atmosphère contrôlé).

3 Protocoles de mesures d'émissions gazeuses effectuées

Les domaines et les incertitudes pour l'ensemble d'appareillage de mesures utilisées sont présentés dans le Tableau A - 4.

Tableau A - 4 – Domaine et incertitude de mesures réalisées

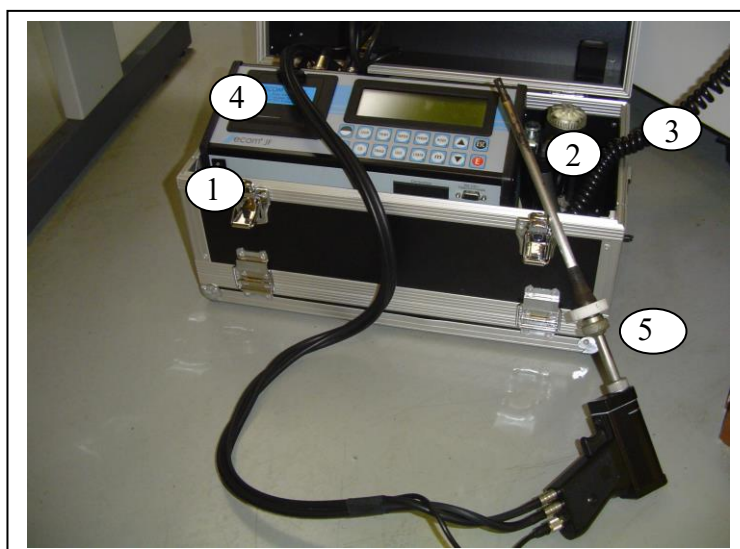
Type de mesure	Principe d'analyse	Domaine de mesure	Incertitudes de mesure
Émissions			
O ₂	Propriétés paramagnétiques de l'oxygène	0 – 25 Vol%	ND
CO ₂	Absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	0 – 20 Vol%	ND
CO	Absorption d'un faisceau infra rouge non dispersé	0 – 3000 mg/kg	ND
NO _x	Chimiluminescence	0 – 100 mg/kg	ND
COT	Ionisation de flamme (FID)	0 – 1000 mg/kg	ND
CH ₄	Ionisation de flamme	0 – 100 mg/kg	ND
HAP	Selon schéma (Figure A - 27)	0 – 0,2 ng/ITE Nm ³	ND
Paramètres de fonctionnement			
Température enrobés	Infra-rouge		± 2 °C
Température émissions	Thermocouple NiCr/Ni		± 2,5 °C

3.1 Mesures de O₂, CO₂, CO et NO_x avec l'analyseur de combustion ECOM

3.1.1 Présentation de l'appareillage

L'analyseur de combustion « ECOM » présenté sur la Figure A - 21 est un équipement portatif, appartenant au CORIA, et prêté au LCPC dans le cadre de la thèse. Cet appareil est généralement utilisé sur les fumées de combustion dans le cas des réglages de brûleurs.

Il se compose d'un boîtier principal (1) ECOM, d'un pot de condensation à refroidisseur (2), d'un cordon secteur (3), d'une imprimante intégrée rapide à papier ordinaire (4) et d'une sonde chauffante (5) pour le prélèvement des fumées de combustion. L'équipement a été étalonné en juin 2004, c'est-à-dire avant les premiers essais.



- 1 – Boîtier
- 2 – Pot de condensation
- 3 – Cordon secteur
- 4 – imprimante
- 5 – sonde chauffante

Figure A - 21 – L'analyseur de mesure ECOM JF

3.1.2 Echantillonnage

L'analyseur est équipé d'une sonde de prélèvement chauffée d'environ 50 cm de longueur et une ligne chauffée d'environ 200 cm pour permettre l'accès à la chambre de combustion ou aux cheminées industrielles (centrales d'enrobage). Une fois l'analyseur installé sur le lieu de mesure, la sonde est introduite dans la cheminée, l'échantillonnage est réalisé de façon discontinue.

3.1.3 Calcul de la masse de polluants

Les paramètres mesurables, sur gaz secs, sont les suivants : O₂ en %, CO en mg/kg ou mg/Nm³, NO_x en mg/kg ou mg/Nm³, la température de l'air ambiant en °C, la température des gaz de combustion en °C et le tirage en hPa. Par contre, le CO₂ est calculé et le calibrage préalable de l'appareil comprend la prise en compte du combustible utilisé pour que ce calcul soit correct. L'émission de CO₂ est calculée en fonction du CO₂max et de l'oxygène mesuré, selon la relation $CO_2_{calculé} = CO_2_{max} \cdot \frac{21 - O_2_{mes}}{21}$. Le CO₂max dépend du type de combustible utilisé et les valeurs prise en compte par l'analyseur sont dans le Tableau A - 5.

Tableau A - 5 – Valeurs du CO₂max en fonction du combustible

Combustible	CO ₂ max
Fuel	15,4
Gaz naturel	11,8
Gaz de ville	11,7
Gaz Cokerie	10,2
Gaz liquide	14,0

Les facteurs de transformation de mg/kg en mg/m³ et vice-versa utilisés par l'analyseur sont les suivants :

Tableau A - 6 – Facteurs de transformation d'unités utilisés par l'ECOM

Gaz	Facteur de transformation	
	mg/kg en mg/m ³	mg/m ³ en mg/kg
O ₂	1,429	0,699
CO	1,25	0,8
NO	1,34	0,75
NO ₂	2,05	0,49
SO ₂	2,86	0,35

L'émission de NO_x est calculée sur les émissions de NO et de NO₂ mesurées selon la relation suivante : $NO_x(mg/m^3) = [NO(ppm) + NO_2(ppm)] \cdot 2,05$. La précision des mesures de l'ECOM est représentée dans les tableaux Tableau A - 7.

Tableau A - 7 – Grandeurs mesurées par l'analyseur ECOM

	Plage de mesures	Tolérance relative (abs)		Résolution
		(par rapport à 20% de la plage des mesures)*	Au-delà à 20% de la plage des mesures)	
O ₂	0 – 25 %	2 % (0.1 %)	5 % (1.25%)	0.1 %
CO	0 – 4000 mg/kg	2 % (16 mg/kg)	5 % (200 mg/kg)	1 mg/kg
CO %	0 – 10 %	2 % (400 mg/kg)	5 % (0.5 %)	0.1 %
NO	0 – 2000 mg/kg	2 % (8 mg/kg)	5 % (100 mg/kg)	1 mg/kg
NO ₂	0 – 200 mg/kg	2 % (1 mg/kg)	5 % (10 mg/kg)	1 mg/kg
SO ₂	0 – 400 mg/kg	2 % (16 mg/kg)	5 % (200 mg/kg)	1 mg/kg
T gaz	0 – 999 °C	-	2 % (20 °C)	1 °C
T air comburant	0 – 99 °C	-	2 % (2 °C)	1 °C
Tirage	-20 – 20 hPa	-	1 % (0.2 hPa)	0.1hPa

Source : Notice d'utilisation ECOM

Exemple de calcul de tolérance pour le CO :

Pour une plage de mesures entre 0 – 4000 mg/kg, nous avons :

Plage des mesures = 0 – 800 mg/kg (équivalent à 20 %);

$$\text{Plage} = \frac{20}{100} \times 4000 \text{ ppm} \quad \text{Plage} = 0 - 800 \text{ ppm}$$

Tolérance par cette plage = 2 % ou 16 mg/kg ;

$$\text{Tolérance} = \frac{2}{100} \times 800 \text{ ppm} \quad \text{Tolérance} = 16 \text{ ppm}$$

Plage des mesures entre 800 – 4000 mg/kg

Tolérance par cette plage = 5 % ou 200 mg/kg.

$$\text{Tolérance} = \frac{5}{100} \times 4000 \text{ ppm} \quad \text{Tolérance} = 200 \text{ ppm}$$

3.1.4 Exemples de calculs de corrections sur les émissions de données brutes

Teneur en oxygène : Le facteur de normalisation en oxygène à 11 % est égal à 1,613 pour la modalité M1. Il a fallu corriger les mesures prises par l'analyseur de NO_x, pour les

modalités M2 à M7, à cause de l'existence d'une déviation négative de sa ligne de base. Le facteur de correction d'étalonnage est donné par la formule $y = a \cdot x + b$ où $a = -0,0063$ et $b = 0$. Pour $x = 0$ (début de la M2), la correction $y = 0$. Pour $x = 300$ (fin de la M7), la correction $y = -1,89$ mg/kg. Homogénéisation des unités : Le facteur de transformation de mg/kg en mg/Nm³ égal à 2,05. Après les ajustements et les corrections, pour la M1, l'émissions de NO_x est la suivante : NO_x (en mg/Nm³ à 11 % O₂) = [Émission de NO_x (en mg/kg)].[2,05].[1,613]. Ces corrections sont à refaire sur toutes les modalités fabriquées.

