



UNIVERSITA' POLITECNICA DELLE MARCHE  
FACOLTA' DI INGEGNERIA

---

CORSO DI LAUREA TRIENNALE IN INGEGNERIA CIVILE E  
AMBIENTALE

Ottimizzazione della produzione di bio-leganti mediante  
utilizzo di lignina

Optimization of the production of bio-binders using lignin

Relatore:  
Prof. Ing. Francesco Canestrari

Correlatore:  
Prof. Ing. Fabrizio Cardone

Tesi di Laurea di:  
Krajewska Marta Anna

---

Anno accademico 2020/2021

*Un ringraziamento speciale va ai  
miei genitori Hanna e Maciej, a mia  
sorella Monika e a tutte le persone  
care che mi sono state vicine in  
questo percorso.*

# Indice:

<b>Introduzione</b> .....	4
<b>I leganti bituminosi</b> .....	6
1.1 Bitumi per applicazioni stradali .....	6
1.2 Produzione di bitume .....	6
1.3 Chimica del bitume .....	7
1.4 Classificazione dei bitumi .....	7
1.5 Necessità dei bitumi modificati .....	8
<b>Stato dell'arte</b> .....	10
2.1 Bio-materiali per la modifica dei bitumi .....	10
2.2 Lignina come bio-legante .....	11
2.3 Impiego della lignina in letteratura .....	12
<b>Indagine sperimentale</b> .....	14
<b>3.1 Materiali</b> .....	15
3.1.1 Bitumi .....	15
3.1.2 Lignine .....	17
<b>3.2 Apparecchiature</b> .....	19
3.2.1 Miscelatore Ross .....	19
3.2.2 Prova di penetrazione .....	21
3.2.3 Palla-anello .....	24
3.2.4 Prova di viscosità .....	27
3.2.5 RTFOT .....	31
<b>3.3 Programma sperimentale</b> .....	34
<b>Risultati sperimentali</b> .....	38
4.1 Risultati della prova di penetrazione .....	38
4.2 Risultati della prova di palla-anello .....	47
4.3 Risultati della prova di viscosità .....	49
<b>Conclusioni</b> .....	56
<b>Bibliografia</b> .....	58

# Introduzione

La seguente sperimentazione ha come obiettivo lo studio dei leganti tradizionali modificati con la lignina.

Il problema nasce dal fatto che il bitume, idrocarburo di origine naturale proveniente dal petrolio e ampiamente utilizzato come uno dei componenti principali delle pavimentazioni stradali, non è una fonte rinnovabile e pertanto è destinato a finire.

Da qui, nasce quindi l'esigenza di trovare un'alternativa valida per poterlo sostituire.

Le ricerche nell'ambito stradale si orientano pertanto all'utilizzo di bio-polimeri facilmente rinnovabili come una parziale sostituzione del bitume; la seguente ricerca prevede l'utilizzo di un particolare bio-polimero: la lignina, che proviene da cellule vegetali.

L'utilizzo della lignina nell'ambito stradale mira a diminuire la richiesta del bitume e a rendere la produzione di pavimentazioni stradali ecosostenibile e ad un minor impatto ambientale.

La sperimentazione portata avanti si è posta come obiettivo quello di inglobare la lignina nel bitume, massimizzare la percentuale sostituita e creare un legante che abbia le medesime caratteristiche prestazionali e fisiche di un bitume di riferimento; a tale scopo si è scelto il bitume di classe di consistenza 50/70 in quanto è il più utilizzato alle latitudini italiane.

La scelta del bitume di riferimento ha portato all'utilizzo di vari leganti nella fase di sperimentazione, infatti sono stati scelti leganti tradizionali di diverse classi di consistenza, più morbidi del bitume di riferimento in quanto la lignina tende ad indurire il legante: 70/100, 100/150, 160/220 e due leganti modificati con polimeri SBS: PBM SOFT e PBM HARD.

Le percentuali in peso di lignina utilizzate sono state via via maggiori ma diverse in base al bitume utilizzato, percentuali maggiori per bitumi tradizionali e minori per quelli già modificati.

Per verificare l'idoneità dei leganti ottenuti, basati sul Capitolato Specifico D'appalto ANAS, sono state eseguite le prove di penetrazione, viscosità dinamica, palla-anello e invecchiamento a breve termine (RTFOT).

La seguente tesi è stata suddivisa pertanto in 5 capitoli: capitolo 1 in cui si parla dei leganti bituminosi, capitolo 2 che tratta i bio-materiali e in particolare

la lignina, capitolo 3 (indagine sperimentale) nel quale vengono presentati i materiali utilizzati, le procedure delle prove e i macchinari, capitolo 4 in cui si discutono i risultati ottenuti e un capitolo conclusivo in cui si stabilisce la possibilità dell'impiego della lignina nell'ambito stradale.

# Capitolo 1

## I leganti bituminosi

### 1.1 I bitumi per applicazioni stradali

Il bitume è una miscela di idrocarburi che si può trovare in natura così com'è o lo si può ricavare dalla raffinazione del greggio.

Si presenta come un materiale adesivo, isolante, non volatile, di colore nero, a temperatura ambiente presenta uno stato solido mentre se scaldato diventa un liquido ad alta viscosità.[1]

Quando si parla dei leganti bituminosi si fa riferimento sia ai bitumi tradizionali che ai bitumi modificati con polimeri (PMB).

I leganti bituminosi servono a garantire coesione ai conglomerati bituminosi: miscele di bitume, aggregati e filler con i quali si costruiscono le pavimentazioni stradali.

### 1.2 Produzione di bitume

Se si tratta di bitume naturale esso si può trovare in natura sotto forma di sacche nel sottosuolo oppure come affioramento superficiale, questi pozzi di bitume naturale sono presenti soprattutto in Mar Morto, Siria, Trinidad, Venezuela, Messico, Cuba e Transylvania.[2]

Se il bitume proviene dal greggio di petrolio deve subire la distillazione frazionata (figura 1.1).

La distillazione del greggio avviene nelle torri di frazionamento seguendo il principio delle diverse temperature di ebollizione dei suoi componenti.

La distillazione ha due fasi: nella parte iniziale chiamata distillazione a pressione atmosferica si eliminano dal composto tutte le fasi leggere e cioè quelle volatili, questo processo avviene ad una temperatura di circa 350-400°C.

La seconda fase, o distillazione sotto vuoto (425-565°C), vede protagonisti gli scarti della distillazione a pressione atmosferica; in questo processo vengono eliminate le frazioni più pesanti e quello che rimane sul fondo perché incapace di volatilizzare è proprio il bitume.