3.2 Mesures de COT, COVNM et CH₄ avec l'analyseur de composés organiques N.I.R.A. (FID)

3.2.1 Présentation de l'appareillage

L'analyseur des composés organiques N.I.R.A. présenté sur la Figure A - 22 est un équipement portable, acheté par le LCPC dans le cadre de la thèse, pour évaluer les concentrations organiques (méthane et non-méthane) lors d'un échantillonnage, dans un cycle d'analyse unique. Un réglage additionnel existe pour accélérer l'évaluation des COT.



Figure A - 22 – Analyseur de COT (FID) du LCPC

Le détecteur à ionisation de flamme (FID) est le plus utilisé en chromatographie en phase gazeuse. Sa grande sensibilité, son grand domaine de linéarité associée à une grande facilité d'utilisation ont permis son développement. La norme européenne NF EN 12 619 [AFNOR, 1999c] spécifie un ensemble d'exigences minimales de performances ainsi que les modes opératoires d'étalonnage et de fonctionnement d'un instrument utilisant l'ionisation de flamme pour détecter et mesurer la concentration massique en Carbone Organique Total (COT) gazeux des fumées de combustion émises par des sources fixes.

3.2.2 Principe de mesures

Les effluents de la colonne chromatographique pénètrent dans une flamme dont le combustible (hydrogène) est pré mélangé au gaz vecteur et dont le comburant (air) arrive extérieurement et alimente la combustion par diffusion. Les composés organiques élués (séparés) par la colonne forment des ions qui sont collectés au moyen de deux électrodes. Le courant, très faible, qui en résulte est transformé par l'électromètre en une tension qui est

enregistrée (Figure A - 23). La surface calculée est comparée à celle obtenue avec du gaz étalon comme gaz analysé. La valeur d'émission fournie est le rapport entre les deux surfaces.

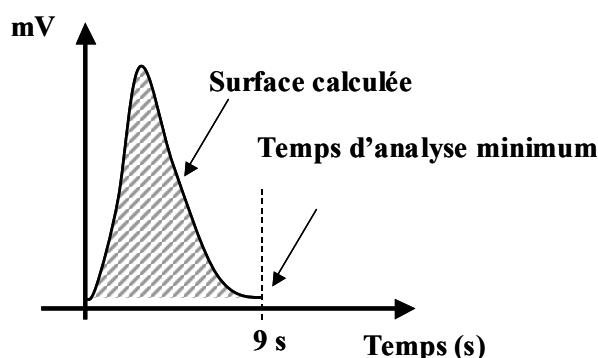


Figure A - 23 – Évolution de la tension enregistrée par l'analyseur FID au cours du temps

C'est un détecteur sensible cependant il ne donne pas de réponse aux composés minéraux, ni aux gaz permanents. Il a aussi l'inconvénient de détruire le soluté qui le traverse, car son principe est de brûler, dans une flamme d'hydrogène, l'effluent apporté. Sous l'effet d'un champ électrostatique, il se forme des ions carbone de charge positive qui sont précipités sur une électrode où ils créent un courant d'ionisation que l'on amplifie grâce à un électromètre amplificateur. Sur un enregistreur, on obtient un signal proportionnel au débit-masse de soluté dans le détecteur. En effet, il n'est pas exactement proportionnel au nombre d'atomes de carbone du composé concerné, car il y a une influence défavorable des autres atomes que C et H. Il est donc nécessaire d'avoir une bouteille d'hydrogène en plus de celle du gaz vecteur. Il faut aussi souffler un peu d'air ou d'oxygène pour assurer la combustion de l'hydrogène (Figure A - 24).

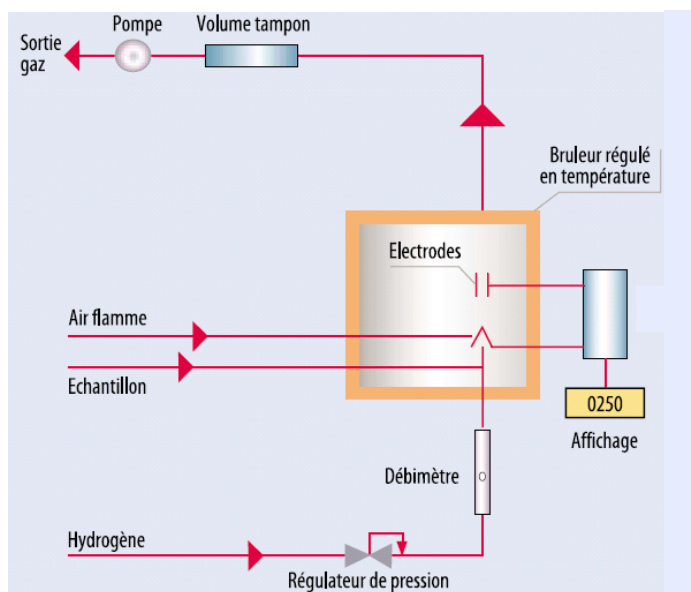


Figure A - 24 – Schéma de principe d'un détecteur à ionisation de flamme d'après la norme NF EN 12619 [AFNOR, 1999c]

Le mécanisme de formation de l'ionisation de substances organiques dans la flamme n'est pas encore complètement élucidé. Il est admis que le processus se déroule en deux étapes. Dans un premier stade, les composés organiques sont craqués dans une zone chauffée centrale en formant des radicaux comme CH^+ , CH_2^+ et CH_3^+ . Cette réaction s'effectue à l'abri de l'oxygène. Les ions se forment dans un deuxième temps, par ionisation chimique avec de l'oxygène, à l'interface de la zone centrale et d'une zone extérieure riche en oxygène :



Les ions formés réagissent dans une atmosphère de vapeur d'eau :



Le rendement de la réaction est très faible : environ une molécule organique sur 100.000 introduites dans une flamme donne lieu à la formation d'un ion positif. L'avantage principal du détecteur à ionisation de flamme est qu'il répond fortement aux composés contenant du carbone organique et, dans une moindre mesure, aux autres composants minéraux des fumées de combustion (tels que CO , CO_2 , NO et H_2O) [NF EN 12619] [AFNOR, 1999c]. Dans les conditions normales d'utilisation le détecteur à ionisation de flamme n'est pas ou très peu sensible aux gaz permanents, composés minéraux (Tableau A - 8).

Tableau A - 8 – Composés donnant peu ou pas de réponse avec détecteur à ionisation de flamme [d'après notice d'utilisation analyseur NIRA Mod. 901Met/NMet Mercury]

He	H_2S	CO
Ar	SO_2	CO_2
Kr	NO	COS
Ne	N_2O	CS_2
Xe	NO_2	CH_2O
O_2	NH_3	$CHOOH$
N_2	H_2O	$SiCl_4$

D'après le fabricant de l'analyseur, il a été établi que la réponse molaire de *n*-alcane est proportionnelle au nombre d'atomes de carbone de la molécule, donc deux molécules d'éthane donnent pratiquement la même réponse qu'une molécule de butane. La réponse est approximativement proportionnelle au débit massique d'alcane qui passe dans le détecteur, quelle que soit sa masse moléculaire. Mais les composés organiques qui contiennent d'autres atomes que C et H ont une réponse molaire plus faible que l'alcane de même nombre d'atomes de carbone. Le nombre de carbone effectif a été introduit pour exprimer ce défaut de réponse.

3.2.3 Echantillonnage

L'analyseur est équipé de deux sondes de prélèvement. La première, de 60 cm de longueur, pour les essais en laboratoire ; a deuxième, de 80 cm de longueur, pour les essais sur chantier (cheminées industriels/centrales d'enrobage). Une fois la sonde installée et raccordée au analyseur FID d'environ 2 mètres, l'échantillonnage est réalisée de façon continue, restant la sonde immobilisée jusqu'à la fin des analyses.

Par contre, l'analyseur FID travaille en continu. Il est capable de prendre de mesures selon un temps variable dont la valeur minimum est 9 secondes. Compte tenu des caractéristiques des émissions (Figure A - 23), 19s est le temps minimum nécessaire d'analyse utilisé pour l'analyseur FID. Après les premières mesures, le temps d'une minute a été donc retenu comme suffisant pour bien représenter l'évolution des émissions organiques émises par la centrale.

Pour les essais réalisés au laboratoire, lors du malaxage des enrobés bitumineux, un temps de 9 s a été suffisant comme limite pour le calcul de l'intégrale (Figure A - 25), le signal revenant à la valeur de la ligne de base. Ce réglage a dû être modifié lors de l'expérimentation réalisée, principalement avec l'utilisation du bitume modifié par de polymères. La forme de la courbe de réponse ayant changé, vraisemblablement en fonction de la nature des composés analysés, il a été nécessaire de passer à un temps d'analyse de 19 s pour tenir compte de l'intégralité du signal (Figure A - 26). En absence de ce réglage, l'analyseur FID donne systématiquement des résultats inférieurs aux réels.

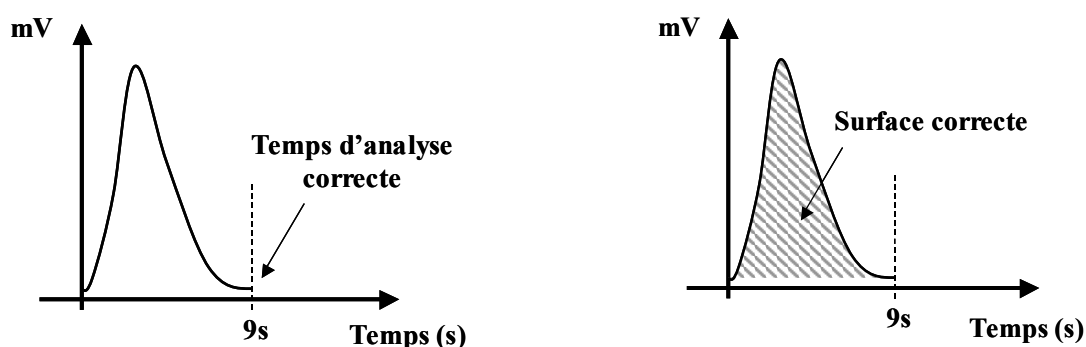


Figure A - 25 – Courbe de réponse fournie par l'analyseur FID et surface correcte calculée en fonction du bon choix du temps d'intégration

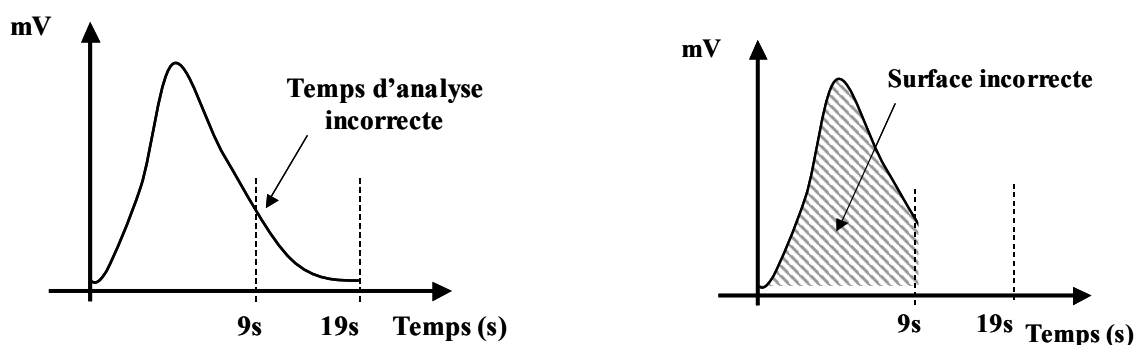


Figure A - 26 – Courbe de réponse fournie par l'analyseur FID et surface incorrecte calculée en fonction d'un mauvais choix du temps d'intégration

3.2.4 Calcul de la masse de polluants

Le facteur de conversion d'une mesure de COT réalisée par l'analyseur en mg/kg (parties par milliard) pour mg Eq.C/Nm³ est de $\frac{3 \times 12}{22,4} = 1,607$ [NF EN 12591] [AFNOR, 1999c], dans le cas d'un étalonnage de l'analyseur FID réalisé avec du propane C₃H₈.

3.2.5 Exemple de calculs de corrections sur les émissions de données brutes

Teneur en oxygène : Le facteur de normalisation en oxygène à 11 % est égal à 1,613 pour la modalité M1. Il a fallu corriger les mesures prises par l'analyseur de COVT. Pour la modalité M1, l'ajustement est constant de -8,8 mg/kg. Pour les modalités M2 à M7, à cause de l'existence d'une déviation négative de sa ligne de base, le facteur de correction d'étalonnage est donné par la formule $y = a \cdot x + b$ où $a = -0,0088$ et $b = 0$. Pour $x = 0$ (début de la M2), la correction $y = 0$. Pour $x = 300$ (fin de la M7), la correction $y = -2,63$ mg/kg.

Homogénéisation des unités : Le facteur de transformation de mg/kg en mg/Nm³ égal à 1,608 et le facteur de correction d'humidité = $1 + (\text{taux d'humidité en kg/Nm}^3) / 0,804$.

Après les ajustements et les corrections, pour la M1, l'émission de COVT est la suivante :

COVT (en mg/Nm³ à 11% O₂) = Émission de COVT (en mg/kg). 1,608. Correction d'humidité. 1,613

Ces corrections sont à refaire sur toutes les modalités fabriquées.

Émissions de CH₄ :

Teneur en oxygène : Le facteur de normalisation en oxygène à 11% est égal à 1,613 pour la modalité M1. Voir chapitre 3, tableau 22 pour les autres modalités.

Homogénéisation des unités : Le facteur de transformation de mg/kg en mg/Nm³ égal à 1,608 et le facteur de correction d'humidité = $1 + (\text{taux d'humidité en kg/Nm}^3) / 0,804$

Après les ajustements et corrections, pour la M1, l'émission de CH₄ est la suivante :

CH₄ (en mg/Nm³ à 11 % O₂) = Émission de CH₄ (en mg/kg). 1,608. Correction d'humidité. 1,613 /3

Ces corrections sont à réaliser sur toutes les modalités fabriquées.

3.3 Mesures des HAP par prélèvement

3.3.1 Echantillonnage et analyse en centrale d'enrobage

L'appareillage utilisé a permis de réaliser des prélèvements isocinétiques de l'effluent gazeux conformément à la norme EN 1948-1 [AFNOR, 2006]. La Figure A - 27 présente la séquence de montage des dispositifs utilisés et la Figure A - 28 présente les dispositifs utilisés.

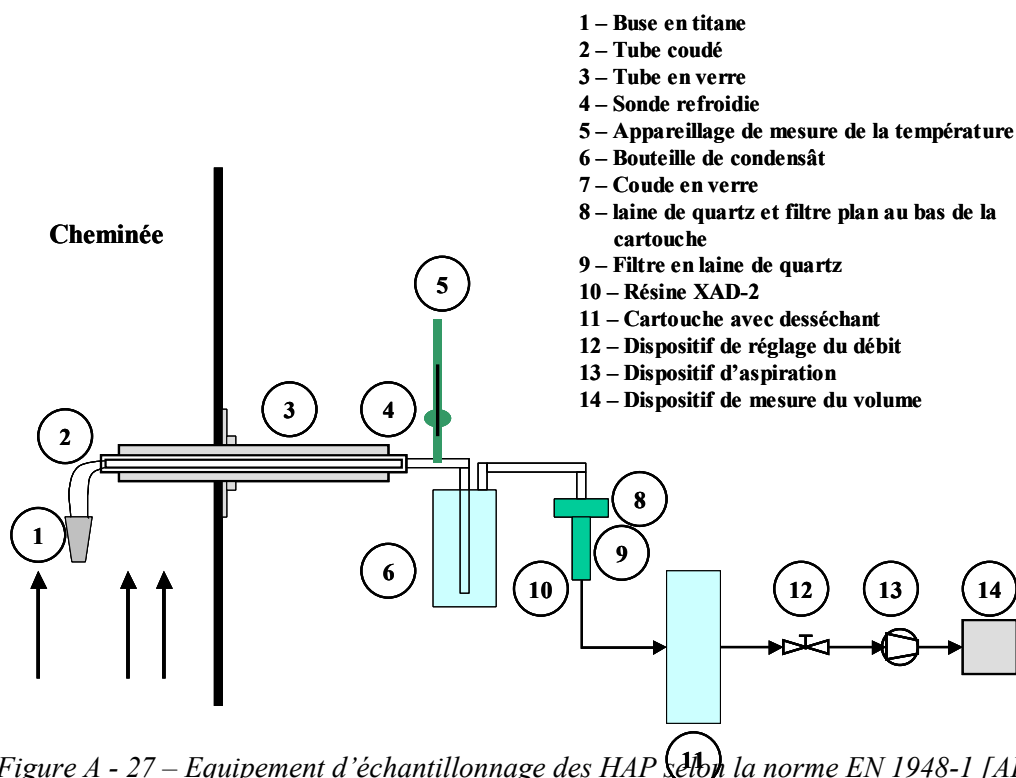


Figure A - 27 – Equipement d'échantillonnage des HAP selon la norme EN 1948-1 [AFNOR, 2006] (méthode de la sonde refroidie)



Figure A - 28 – Détail du cartouche avec desséchant, du dispositif de réglage du débit, dispositif d'aspiration et mesure de volume

3.3.2 Echantillonnage et analyse en laboratoire

Avant de les analyser en laboratoire, nous avons besoins de réaliser des prélèvements. L'appareillage utilisé permet de réaliser un prélèvement iso cinétique de l'effluent gazeux conformément la norme EN 1948-1 [AFNOR, 2006]. Le système de prélèvement des HAP a été mis en place conformément à la norme NF X 43-329 [AFNOR, 2003a]. Il comprend successivement : une sonde chauffante, un cyclone, une ligne d'absorption constituée d'une cartouche en verre munie d'un filtre plan en téflon, d'un condensateur, puis d'un tube adsorbant en verre remplie de polymère XAD-2, un débitmètre, un thermomètre, et une pompe. L'ensemble étant agencé comme suit (Figure A- 29):