Una volta estratto dalla torre, il bitume può essere utilizzato così com'è oppure può subire altri processi come l'ossidazione a caldo o diluizione con solventi.

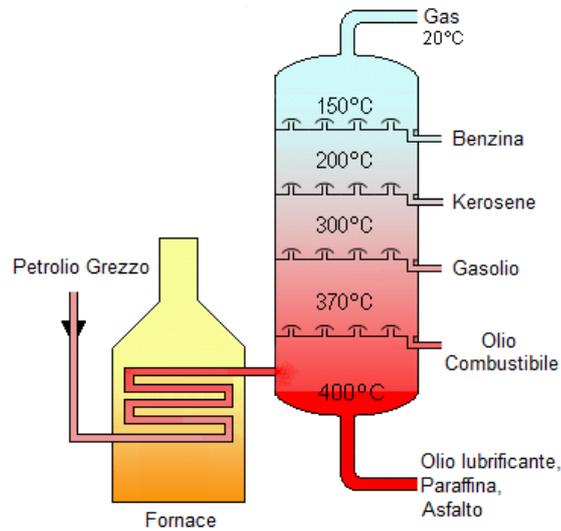


Figura 1.1 Torre di frazionamento. [3]

### 1.3 Chimica del bitume

In base alla provenienza del greggio gli idrocarburi presentano una struttura e composizione diversa, tuttavia nella maggior parte dei casi questi sono composti per il 90% da carbonio e idrogeno e per il restante 10% da zolfo, ossigeno e azoto.

### 1.4 Classificazione dei bitumi

Per caratterizzare i bitumi si possono usare prove strumentali, come ad esempio la prova di penetrazione oppure prove reologiche.

Nel primo caso i bitumi vengono classificati in base al valore della penetrazione, una prova standardizzata, ad una temperatura di 25°C; oltre al valore della penetrazione vengono forniti altri dati quali la viscosità, punto di rammollimento, punto di rottura, ritorno elastico e i valori a seguito della prova RTFOT (invecchiamento a breve termine).

Questi dati vengono poi raccolti in tabelle che vanno a costituire i Capitolati Speciali d'Appalto, assumono cioè il valore di normative da utilizzare.

Un bitume pertanto per essere classificato e associato ad una determinata classe di consistenza deve rispettare tutti i valori presenti nella tabella di riferimento.

Da notare quindi che questa classificazione non tiene conto delle effettive prestazioni pratiche ecco perché spesso per classificare i bitumi si usa la classificazione reologica la quale prevede di suddividere i bitumi in diverse classi in base a una determinata prestazione attesa, che va a rappresentare quella effettiva d'impiego. Questo tipo di classificazione prende il nome di SUPERPAVE.

Questa classificazione fornisce dei range di temperature massime e minime alle quali un dato bitume può essere utilizzato ed entro le quali garantisce delle determinate prestazioni come ad esempio la resistenza all'ormaiamento, alla fatica o alla rottura termica.[4]

## 1.5 Necessità dei bitumi modificati

L'idea di produrre bitumi modificati (PMB) nasce dalla necessità di garantire migliori risultati in termini di prestazioni meccaniche e durabilità rispetto ai bitumi tradizionali.

I bitumi modificati, trovano un ampio utilizzo nelle strade ad alta velocità e traffico quali autostrade e superstrade poiché devono garantire alti livelli di sicurezza.

Le pavimentazioni delle autostrade sono drenanti (hanno un'alta % di vuoti che permette l'assorbimento e il deflusso delle acque meteoriche) e in quanto tali non possono essere eseguite con bitumi tradizionali.

Si è visto inoltre che i bitumi modificati risultano più durevoli, in quanto mantengono meglio le prestazioni, tema importante se si parla di vita utile della struttura e dell'ecosostenibilità dell'opera in quanto evitano le frequenti manutenzioni dell'opera che prevedono l'utilizzo di materiali non rinnovabili.

Risulta perciò vantaggioso, sia dal punto di vista economico che di consumo di risorse primarie, eseguire tappeti di usura con bitumi modificati che hanno una durabilità maggiore, piuttosto che eseguirli più volte con dei leganti tradizionali.

[5]

I bitumi modificati, oltre ad essere ampiamente usati per le pavimentazioni drenanti possono essere utilizzati anche nella produzione di pavimentazioni fonoassorbenti.

Quando si parla di bitumi modificati si fa riferimento ai bitumi tradizionali ai quali sono stati aggiunti degli agenti modificanti; nella maggior parte dei casi si tratta di polimeri o come nella seguente sperimentazione di bio-polimeri (ecosostenibili e di natura vegetale).

L'unione delle due fasi avviene solitamente in impianti di produzione dei conglomerati in cui si usano serbatoi termici per evitare una possibile separazione delle fasi [4]; si porta il bitume alla temperatura di miscelazione (temperatura che dipende dal tipo di bitume) e vi si aggiunge il polimero che può essere sotto forma di pastiglie solide, polvere, liquido oppure dall'aspetto gommoso.

La cosa fondamentale è che dopo aver inglobato il polimero e aver fatto raffreddare il legante questo presenti una consistenza omogenea.

Per quel che riguarda la chimica dei bitumi modificati, oltre alla scheda tecnica che fornisce le informazioni base sul bitume di partenza, bisogna fornire anche le informazioni relative al polimero utilizzato e cioè la sua struttura e composizione chimica.

I bitumi modificati che sono stati utilizzati nella seguente sperimentazione presentano i polimeri elastomeri SBS (stirene-butadiene-stirene); il termine elastomero sta ad indicare che il polimero si presenta allo stato gommoso e ha la capacità di subire grandi deformazioni elastiche.

Oltre ai classici polimeri già ampiamente utilizzati nella produzione di conglomerati bituminosi, negli ultimi anni sono stati introdotti, soprattutto a livello di sperimentazioni, i cosiddetti bio-polimeri. Quando si parla di bio-polimeri si fa riferimento ai polimeri di natura vegetale che essendo estratti da piante e alberi sono considerati fonti facilmente rinnovabili ed ecosostenibili.

# Capitolo 2

## Stato dell'arte

### 2.1 Bio-materiali per la modifica dei bitumi

Quando si parla di bio-materiali in campo stradale, si fa riferimento a tutte le sostanze che possono essere miscelate al bitume oppure utilizzate come suoi parziali sostituti allo scopo di migliorarne le prestazioni meccaniche e ridurre il consumo di materie non rinnovabili andando così incontro all'ecosostenibilità. Prima di poter utilizzare qualsiasi tipo di bio-materiale bisogna prima verificare la sua compatibilità con il bitume e valutare quindi una possibile miscelazione oppure un replacement.