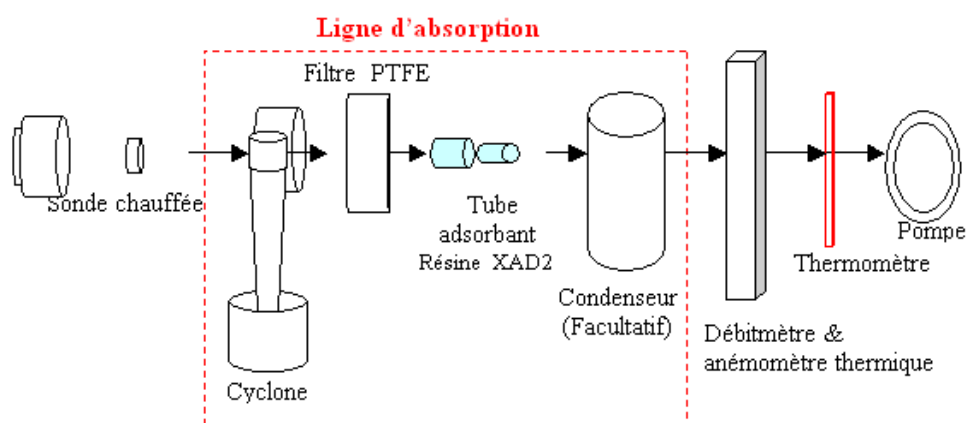


Figure A - 29 – Système de prélèvement de HAP utilisée en laboratoire

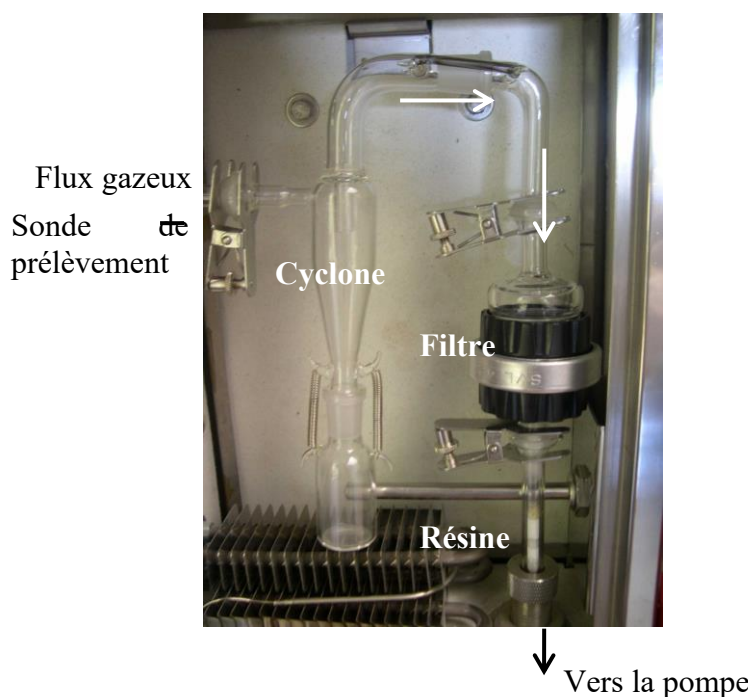


Figure A - 30 – Détail du filtre et de la résine utilisée en laboratoire

3.3.3 Méthodologie développée pour l'extraction et analyse des filtres et des résines

Dans le cadre de la thèse, il a fallu mesurer les émissions d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) en labo en utilisant un malaxeur thermo-régulé pour matériaux enrobés, sachant qu'une durée de malaxage est d'environ 4 minutes pour les malaxages courants de laboratoire. La problématique est liée au matériel et aux HAP recherchés. D'une part, les HAP de la liste de l'EPA (USA) ne sont pas les seuls intéressants, il y a notamment dans le bitume des HAP soufrés qui sont également potentiellement dangereux. Il n'existe malheureusement pas de méthode universelle pour mesurer tous les HAP et la méthode dépend des composés que l'on recherche. D'autre part, mesurer des émissions suppose avoir du matériel adapté pour les échantillonner correctement. Enfin, 4 minutes pourrait être un temps extrêmement court pour récupérer un échantillon suffisamment riche en HAP pour les détecter. La démarche générale d'analyse d'émissions en HAP avec identification des composés comporte plusieurs étapes :

- Échantillonnage: deux types de possibilités:
 - Récupérer des fumées par condensation à l'aide d'un appareillage type SOXHLET (on condense en faisant passer des fumées dans une zone froide) ;
 - Récupérer une partie des fumées, celle contenant les composés intéressants, par adsorption des composés sur une résine adaptée (micro extraction sur phase solide MEPS). On peut utiliser dans ce un espace de tête (headspace), sorte de collecteur étanche miniature qui a l'avantage d'être connecté.
 - Dans les 2 cas, 4 minutes sont très courtes, il s'agit en général d'une heure, mais la durée adaptée serait à déterminer en faisant des essais.
- Purification/concentration : elle n'est nécessaire que dans le cas du SOXHLET. Il faut pouvoir éliminer des composés qui ne nous intéressent pas et qui pourraient gêner les analyses. On procède en général par extraction liquide/liquide qui demande peu de matériel (des ampoules à décanter et des solvants). Là aussi il faut faire des essais pour déterminer des rendements d'extraction et connaître la combinaison de solvants la plus appropriée.
- Analyse : Les composés à analyser sont maintenant contenus sous forme concentrée, soit dans un solvant (SOXHLET) soit sur une résine (MEPS). On utilise en général la chromatographie phase gazeuse (CPG) pour les analyser (dans le cas du MEPS il faut un injecteur particulier). Le détecteur en sortie du CPG peut être un détecteur à fluorescence, dans ce cas, l'identification et la quantification se limitent aux composés dont on possède une solution étalon. On peut aussi utiliser un spectromètre de masse comme détecteur et dans ce cas, on peut, en plus des composés initialement recherchés, identifier des composés inconnus (et parfois les quantifier).

Protocole d'extraction des HAP développé au LCPC et utilisé avec le laboratoire LRPC d'Aix en Provence :

Méthode d'extraction aux ultrasons : On réalise une première désorption aux ultrasons, du filtre et de la résine, qui ont été placés dans des tubes jetables : pour se faire, on utilise 5 ml de d'acétonitrile. L'extraction se fait par agitation dans un bain à ultrasons. Cette première étape dure 15 min. Au bout de ces 15 premières minutes, on transvase le contenu des 2 tubes jetables, dans des tubes à essais gradués , avec bouchon. Les tubes jetables, eux, seront rincés

avec 2 ml d'acétonitrile, que l'on récupérera, pour limiter les pertes des composés à extraire. Les tubes à essai sont ensuite remis 15 min, aux ultrasons.

Concentration des échantillons : les 2 tubes à essai sont placés, dans un bain de sable, à 35 °C, et sont exposés à un courant d'azote. Cette étape dure jusqu'à réduction des échantillons à 2 ml. Les échantillons sont désormais prêts à être analysés en chromatographie liquide.

Stockage des échantillons : La mise en solution doit être effectuée moins d'une semaine après échantillonnage. Les solutions peuvent être conservées à l'abri de la lumière, et entre 0 °C et 5 °C, pendant un maximum de 15 jours avant l'analyse.

Protocole d'extraction des HAP développé par le fournisseur du bitume type A:

L'extraction des filtres et de résines (tubes absorbants) est réalisée selon les étapes de la méthode 5506 du *National Institute for Occupational Safety and Health* [NIOSH, 1998 b] afin de retenir les HAP. Sachant qu'il s'agit des traces des composants organiques dans les filtres et résines et qu'on manipule des éléments chimiques tels que le dichlore-méthane et le benzène, toute la procédure d'extraction doit être réalisée avec des gants adéquats. Tous les filtres doivent être pesés (précision du 0,001 mg) avant le prélèvement des fumées dans une balance à température et humidité constantes.

Matière particulaire Total (MPT) : Il s'agit de toute la poussière, particules minérales, piégées sur le filtre à particules. Il faut peser le filtre à particules avant et après le prélèvement. La concentration est obtenue par son rapport avec le volume en m³ prélevé.

Volatils et Semi-volatils (SV) : Les volatils et les semi-volatils piégés dans la résine adsorbant XAD-2 sont extraits à l'aide du dichlore-méthane. Les étapes principales sont les suivantes :

- i. Le tube adsorbant est constitué de couches de résine et de laine de verre. Il doit être cassé au niveau de la 1^{ère} couche de laine ;
- ii. La laine de la 1^{ère} couche doit être enlevée à l'aide d'une pince ;
- iii. Les billes de résine désormais libres doivent être récupérées dans un flacon propre. Maintenir le flacon fermé ;
- iv. La laine de la 2^{ème} couche doit être enlevée à l'aide d'une pince ;
- v. Les bulles de résine désormais libres doivent être récupérés dans le même flacon déjà utilisé.

Note : Il y a toujours la possibilité de réaliser l'extraction de la 2^{ème} couche séparément.

- vi. Par chaque flacon, ajouter 1,5 ml de dichlore-méthane.
- vii. Laisser décanter une demi-heure. Agiter manuellement trois fois lors de l'attente ;
- viii. A l'aide d'une seringue, prélever une quantité suffisante dans un flacon spécifique pour l'analyse chromatographique (chromatographie gazeuse et détection par fluorométrie).