In particolare si possono utilizzare:

- residuo di olio motore
- olio di soia
- olio di palma
- combustibile fossile
- letame suino
- materiali provenienti dalla pirolisi (veloce decomposizione fatta ad alte temperature)
- melassa
- zucchero
- fecola di patate
- resine
- bio-polimeri (cellulosa e lignina) [6]

I bio-polimeri, o "Polimeri verdi" possono avere, oltre che un'origine vegetale (piante e alberi), anche un'origine sintetica o in alternativa essere recuperati da sostanze sintetizzate da microrganismi.[7]

Nella seguente trattazione verranno trattati proprio i bio-polimeri e in particolare la lignina, soggetto delle sperimentazione eseguita.

## 2.2 Lignina come bio-legante

Il termine lignina deriva dal latino "LIGNUM" che tradotto significa legno, essa infatti è un derivato del legno che si presenta come polvere o come un liquido denso, ha un colore scuro e il suo odore può assomigliare a quello del caramello; è il secondo bio-polimero più abbondante sulla terra dopo la cellulosa.

Può essere ricavata direttamente dagli alberi ma nella maggior parte dei casi essa proviene da scarti industriali di produzione della carta o dei pannelli rigidi in legno. La produzione dei pannelli infatti prevede come scarto industriale acqua priva di additivi artificiali ma ricca di sostanza organica quale la lignina.  
[8]

Le diverse tipologie di lignine si caratterizzano in base alla provenienza del materiale da cui vengono estratte, la loro composizione infatti dipende dalla tipologia dell'albero o della pianta da cui sono state ricavate, nel caso provengano da processi a carico di microrganismi dipenderà proprio dalla natura di quest'ultimi.

Un altro fattore che va ad influenzare la tipologia della lignina è il processo produttivo subito.

Le più conosciute ed utilizzate sono: lignina Kraft, lignina Solfito, Lignina Soda e Organosolv lignina.[8]

Il termine Kraft, Solfito e Soda vanno quindi ad indicare i processi a cui sono state sottoposte le lignine per essere prodotte.

In particolar modo quando si parla di lignina Kraft si fa riferimento al processo dall'omonimo nome.

Il processo Kraft è un processo chimico (digestione della cellulosa o della lignina tramite NaOH e Na<sub>2</sub>S) che permette di estrarre la lignina dal legno sottoforma di "polpa".

In termini più semplici si prende una soluzione di idrossido di sodio e solfuro di sodio, chiamata liquore bianco, e la si fa reagire con i trucioli di legno in autoclavi ad una temperatura di 170°C per circa due ore, successivamente la miscela viene filtrata tramite appositi filtri per separare la lignina dalla cellulosa.[10],[12].

Nel caso in cui si volesse lavorare con la lignina sotto forma di polvere bisognerà farla essiccare ulteriormente nel forno per eliminare gli ultimi residui di acqua.

## 2.3 Impiego della lignina in letteratura

Siccome la lignina, oltre ad essere presente abbondantemente in natura, viene prodotta in grandi quantità da industrie che creano pannelli in legno si è ben pensato di riutilizzarla invece che smaltirla; ecco perché ha trovato un impiego, anche se al momento solo sperimentale, nell'ambito delle costruzioni di pavimentazioni stradali.

Il motivo che ha spinto queste sperimentazioni sono date dall'affinità a livello di composizione chimica che la lignina presenta con il bitume, entrambi infatti sono idrocarburi composti prevalentemente da idrogeno, ossigeno e carbonio[9], inoltre, come è già stato detto nei paragrafi precedenti si è cercato un metodo valido per poter costruire le pavimentazioni stradali riducendo le emissioni di CO<sub>2</sub> e limitare il sovrasfruttamento del greggio, una risorsa limitata, e rendere di conseguenza tutto il processo di produzione più pulito ed ecosostenibile.

A questo proposito sono presenti diversi studi in letteratura che hanno visto protagonisti diversi bitumi, sia tradizionali che modificati, di diverse classi di consistenza ma soprattutto sono state impiegate differenti tipologie di lignine.

Ogni studio inoltre ha deciso di sostituire il bitume con diverse percentuali di lignina in base agli obiettivi posti dalla sperimentazione, ad esempio lo studio portato avanti da Perez et al [9] vede protagonista percentuali di sostituzione che arrivano anche al 40%-60% in modo tale da poter vedere gli effetti della lignina sul bitume nell'ipotesi di una sostituzione del legante con il biopolimero.

Lo studio di Zahedi et al [11] invece ha optato per percentuali molto più basse: dal 3% al 12%.

Grazie a questi studi si hanno informazioni utili riguardo all'utilizzo della lignina in laboratorio, si sa infatti che essa può essere utilizzata sia allo stato liquido, sottoforma di olio, sia allo stato solido come polvere.

Se viene utilizzata come polvere è bene sottoporla ad un processo di essiccamento preventivo in modo da eliminare l'acqua interstiziale che potrebbe causare problemi in fase di miscelazione, se infatti non si elimina l'acqua interstiziale questa a contatto con il bitume caldo provoca un notevole aumento di volume e la formazione di bolle nella miscela.[8]

Per inglobare la lignina nel bitume si utilizzano solitamente miscelatori meccanici, i quali riescono a garantire una fase omogenea al prodotto finale,

solo nel caso della sperimentazione di Perez et al questa fase è stata eseguita manualmente in quanto la lignina utilizzata era in fase liquida.

Quando si miscela bisogna scegliere alcuni parametri fondamentali tra cui la temperatura del bitume, lo stato della lignina (liquida o in polvere), tempo di miscelazione (dai 10 min [9] ai 60 min [8]), velocità di miscelazione (tra 300 rpm [8] e i 5000 rpm [9]) e percentuale di lignina sostituita.

Per quel che riguarda le percentuali i dati a disposizione che si hanno arrivano al massimo ad una sostituzione in peso fino al 60% poiché una volta superata la percentuale del 40% in peso la lignina tende a raggrupparsi in grumi nella fase di raffreddamento fino a creare dei cristalli visibili anche ad occhio nudo.  
[8]

La formazione di cristalli nel legante lo rende inutilizzabile a livello di produzione di conglomerati in cui si richiede che esso presenti una fase omogenea e di facile lavorabilità.