Note : rincer la seringue avec du dichlore-méthane plusieurs fois.

Matière Soluble dans le Benzène (MSB) : Les aérosols organiques piégés dans le filtre à particules sont extraits à l'aide du benzène. Les étapes principales sont les suivantes :

- i. Rouler le filtre dans un tube à essai ;

ii. Ajouter 3 ml du benzène pur ;

iii. Agiter 20 min aux ultrasons ;

iv. A l'aide d'une seringue prélever les 3 ml ;

Note : rincer la seringue avec du benzène plusieurs fois.

v. Ajouter en sortie de seringue un petit filtre (diamètre de 0,5 μm) et injecter le concentré vers un pot en PTFE (téflon) préalablement pesé (0,05 g);

Note : le petit filtre (0,5 μm) retient les particules minérales en suspension dans le benzène.

vi. Placer le tube à essai dans une enceinte à 60 °C afin d'évaporer le benzène à l'aide d'un flux d'azote ;

vii. Remplir à nouveau de 3 ml de benzène pour une deuxième extraction. Refaire les étapes v et vi (concentration et évaporation) ;

viii. Après la concentration finale, sécher le filtre à 45 °C dans une étuve sous vide pendant 2 heures ;

ix. Après stockage au dessiccateur, repeser le pot en PTFE (précision 0,001 mg) pour déterminer la quantité résiduelle de benzène soluble (MSB) ;

x. Procéder à l'analyse chromatographique (chromatographie gazeuse et détecteur fluorimétrique) ou stocker la MSB dans le réfrigérateur.

Note : pour la chromatographie, il faut ajouter le solvant tétrahydrofurane jusqu'à concentration 0,5 mg/ml.

xi. Calculer les résultats selon préconisé par la méthode NIOSH 5506.

Analyses des Semi-volatils (SV) et de la Matière Soluble dans le Benzène (MSB)

La Matière Soluble dans le Benzène (MSB) et les émissions de Semi-volatils (SV) sont évaluées par une chromatographie gazeuse réalisée sur les concentrés extraits des filtres et des résines, qui donnent des courbes « type » selon la Figure A - 31. Les Semi-Volatils sont piégés dans la résine et les composants plus lourds (y compris les HAP) sont piégés dans les filtres.

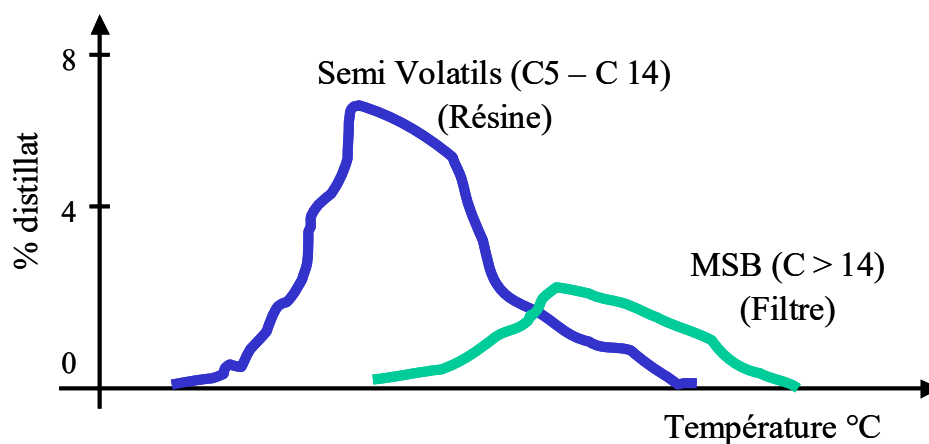


Figure A - 31 – Résultats typiques d'une chromatographie gazeuse réalisée sur des fumées du bitume

4 Résultats bruts de mesures sur sites industriels

Caractéristique du flux gazeux et informations sur les fabrications en conditions usuelles de fabrication sur le TSE mobile au fuel lourd

Jeudi 27 juillet

INFORMATIONS FABRICATION GB 0/14

← AUTOMATE → PUPITRE DE COMMANDE → CAPTEUR

Heure	Cadence	Temp. Enrob.	Temp. Bit.	Brûleur	Fuel	Registre	Temp. Gaz	Temp. Fuel	Ten. Eau	Dépression	Temp. Gaz	Temp. Ext.	Dépression
	t/h	°C	°C	%	l/h	%	°C	°C	%	Pa	°C	°C	Pa
08:00	151	154	158	43	780	33		160	1,4	80			
08:04	151	154	159										
08:08	151	156	160										
08:12	151	160	161										
		Changement d'allure de											
08:12	150	161											
08:16	149	162	162										
08:20	140	171	162										
08:20	0	Arrêt en charge											
09:11	0	Départ en charge									50	21	2
09:18	136	130	163								79	22	60
09:22	139	156	163								100	22	75-84
09:26	140	156	163	39	720	25	141	160	1,4	80	111	22	68-82
09:30	140	159	163								117	22	65-83
09:34	139	161	163								123	22	49-59
09:42	140	161	163								125	22	56-70
09:46	140	161	163								126	22	55-66
09:50	140	162	163								128	23	60
09:58	139	164	163	38	660	29	154	160	1,4	82	128	23	60-54
10:02	140	161	163								129	22	50-62
10:06	140	161	163								129	23	66
10:10	139	159	163										
10:14	139	160	163								129	24	67-70
10:15	0	Arrêt en charge											
11:03	0	Départ en charge									50	24	
11:10	137	133	160	38	720	29	148	160	1,4	80	100	24	61-73
11:14	140	159	160								112	25	59-74
11:18	140	155	160								119	26	52-60
11:22	140	157	160								124	26	42-47
11:26	139	159	160								126	27	42-58
11:30	139	158	160								128	27	36-47
11:34	139	159	160								130	27	56-62
11:38	139	160	160								131	28	34-40
11:42	139	160	160										
11:46	139	161	161								131	28	34-40
11:50	139	162	161								131	27	35
11:54	140	161	161								132	28	
11:58	140	162	162										
12:02	139	161	163								132	29	
12:06	140	160	163										
12:10	140	161	164										
12:10		Arrêt en charge											
13:07		Départ en charge											

Vendredi 28 juillet

INFORMATIONS FABRICATION BBSG 0/10

← AUTOMATE → PUPITRE DE COMMANDE → CAPTEUR

Heure	Cadence	Temp. Enrob.	Temp. Bit.	Brûleur	Fuel	Registre	Temp. Gaz	Temp. Fuel	Ten. Eau	Dépres sion	Temp. Gaz	Temp. Ext.	Dépres sion
	t/h	°C	°C	%	l/h	%	°C	°C	%	Pa	°C	°C	Pa
08:21	141	163	158										
08:25	141	163	158										
08:29	141	164	158										
08:33	141	164	159										
08:37	141	164	159										
08:41	141	164	160										
08:45	0	Arrêt en charge											
09:12	0	Départ en charge									101	18	/
09:19	137	151	163		660						105	19	76-91
09:23	141	156	164	39	720	28	135		1,3	80			
09:25	141	Changement d'allure de 140 à 130 t/h									115	19	62-80
09:27	141	157	164										
09:31	134	159	164								118	19	52-65
09:32	0	Arrêt en charge									117	19	/
10:22	0	Départ en charge											
10:28	127	147	163								100	21	39-44
10:31	0	Arrêt formule											

5 Méthode de fabrication des enrobés bitumineux avec analyse des émissions engendrées

Phase préliminaire – avant introduction du bitume

- I Régler la vanne (Figure 28 chapitre 4) vers la direction « sortie » ;
- II Placer les granulats (environ 72 kg) préalablement chauffés (jusqu'à masse constante) dans le malaxeur préalablement chauffé à la température de consigne et mise en marche pendant 15s +/- 5s afin de bien les homogénéiser (malaxage à blanc).
- III Vérifier la température de l'essai blanc (T_{eb}) .

Phase principale – fabrication et prélèvement gazeux

- IV Régler la vanne vers la direction « prélèvement » (Figure 28 chapitre 4);
- V Introduire le bitume préalablement chauffé pendant 3 à 5 heures à température de consigne dans le malaxeur ;
- VI Mise en marche les dispositifs de prélèvement iso-cinétique : pompe pour les HAP et Analyseur en continu pour les COT ;
- VII Mettre en marche le malaxeur (en vitesse 1 – 52 tours/min) pendant 30 min ;
- VIII Veiller pour que le débit de prélèvement des HAP (pompe) soit constant à $15 \text{ L} \times \text{min}^{-1}$.

Phase finale – fin du prélèvement

- IX Eteindre le malaxeur, la pompe d'aspiration et l'analyseur FID ;
- X Réorienter la vanne vers la « sortie » (Figure 28 chapitre 4);
- XI Annoter l'heure finale d'essai ;
- XII Mesurer la température finale de l'enrobé T_{final} ;
- XIII Ramener l'ensemble d'échantillons contenant des HAP au laboratoire de préparation:

Caractérisation mécanique de l'enrobé

- XIV Décharger le malaxeur et faire le prélèvement de l'enrobé fabriqué:
 - Pour les essais jugeant de la qualité de l'enrobé (vieillissement), confectionner une plaque d'environ 72 kg pour la réalisation des essais mécaniques;
 - Pour les essais jugeant de la qualité du bitume, prélever 5 kg d'enrobés foisonné.