# Capitolo 3

## Indagine sperimentale

Lo studio eseguito in questo lavoro di tesi ha come obiettivo ottimizzare la produzione di bio-leganti tramite l'utilizzo di lignina, una fonte rinnovabile, la quale avendo un'origine vegetale rende la produzione ecosostenibile e con un minor impatto ambientale.

Innanzitutto è stata verificata la possibilità di sostituire parte del bitume con la lignina, in modo da massimizzare l'impiego di quest'ultima ed ottenere prestazioni confrontabili al bitume tradizionale scelto come riferimento.

Nello specifico, la sperimentazione ha previsto l'impiego di bitumi tradizionali morbidi caratterizzati da differenti classi di consistenza, a cui è stata sostituita una percentuale in peso di lignina sempre maggiore fino al raggiungimento della classe di consistenza 50/70, designata come riferimento.

Infatti, l'aggiunta di lignina a un bitume ne causa un progressivo indurimento.

Lo studio è stato poi ampliato prendendo in considerazione la possibilità di sostituire con lignina anche una percentuale in peso di bitumi modificati con polimeri SBS, comunemente impiegati nell'ambito delle costruzioni stradali per migliorarne le prestazioni e la durabilità.

La miscelazione del bitume con la lignina in polvere è avvenuta mediante un miscelatore in grado di disperdere in modo omogeneo la fase solida nel fluido.

Al fine di valutarne il raggiungimento delle caratteristiche desiderate e valutare l'effettiva possibilità di tale sostituzione, o "replacement", sono state condotte le tradizionali prove di penetrazione, palla-anello, viscosità e l'invecchiamento a breve termine, che va a simulare l'invecchiamento del bitume per la fase di miscelazione e compattazione.

## 3.1 Materiali

### 3.1.1 Bitumi

In questa sperimentazione sono stati presi in esame i bitumi tradizionali di diverse classi di consistenza, le classi in questione sono state: 70/100, 100/150, 160/220 e i due bitumi modificati: PBMSOFT e PBMHARD.

La scelta di tali classi di consistenza è stata dettata dal fatto che l'aggiunta di lignina tende a indurire il legante e il bitume di riferimento è di consistenza 50/70 in quanto presenta le migliori prestazioni alle nostre latitudini.

I bitumi utilizzati nella ricerca sono stati denominati in base alla classe di penetrazione, al tipo e alla percentuale in peso di lignina sostituita; le percentuali di sostituzione per bitumi tradizionali sono state il 10%, 20% e il 30% mentre per i bitumi modificati soft e hard si è utilizzato 5%, 10% e 15% in peso ottenendo così i leganti elencati nella tabella 3.1.1

La scelta di tali percentuali è avvenuta per tentativi, ma è rimasta sempre al di sotto del limite del 40%, percentuale per la quale la lignina tende a cristallizzare.

Secondo Perez et al infatti, una sostituzione di lignina superiore o uguale al 40% può causare la formazione di piccoli cristalli che mano a mano tendono a raggrupparsi nelle fase di raffreddamento in cristalli sempre più grandi fino a essere visibili anche a occhio nudo, pertanto l'ipotesi di un replacement così significativo non è percorribile.[9]

Tabella 3.1.1 Nomenclatura scelta per i leganti

Bitume di Partenza	Lignina S	Lignina M	Lignina B
<b>B70/100</b>	B.70/100_S10% B.70/100_S20% B.70/100_S30%	B.70/100_M10% B.70/100_M20% B.70/100_M30%	B.70/100_B10% B.70/100_B20% B.70/100_B30%
<b>B100/150</b>	B.100/150_S10% B.100/150_S20% B.100/150_S30%	B.100/150_M10% B.100/150_M20% B.100/150_M30%	B.100/150_B10% B.100/150_B20% B.100/150_B30%
<b>B160/220</b>		B.160/220_M10% B.160/220_M20% B.160/220_M30%	

Bitume di Partenza	Lignina S	Lignina M	Lignina B
<b>PBMSOFT</b>	PBMSOFT_S5% PBMSOFT_S10% PBMSOFT_S15%	PBMSOFT_M5% PBMSOFT_M10% PBMSOFT_M15%	PBMSOFT_B5% PBMSOFT_B10% PBMSOFT_B15%
<b>PBMHARD</b>	PBMHARD_S5% PBMHARD_S10% PBMHARD_S15%		

Il bitume più morbido avente classe di consistenza 160/220 non è stato miscelato con le lignine S e B, in quanto dall'esperienza sviluppata in laboratorio si è visto che ciò che influenzava le prestazioni è la quantità della lignina impiegata come replacement e non la tipologia; le stesse considerazioni sono state fatte anche per il bitume modificato Hard.

Alla luce delle varie combinazioni ottenute, una volta eseguite le prove di caratterizzazione dei materiali, sono state selezionate tre coppie bitume-lignina sulle quali è proseguita la sperimentazione, che ha previsto anche la ripetizione delle prove di penetrazione, palla-anello e viscosità anche in seguito all'invecchiamento a breve termine dei leganti, simulata tramite l'apparecchiatura di laboratorio nota come RTFOT (Rolling Thin Film Oven Test).

I bitumi di partenza pertanto sono i seguenti:

BITUME 50/70  
BITUME 70/100  
BITUME 100/150  
BITUME 160/220  
BITUME SOFT  
BITUME HARD

E i valori della penetrazione media, della palla-anello e della viscosità relativi ad un torcente del 50% dei bitumi non modificati sono riportati nella tabella 3.1.2

Tabella 3.1.2 Valori caratteristici dei bitumi oggetto della sperimentazione

Bitume	Penetrazione (dmm)	Palla-anello (°C)	Viscosità (mPa*s)
<b>B.50/70</b>	50-70	45-60	217
<b>B.70/100</b>	78,4	48,0	265
<b>B.100/150</b>	127,0	49,8	181
<b>B.160/220</b>	196,0	38,4	153
<b>PBMSOFT</b>	53,6	58,5	251
<b>PBMHARD</b>	43,6	73,8	770

I valori della viscosità si riferiscono ad un torcente di 50% e una temperatura di prova di 140°C per i bitumi 70/100, 100/150, 160/220 e ad una temperatura di 145°C per i bitumi 50/70, PBM HARD e PBM SOFT.

### 3.1.2 Lignine

Come bio-leganti sono state utilizzate 3 diverse lignine denominate con le lettere S, M e B.

Lignina S (origine Svedese): caratterizzata da granuli grandi di diametro anche superiore al centimetro e di colore marrone scuro, ha un  $P_H$  compreso tra 4 e 6 e un contenuto di umidità che si aggira tra il 50% e il 60%.