6 Plan d'expérience : calculs des effets

Les calculs des effets est calculé selon le chapitre 2, d'après le modèle mathématique de Goupy [Goupy, 1988]. Pour les trois facteurs à étudier, il faut créer la matrice des effets du plan d'expérience (Tableau A - 9).

Tableau A - 9 – Matrice des effets du plan d'expérience

Essai	Moyenne	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Interaction 12	Interaction 13	Interaction 23	Interaction 123	Réponse 1 (pénétrabilité)
1	1	-1	-1	-1	1	1	1	-1	-15
2	1	1	-1	-1	-1	-1	1	1	-25
3	1	-1	1	-1	-1	1	-1	1	-15
4	1	1	1	-1	1	-1	-1	-1	-22
5	1	-1	-1	1	1	-1	-1	1	-12
6	1	1	-1	1	-1	1	-1	-1	-15
7	1	-1	1	1	-1	-1	1	-1	-8
8	1	1	1	1	1	1	1	1	-15

Exemple de calculs pour la réponse pénétrabilité : il s'agit de calculer la somme de la multiplication de deux colonnes – colonne « réponse » multipliée par les colonnes « moyenne » et « facteurs » de la matrice des effets :

$$\text{Effet sur la moyenne} = -15 \times 1 - 25 \times 1 - 15 \times 1 - 22 \times 1 - 12 \times 1 - 15 \times 1 - 8 \times 1 - 15 \times 1 = -127$$

$$\text{Effet sur le facteur 1} = -15 \times -1 - 25 \times 1 - 15 \times -1 - 22 \times 1 - 12 \times -1 - 15 \times -1 - 8 \times -1 - 15 \times 1 = -27$$

$$\text{Effet sur le facteur 2} = -15 \times -1 - 25 \times -1 - 15 \times 1 - 22 \times 1 - 12 \times 1 - 15 \times 1 - 8 \times 1 - 15 \times 1 = 7$$

$$\text{Effet sur le facteur 3} = -15 \times -1 - 25 \times -1 - 15 \times -1 - 22 \times -1 - 12 \times 1 - 15 \times 1 - 8 \times 1 - 15 \times 1 = 27$$

$$\text{Effet sur le facteur 12} = -15 \times 1 - 25 \times -1 - 15 \times -1 - 22 \times 1 - 12 \times 1 - 15 \times -1 - 8 \times -1 - 15 \times 1 = -1$$

$$\text{Effet sur le facteur 13} = -15 \times 1 - 25 \times -1 - 15 \times 1 - 22 \times -1 - 12 \times -1 - 15 \times 1 - 8 \times -1 - 15 \times 1 = 7$$

$$\text{Effet sur le facteur 23} = -15 \times 1 - 25 \times 1 - 15 \times -1 - 22 \times -1 - 12 \times 1 - 15 \times -1 - 8 \times 1 - 15 \times 1 = 1$$

$$\text{Effet sur le facteur 123} = -15 \times -1 - 25 \times 1 - 15 \times 1 - 22 \times -1 - 12 \times 1 - 15 \times -1 - 8 \times -1 - 15 \times 1 = -7$$

Les calculs réalisés sont présentés dans le Tableau A-10, pour la réponse pénétrabilité. Le calcul final de l'effet est réalisé par la division de cette somme calculée par 8 (nombre d'essais réalisés). Les effets sur la réponse pénétrabilité sont les suivants :

$$\text{Effet moyenne} = -127/8 = -15,875$$

$$\text{Effet facteur 1} = -27/8 = -3,375$$

$$\text{Effet facteur 2} = 7/8 = 0,875$$

$$\text{Effet facteur 3} = 27/8 = 3,375$$

$$\text{Effet interaction 12} = -1/8 = -0,125$$

$$\text{Effet interaction 13} = 7/8 = 0,875$$

$$\text{Effet interaction 23} = 1/8 = 0,125$$

$$\text{Effet interaction 123} = -7/8 = -0,875$$

Tableau A - 10 – Calculs des effets pour la réponse « pénétrabilité »

	<i>Moyenne</i>	<i>Facteur 1</i>	<i>Facteur 2</i>	<i>Facteur 3</i>	<i>Interaction 12</i>	<i>Interaction 13</i>	<i>Interaction 23</i>	<i>Interaction 123</i>
Essai 1	-15	15	15	15	-15	-15	-15	15
Essai 2	-25	-25	25	25	25	25	-25	-25
Essai 3	-15	15	-15	15	15	-15	15	-15
Essai 4	-22	-22	-22	22	-22	22	22	22
Essai 5	-12	12	12	-12	-12	12	12	-12
Essai 6	-15	-15	15	-15	15	-15	15	15
Essai 7	-8	8	-8	-8	8	8	-8	8
Essai 8	-15	-15	-15	-15	-15	-15	-15	-15
Somme	-127	-27	7	27	-1	7	1	-7
Nombre d'essais	8	8	8	8	8	8	8	8
Effet	-15,875	-3,375	0,875	3,375	-0,125	0,875	0,125	-0,875

Le calcul des effets sur les autres réponses est identique à celle réalisé par la réponse 1, sachant qu'il faut changer la colonne « réponse » selon le choix.

7 Prévisions du modèle mathématique utilisé en laboratoire

Les effets de chaque facteurs sur les réponses sont visualisés, en s'appuyant sur les équations développées, par des courbes d'évolution (iso courbes).

Les figures ci-après présentent les évolutions en fonction de la température, du module de richesse et de la volatilité du bitume de la pénétrabilité, de la TBA, des liaisons C=O et S=O, représentative du vieillissement du bitume, et du potentiel et de la valeur du pic d'émission de COT.

Pour les interpréter, il faut prendre en compte le fait que :

- Les courbes (couleurs) sont représentatives de la valeur trouvée qui change du bleu (plus faible) jusqu'au rouge (plus fort) ;
- L'inclinaison des courbes (couleurs) indique que la température et le module de richesse ont une influence sur la réponse analysée ;
- Une inclinaison à 45° indique que les facteurs ont un même poids d'importance ;

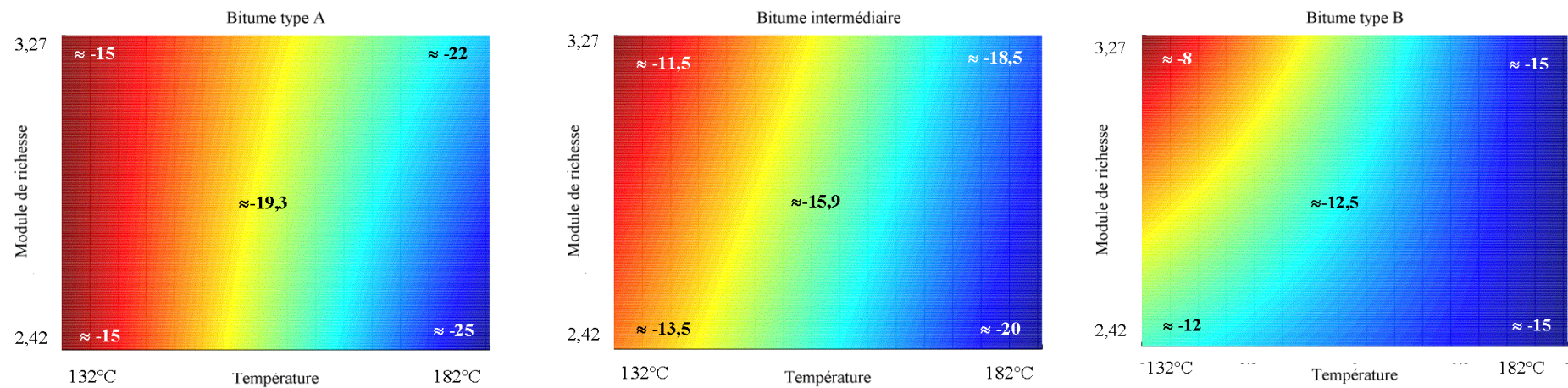


Figure A - 32 - Évolution de la pénétrabilité en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

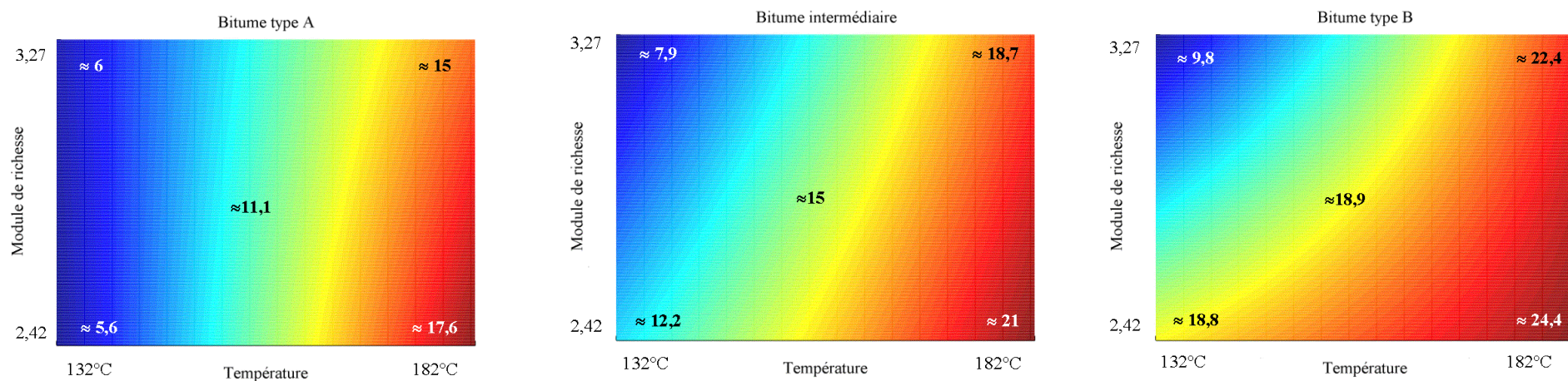


Figure A - 33 - Évolution de la TBA en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

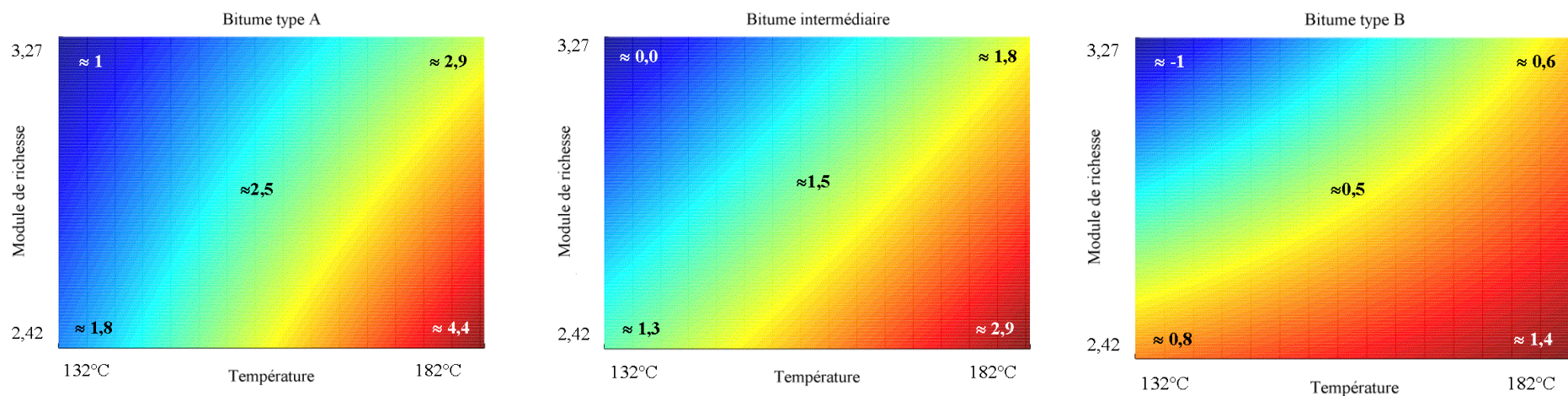


Figure A - 34 - Évolution des liaisons $C=O$ en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

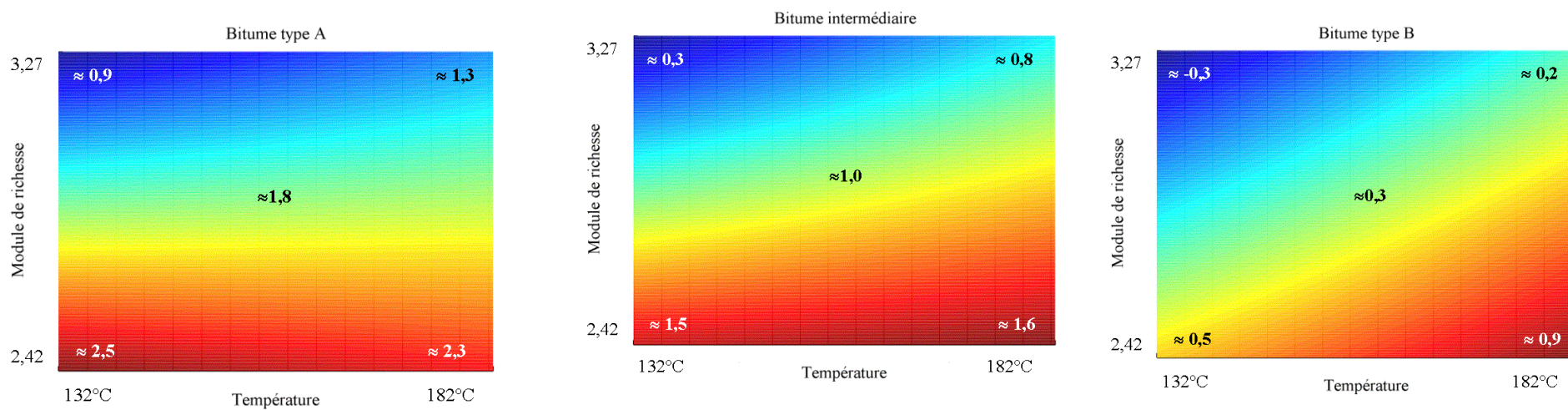


Figure A - 35 - Évolution des liaisons $S=O$ en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

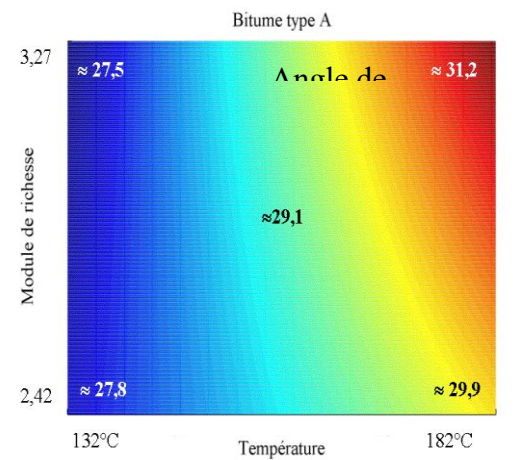
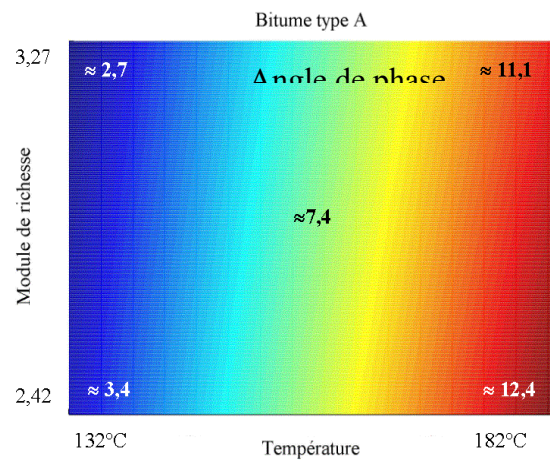


Figure A - 36 - Évolution du module complexe du bitume en fonction de la température et du module de richesse de l'enrobé pour le bitume type A

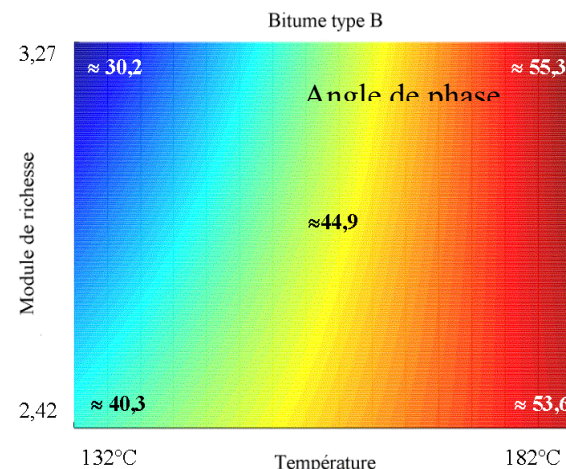
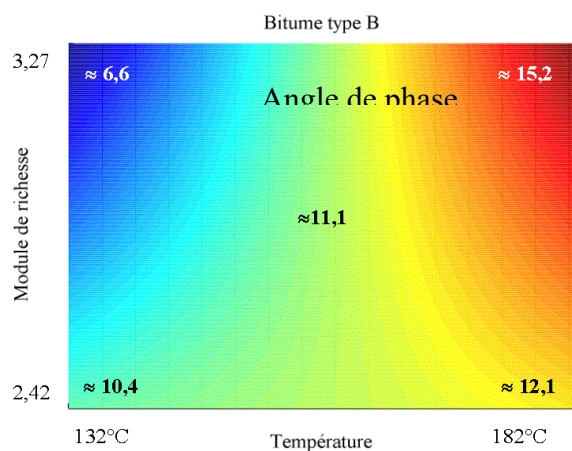


Figure A - 37 - Évolution du module complexe du bitume en fonction de la température et du module de richesse de l'enrobé pour le bitume type B