Lignina M (origine Finlandese): è una lignina Kraft di colore scuro e granulometria fina, caratterizzata da un forte odore che ricorda quello del caramello.

Lignina B (origine Bielorussa): Caratterizzata da una un colore scuro sembra quasi polvere e ha una densità di 1.25-1.45g/cm<sup>3</sup>.

Essendo le lignine dei derivati vegetali caratterizzati da cellule che per natura tendono a trattenere un elevato contenuto d'acqua, prima di impiegarle come sostituyente del bitume, sono state essiccate in forno in modo da abbattere l'alto contenuto di umidità che le caratterizzava (Figura 3.1.3). In seguito all'essiccamento le particelle più grossolane sono state finemente macinate in

modo da far assumere a tutte e tre le lignine una consistenza polverosa, come in figura 3.1.4



Figura 3.1.4 Da sinistra a destra, lignina B, M ed S una volta essiccate e macinate.



Figura 3.1.3 (Lignina superiore essiccata; lignina sottostante non essiccata).

## 3.2 Apparecchiature e procedure di prova

### 3.2.1 Miscelatore Ross

Nel presente studio, il miscelatore Ross è stato utilizzato per miscelare, o disperdere, la lignina nel bitume.

Il macchinario è composto da una resistenza che collegata al fornello permette di innalzare la temperatura fino ad arrivare a quella di miscelazione desiderata.

Per innalzare la temperatura bisogna girare la manopola con scritto “percent” fino ad un valore di circa 50 e attendere il tempo necessario affinché venga raggiunta la temperatura di interesse.

Poiché il macchinario non fornisce una lettura diretta della temperatura, è stata utilizzata una sonda termometrica all’interno del legante; l’apparecchiatura è poi dotata di un rotore a cui si possono collegare diverse teste di miscelazione idonee a creare un vortice adatto a seconda del tipo di materiale che si intende miscelare al bitume.

L’apparecchiatura è mostrata in figura 3.2.1, mentre in figura 3.2.2 viene mostrata la configurazione adotta nel caso in questione.

Il macchinario è dotato di un display che permette la scelta della velocità della girante, la velocità più bassa è di 500 giri/minuto mentre quella utilizzata nella sperimentazione è stata di circa 5007 giri/minuto.



Figura 3.2.1 Miscelatore Ross.



Figura 3.2.2 Particolare della girante adottata.

Protocollo per la miscelazione:

- A. Si accende la resistenza circa 1 ora prima di miscelare in modo da far arrivare il fornello a temperatura;
- B. Si posiziona la sonda per tenere sotto controllo la temperatura;
- C. Si abbassa la girante tramite appositi pulsanti laterali in modo da condizionare anche quest'ultima
- D. Nel frattempo il bitume viene scaldato nel forno alla stessa temperatura della miscelazione e una volta pronto dopo circa 1 ora viene posizionato all'interno del fornello;
- E. Una volta posizionato si fa annegare completamente la girante nel bitume e si avvia la miscelazione tramite il pulsante laterale "start/stop";
- F. A questo punto si inizia ad inglobare la lignina; secondo i quantitativi descritti nel paragrafo 3.1.1;
- G. Una volta che il bitume ha inglobato tutta la lignina si fa miscelare per 45 min;
- H. Passati i 45 min durante i quali bisogna sempre controllare la temperatura tramite la resistenza, si stoppa il miscelatore, si alza la girante, si toglie il legante dall'alloggio dal fornello e si producono i provini destinati alle prove di penetrazione, palla anello e viscosità; dopodiché il bitume viene rimesso

nel fornello si fa ripartire la miscelazione e si aggiunge ulteriore lignina, fino al quantitativo di replacement desiderato;

- I. Una volta inglobata tutta la lignina si fa miscelare per 15min;
- J. A fine miscelazione si ripete la procedura (H) e la procedura (I) in modo da ottenere l'ultimo provino con il 30% in peso di lignina per bitumi 70/100, 100/150 e 160/220 e il 15% in peso per il PBM SOFT e il PBM HARD.

### 3.2.2 Prova di penetrazione :

Essendo il bitume un materiale termo-dipendente esso presenta una consistenza variabile all'aumentare o al diminuire della temperatura. Questa prova permette di determinare la durezza del bitume ad una data temperatura standardizzata, infatti bitumi più duri possiedono penetrazioni più basse mentre bitumi più morbidi hanno penetrazioni più alte.

La penetrazione fornita dal macchinario in dmm (decimi di millimetro) è la misura della profondità alla quale un ago dal peso standard affonda nel bitume per un tempo di 5 secondi.

Per la prova si fa riferimento alla norma EN 1426: 2015 "Bitume e leganti bituminosi" la quale fornisce anche il peso standard dell'ago, la temperatura del provino e tempo di durata della prova che sono rispettivamente pari a 100 g, 25°C e 5 secondi.

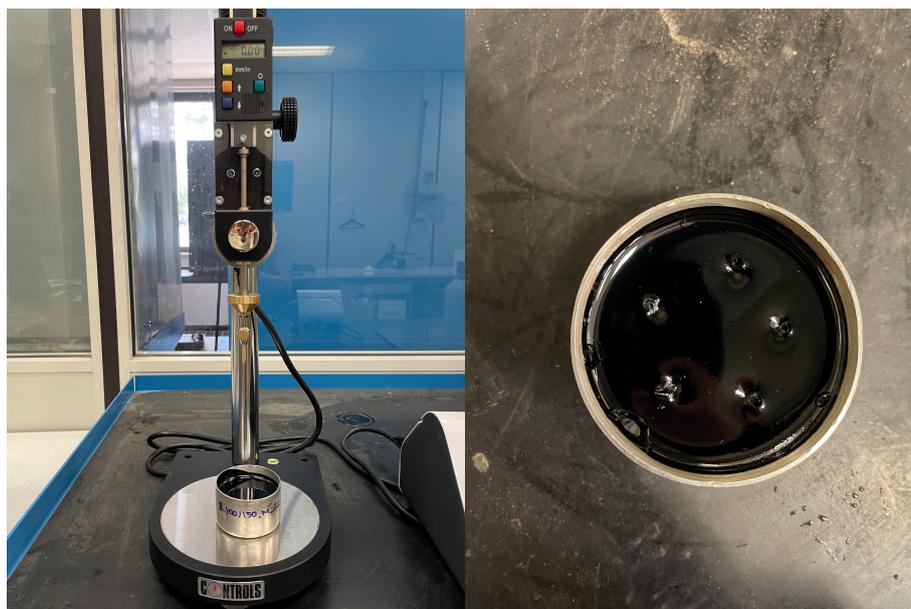
Protocollo di prova:

1. Si scalda il bitume finché non diventa completamente liquido e se ne versano 60-70 grammi in un contenitore di acciaio dalle dimensioni standard (diametro tra 55 mm e 70 mm e un' altezza compresa tra 35 mm e 45 mm). La superficie del provino deve essere liscia e priva di bolle d'aria;
2. Si fa condizionare il provino per 1 ora a temperatura ambiente e 1 ora in un bagno termostatico ad una temperatura di  $25^{\circ}\text{C} \pm 0,15^{\circ}\text{C}$  (Figura 3.2.3)
3. Una volta condizionato il provino lo si posiziona sulla base del penetrometro (Figura 3.2.4 A) dopo aver verificato che lo strumento sia in bolla , si monta l'ago e lo si abbassa tramite apposite manovelle fino a sfiorare la superficie del provino mantenendosi a 1 cm dal bordo esterno;

4. Si fa partire la prova tramite il pulsante “start” presente sul timer aggiuntivo, e l’ago inizia a penetrare nel provino per 5 secondi;
5. Al termine della prova si esegue la lettura della penetrazione sul display abbastando l’apposita linguetta che deve toccare il pistoncino che tiene l’ago. Il risultato della penetrazione è dato in dmm;
6. Al termine della prima lettura si estrae l’ago dal provino, si provvede alla sua pulizia e si azzerla la lettura sul display con il tasto “0”;
7. Si esegue un minimo di 3 ripetizioni stando attenti a mantenere 1 cm di distanza dal bordo del provino e dalla precedenti misurazioni; in questo caso sono state eseguite 5 letture e come risultato della prova si è assunto il valore della media aritmetica di tutti i valori ottenuti (Figura 3.2.4 B).



Figura 3.2.3 Bagno termostatico con all’interno i provini posti a essere condizionati.



A

B

Figura 3.2.4 A Penetrometro.

Figura 3.2.4 B Provino della penetrazione dopo la prova.

I valori caratteristici della prova sono schematizzati in tabella 3.2.5

Tabella 3.2.5 Valori utilizzati per la prova di penetrazione

Schema riassuntivo della prova	
1° condizionamento	Temperatura ambiente 1 ora
2° condizionamento	Bagno termostatico 25°C 1 ora
Quantità di bitume	60-70 grammi
Precarico	100 grammi
Tempo di prova	5 secondi
Numero di ripetizioni	5
Valore della prova	Media aritmetica dei 5 valori in dmm

### 3.2.3 Palla-anello

Per la prova si fa riferimento alla norma UNI EN 1427 (2007).

La prova della palla anello fornisce il dato relativo al punto di rammollimento del bitume, ovvero fornisce informazioni sulle sue prestazioni alle alte temperature.

Più è elevata la temperatura della prova e migliori saranno le prestazioni del bitume alle alte temperature.

L'apparecchiatura (figura 3.2.6) è composta da un becher graduato in vetro, da un termometro a sonda, un display, un fornello elettrico, due anelli in ottone e da due sfere in acciaio dal peso di 3,5 grammi ciascuna.

Per preparare i provini si cola il bitume caldo negli appositi due anelli in ottone (diametro 19 mm e altezza 6 mm) appoggiati su una lastra di vetro ricoperta di glicerina per evitare che il bitume colato si attacchi alla lastra.

Durante l'esecuzione della prova la temperatura viene fatta variare con gradiente termico pari a  $+5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . Il punto di rammollimento è la temperatura in corrispondenza della quale le sfere arrivano a toccare una lastra sottostante postilla distanza di 1 pollice (25,4 mm) rispetto alla posizione iniziale.

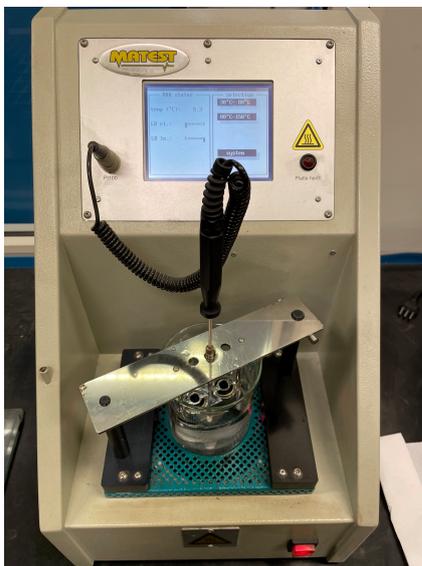


Figura 3.2.6 L'apparecchiatura per la prova di palla-anello.

Protocollo di prova:

1. Si prende una lastra di vetro e ci si stende la glicerina, si posizionano sopra i due anelli di ottone e ci si cola il bitume in modo tale da far allineare la superficie del bitume colato con il bordo dell'anello;
2. Si condizionano i provini a temperatura ambiente per 1 ora;
3. Gli anelli vengono poi posizionati nell'apposito supporto metallico e sopra ad essi vengono posizionati i reggi-sfera: due anelli più grandi dotati di un foro centrale che ha il compito di convogliare la sfera perfettamente al centro del provino;
4. Si immerge il tutto nel becher con dell'acqua (circa 300 ml) e si fa condizionare tutto il sistema (comprese le sfere metalliche inizialmente posizionate sul fondo del becher) ad una temperatura di  $5^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$  per 15 minuti, per arrivare a questa temperatura si utilizza il ghiaccio. La temperatura viene controllata tramite l'utilizzo di un'apposita sonda termometrica;
5. Una volta condizionati i provini le sfere vengono prelevate dal fondo con l'aiuto di una pinza e inserite negli appositi reggi-sfera; si seleziona il range della temperatura di prova, in questo caso tra  $30^{\circ}\text{C}$  e  $80^{\circ}\text{C}$  e si fa partire la prova premendo il tasto start sul display
6. La prova consiste in un continuo aumento della temperatura con un gradiente termico pari a  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , a causa dell'aumento della temperatura e sotto il peso della sfera metallica il bitume inizierà a deformarsi (figura 3.2.7 A e B) e a scendere fino a toccare la lastra inferiore del supporto in acciaio (figura 3.2.7 C). Mediante un sistema a infrarossi l'apparecchiatura esegue la lettura e la mostra sul display.
7. La prova termina quando l'apparecchiatura registra i valori della temperatura di rammollimento di entrambi i provini, ovvero quando la sfera tocca la piastra sul fondo. Il valore della prova sarà dato dalla media aritmetica delle due temperature ed è da considerarsi accettabile se la differenza di temperatura tra i due provini è minore o uguale a  $1^{\circ}\text{C}$ .

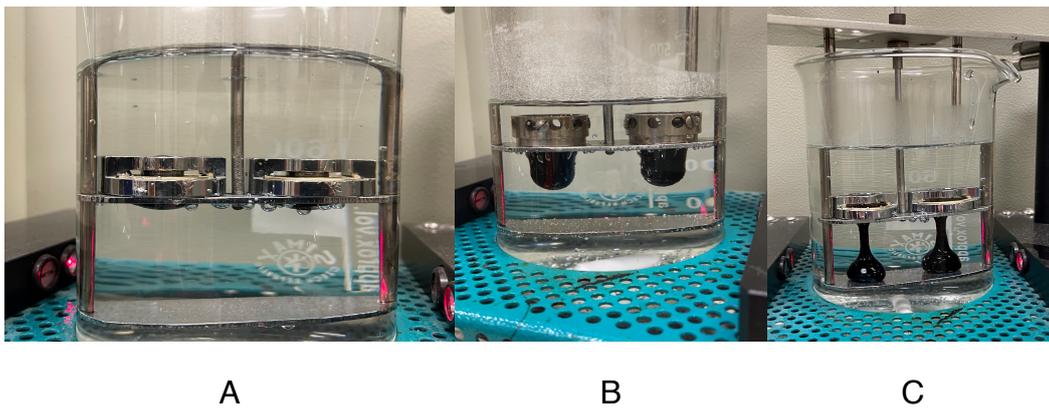


Figura 3.2.7 A, B e C Fasi della prova di palla-anello.

I valori caratteristici della prova sono schematizzati in tabella 3.2.8

Tabella 3.2.8 Valori utilizzati per la prova di palla-anello

Schema riassuntivo della prova	
1°C condizionamento	1 ora temperatura ambiente
2°C condizionamento	15 min a 5°C
Peso sfere	3,5 grammi ciascuna
Quantità di bitume	Pochi grammi
Range della temperatura	30°C-80°C
Gradiente termico	5°C/minuto
Valore della prova	Media aritmetica delle due temperature
Massima differenza tra due temperature	1°C

### 3.2.4 Prova di viscosità

Per la seguente prova si è fatto riferimento alla norma UNI EN 13302 .

Il viscosimetro è uno strumento che permette di misurare la viscosità a temperature prossime a quelle di miscelazione e compattazione.

Le misurazioni sono state eseguite inizialmente sui bitumi non modificati per ricavare le temperature di miscelazione seguendo il principio di equiviscosità; successivamente si è fatta la misurazione della viscosità sui bitumi modificati con lignina.

La viscosità è una grandezza che consente di misurare la resistenza di un fluido allo scorrimento. Nello specifico, si valuta il comportamento di un fluido quando viene sottoposto a uno sforzo tangenziale.

In particolare si ha che la viscosità è pari al rapporto tra la tensione tangenziale  $\tau$  e la velocità di scorrimento  $\gamma'$ .

$$\eta = \tau / \gamma'$$

$\tau$  = tensione tangenziale

$\gamma'$  = velocità di scorrimento

Nella seguente sperimentazione si è considerato il bitume come un fluido Newtoniano e per determinarne la viscosità è stato utilizzato il viscosimetro Brookfield (figura 3.2.9) formato da due cilindri coassiali: un contenitore cilindrico esterno, nel quale viene versato il legante da testare, e un cilindro interno, ovvero la spindle ruotando che va ad applicare la tensione tangenziale.

Il viscosimetro fornisce informazioni relative alla temperatura di prova, al torcente e alla velocità scelta dall'operatore; mostra inoltre altri due dati che sono fondamentali per il calcolo della viscosità: lo sforzo tangenziale shear stress (SS) e la velocità di scorrimento shear rate (SR).

Quando si parla dello share stress ci si riferisce allo sforzo che il motore deve compiere per mantenere in movimento la spindle mentre lo share rate è associato a una specifica percentuale di lavoro che deve svolgere il viscosimetro.

Una volta note le due grandezze lo strumento è in grado di calcolarsi la viscosità e mostrarla sul display.

Oltre al display comprensivo di tasti il viscosimetro è dotato di un termostato esterno con il quale si può impostare la temperatura e da un fornello elettrico che scalda tutto il sistema: cilindro cavo, legante e spindle.

In base alla spindle scelta si versano diversi quantitativi di bitume, nel seguente caso è stata scelta la spindle S21 e pertanto la quantità di legante da colare doveva essere di  $9,5g \pm 0,5g$ .



Figura 3.2.9 Viscosimetro con la spindle S21.

La procedura di prova è la seguente:

1. Si accende il termostato e si imposta la temperatura di prova desiderata: si preme il tasto “set” si sceglie la temperatura tramite le frecce, si ripreme “set” e poi “run”; se la procedura è stata eseguita correttamente si accenderà la spia “heat” e il fornello inizierà a scaldarsi;
2. Si prepara il provino, si verifica che lo strumento sia in bolla e nel frattempo si mette a condizionare la spindle scelta nel fornello elettrico;
3. Quando il fornello elettrico arriva a temperatura si posiziona correttamente al suo interno il cilindro con il legante;
4. Tramite le manovelle laterali si abbassa la spindle fino a farla affondare nel bitume;
5. Si accende il motore del viscosimetro tramite il pulsante “motor ON/OFF” e si seleziona la spindle utilizzata tramite il pulsante “select spindle”;
6. Si sceglie lo sforzo torcente pari al 10% per far condizionare tutto sistema (legante e spindle insieme) per 45 min;
7. Per eseguire le letture si porta lo sforzo torcente al 30%, 50% e 70% per ciascuna temperatura di prova scelta;
8. Per vedere i valori SS e SR bisogna premere il pulsante “select display”;
9. Eseguita la prima lettura si alza la temperatura del termostato ripetendo il passaggio 1, si aspetta che arrivi a temperatura e si condiziona poi il provino come nel passaggio 6 per 15 min.

Per selezionare la velocità di prova bisogna innanzi tutto assicurarsi che il motore sia spento nel caso contrario premere il tasto “Motor-off”, si preme poi “options”-“set-up”-“costum speed” e con il tasto “set speed” si sceglie le velocità desiderata e la si conferma con il tasto “enter”; si possono selezionare al massimo 20 velocità per volta.