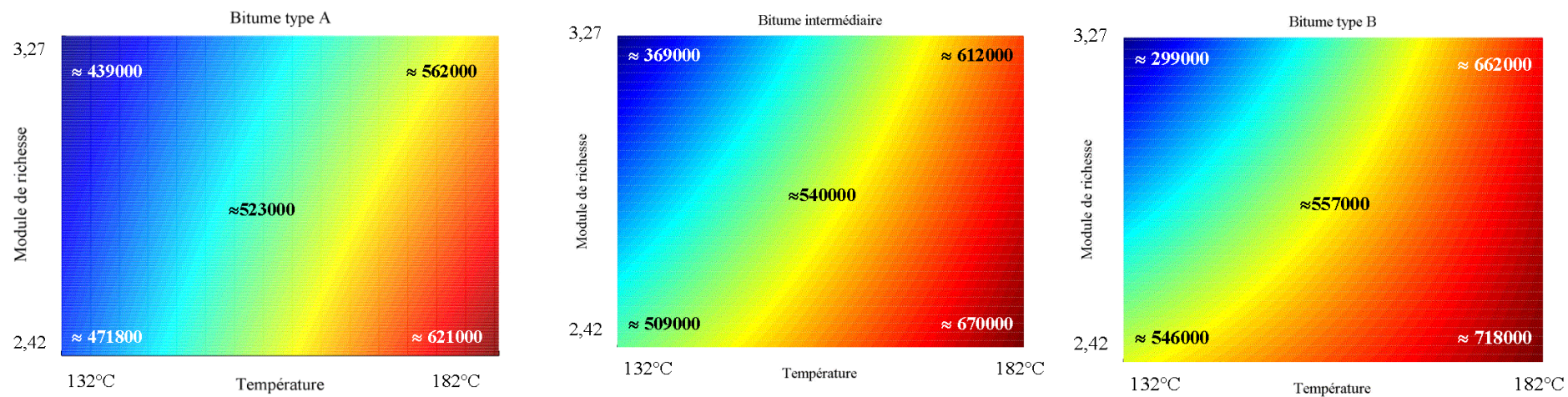


Figure A - 38 - Évolution du Potentiel d'émission en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

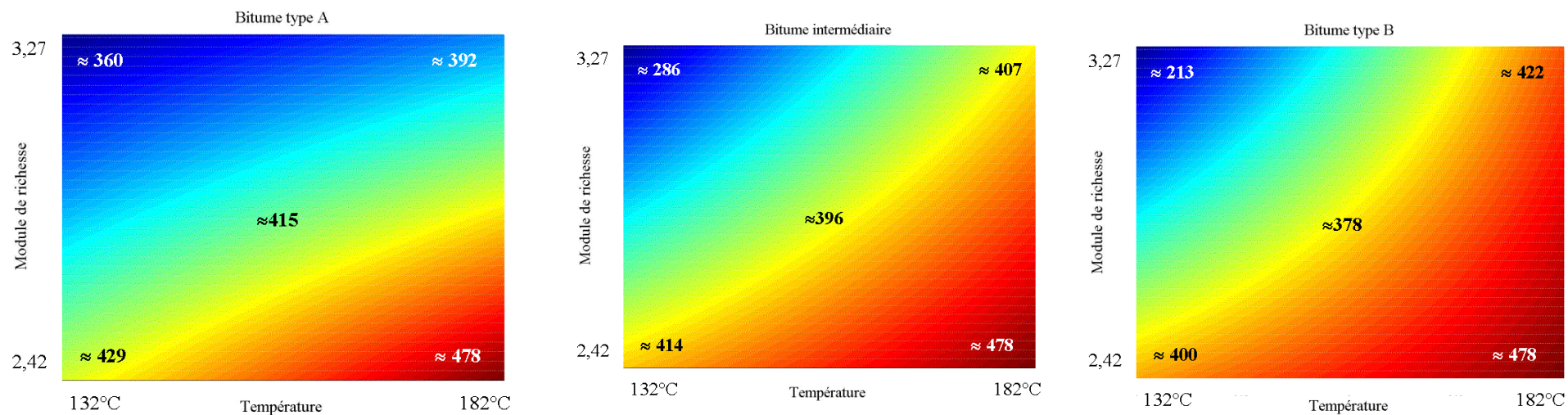


Figure A - 39 - Évolution du Valeur de Pic d'émission en fonction de la température, du module de richesse de l'enrobé et de la volatilité du bitume

Résumé

La plupart des ouvrages routiers utilisent de l'enrobé bitumineux fabriqué en centrale d'enrobage à chaud. L'objectif initial de la thèse visait à identifier les conditions relatives à la combustion ayant une influence sur la qualité de l'enrobé fabriqué et si, en étudiant la qualité de l'enrobé fabriqué selon différentes conditions industrielles, il était possible de mettre en relation les émissions et le vieillissement des enrobés. Ces aspects ont été abordés pour deux centrales d'enrobage de type Tambour Sécheur Enrobeur au fuel lourd et au gaz naturel, afin de caractériser et dissocier les émissions produites en centrale au cours de la combustion de celles produites par les différents enrobés fabriqués, en précisant chaque contribution à l'ensemble.

Ainsi, l'objet principal de la thèse a consisté à élaborer une méthodologie d'analyse multi-échelles du procédé d'enrobage. Une première échelle, celle de l'enrobage en centrale a d'abord été considérée afin d'analyser, *in situ*, la production d'enrobé selon une méthodologie appropriée et d'obtenir des plages d'émissions en relation avec la consommation. Il a aussi été mené en parallèle une étude à l'échelle du laboratoire, pour évaluer le procédé de malaxage de l'enrobé, en caractérisant les émissions et le vieillissement de l'enrobé produit.

Les concentrations de O₂, CO₂, CO, SO₂, COT, CH₄ et HAP ont été mesurées sur les deux centrales, pour la totalité des paramètres dans des conditions dédiées de fabrication et une partie d'entre eux dans des conditions usuelles. En laboratoire, des mesures spécifiques de COT et de HAP ont permis de caractériser les émissions issues de l'enrobé en utilisant un malaxeur thermo-régulé équipé d'une cheminée. Deux indicateurs ont été proposés: l'un lié à la combustion en centrale, pour repérer des conditions de fabrications stabilisées, et l'autre lié au potentiel d'émission des matériaux en laboratoire, pour permettre les comparaisons des émissions pour des températures, types de bitumes et formules différentes. L'indicateur potentiel d'émission des matériaux, comme l'indicateur de combustion, on l'a montré au fur et mesure de l'étude, dépendent du process étudié de type enrobage en tambour sécheur (avec renouvellement du bitume), malaxage en malaxeur de laboratoire (avec une masse de bitume constante) ou encore agitation du bitume sur un banc d'essai. Les résultats obtenus restent aujourd'hui caractéristiques des équipements utilisés tout en offrant des perspectives permettant de dégager des conclusions à toutes les échelles pour les COT émis en fonction de la température.

Mots clés : Centrale d'enrobage TSE, Émissions gazeuses, COT, HAP et vieillissement

Abstract

Multi-scales approach of emissions by a Drum Mixer Hot Mix Asphalt Plant

The major part of road works uses Hot Mix Asphalt (HMA) produced in HMA plants. The initial objective of the thesis aimed at identifying the conditions relating to combustion having an influence on the HMA quality and, by studying the quality of the HMA according to various industrial conditions how it would be possible to link the emissions and to aging of the asphalt. These topics were considered for two Drum Mixer Plants running in with fuel and natural gas in order to characterize and uncouple emissions produced in a HMA Plant, during combustion, from those produced by the various manufactured bituminous mixtures, by specifying each contribution to the whole airborne emissions.

Thus, the main objective of the thesis finally consisted in working out a methodology of multi-scales analysis of HMA process. A first scale, that of processing asphalt in a HMA Plant, was initially considered in order to analyze *in situ* the production of bituminous mix according to a suitable methodology and to obtain a range of emissions in relation to consumption. Besides, it was also carried out a study at the laboratory scale in order to evaluate the process of bituminous mix, by characterizing the emissions and the aging of the bituminous mix produced.

The concentrations of O₂, CO₂, CO, SO₂, TOC, CH₄ and PAH were measured on the two HMA Plants under dedicated running-in conditions and part of them under usual conditions. In laboratory tests, specific measurements of TOC and PAH made it possible to characterize the emissions resulting from the bituminous mix by using a thermo-mixer equipped with a chimney. Two indicators were proposed: one related to the quality of combustion in HMA Plants in order to find stabilized conditions of production, and the other related to the potential of materials emission in laboratory in order to allow emissions comparisons for temperatures, types of binders and different formula. According to the study, the emissions potential indicator as well as quality combustion indicator depends on the process studied, i.e. HMA produced in a Drum Mixer (with renewal of the bitumen), HMA produced in a laboratory mixer (with a constant bitumen mass) or still in a bitumen fumes generator. The results obtained remain today characteristic of the equipment used, while offering ways that make it possible to draw conclusions at each scale concerning the TOC emitted in relation with the temperature.

Key words : Drum Mixer, Hot Mix Asphalt Plant, Gas Emissions, TOC, PAH and aging