Se invece si vuole scegliere tra le velocità già selezionate, bisogna scorrere con le frecce e premere il tasto “set speed” anche a motore acceso.

Una volta eseguita questa prova, per il principio di equiviscosità si sono ricavate le temperature di miscelazione dei bitumi indicate nella tabella 3.2.10.

Tabella 3.2.10 Temperature di miscelazione rilevate per ogni bitume

<b>Bitume</b>	<b>Temperatura di miscelazione °C</b>
<b>BITUME 50/70</b>	150
<b>BITUME 70/100</b>	145/150
<b>BITUME 100/150</b>	130
<b>BITUME 160/220</b>	130
<b>PBM SOFT</b>	150
<b>PBM HARD</b>	170/180

I valori caratteristici della prova sono schematizzati in tabella 3.2.11

Tabella 3.2.11 Valori utilizzati per la prova di viscosità

<b>Schema riassuntivo della prova</b>	
Temperatura di prova	T1= 130°C ; T2=145°C ; T3=160°C
1° condizionamento	45 min
2°-3° condizionamento	15 min
Spindle utilizzata	S21
Quantità di bitume	9,5 g ± 0,5 g
Parametro misurato	Viscosità dinamica in mPa · s

### 3.2.5 RTFOT (Rolling Thin Film Oven Test)

Per la prova RTFOT (Rolling Thin Film Oven Test) si è fatto riferimento alla norma UNI EN 12607.

Si tratta di una prova di laboratorio in grado di simulare l'invecchiamento a breve termine del bitume e cioè il processo che lo stesso subisce in fase di miscelazione, trasporto e compattazione.

Come suggerisce il nome stesso dell'apparecchiatura la prova consiste nel sottoporre un sottile strato di legante all'azione dell'aria e del calore.

Per preparare i provini bisogna scaldare il legante e versarne una prestabilita quantità negli appositi contenitori cilindrici di vetro i quali una volta messi nel tamburo rotante del forno vengono mantenuti in costante movimento e sottoposti a un continuo flusso di aria calda.

Proprio grazie all'aria calda che viene insufflata a 4000 ml/min durante tutta la prova si riesce a invecchiare il bitume e simulare in questo modo ciò che normalmente avviene nell'impianto di produzione dei leganti, conglomerati e durante un eventuale trasporto.

Dopo l'invecchiamento il legante tende a indurire e perciò i parametri che vanno a stabilire la qualità del legante a fine prova sono: la penetrazione, il valore della temperatura di palla-anello, che come detto nel paragrafo 3.2.3 fornisce informazioni sul punto di rammollimento del bitume e la viscosità.

L'apparecchiatura è un forno a doppia parete (figura 3.2.12 A) dotato di un display sul quale è possibile monitorare la temperatura; le dimensioni del forno sono circa 340 mm di altezza, 405 mm di larghezza e una profondità di 445 mm.

Lo sportello di apertura è dotato di due lastre di vetro che fungono da finestra, vicino a questo si hanno i pulsanti di accensione della ventilazione e della rotazione del tamburo interno (visibile nella figura 3.2.12 B).

I provini in cui si cola il bitume sono dei recipienti cilindrici in vetro resistente ad alte temperature.



A



B

Figura 3.2.12 A-B A sinistra si può osservare il forno dall'esterno mentre nella figura B si osserva il tamburo rotante.

La procedura di prova:

1. Si accende il forno per circa 1 ora e lo si fa arrivare alla temperatura di prova di  $163^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$ ;
2. Si colano  $35\text{g} \pm 0,5\text{g}$  di bitume in ogni bicchiere, in questo caso 6 bicchieri su un totale di 8;
3. Una volta che il forno è arrivato a temperatura si procede con l'inserimento dei bicchieri nel tamburo rotante;
4. Come nel seguente caso se non si preparano 8 provini ma 6, nel tamburo devono essere inseriti comunque tutti i bicchieri anche quelli vuoti ed è importante che questi ultimi siano posizioni in spazi diametralmente opposti tra loro;
5. Una volta riempito il tamburo girante si richiude il forno e si aspetta nuovamente che il forno arrivi alla temperatura di  $163^{\circ}\text{C}$ ;
6. Arrivato a temperatura si aziona la rotazione del tamburo con il tasto "carrige" che ha una velocità di 15 giri/minuto e si accende il flusso di aria calda pari a 4000 ml/minuto tramite il tasto "ventilation";
7. Si lascia invecchiare il bitume per 75 min e al termine della prova si estraggono i bicchieri e si preleva il legante per le prove che si vogliono svolgere.

La prova è schematizzata nella tabella 3.2.13

Tabella 3.2.13 Valori utilizzati per la prova RTFOT

<b>Schema riassuntivo della prova</b>	
Flusso d'aria	Q = 4000 ml/min
Velocità di rotazione del tamburo	v = 15 rpm
Temperatura di prova	T = 163°C ± 1°C
Durata della prova	75 min
N° bicchieri	Totali 8
Quantità di bitume per ogni bicchiere	35 g ± 0,5 g

### 3.3 Programma sperimentale

Nel seguente paragrafo vengono riassunte e schematizzate in tabelle tutte le prove eseguite per ogni tipo di legante.

Si partirà con la prova di penetrazione (tabella 3.3.1) la quale è stata fondamentale per scegliere i leganti da portare avanti nella sperimentazione, si prosegue poi con la prova di palla anello (tabella 3.3.2) per proseguire con la prova di viscosità (tabella 3.3.3) e terminare con l'invecchiamento a breve termine RTFOT (tabella 3.3.4).

Tabella 3.3.1 Riepilogo dei leganti testati con prova di penetrazione.

Legante testato		Penetrazione	Numero dei provini testati	Numero di ripetizioni per ogni provino
<b>70/100</b>	B.70/100_S10%	Si	1	5
	B.70/100_S20%	Si	1	5
	B.70/100_S30%	Si	1	5
	B.70/100_M10%	Si	1	5
	B.70/100_M20%	Si	1	5
	B.70/100_M30%	Si	1	5
	B.70/100_B10%	Si	1	5
	B.70/100_B20%	Si	1	5
	B.70/100_B30%	Si	1	5
<b>100/150</b>	B.100/150_S10%	Si	1	5
	B.100/150_S20%	Si	1	5
	B.100/150_S30%	Si	1	5
	B.100/150_M10%	Si	1	5
	B.100/150_M20%	Si	1	5
	B.100/150_M30%	Si	1	5
	B.100/150_B10%	Si	1	5
	B.100/150_B20%	Si	1	5
	B.100/150_B30%	Si	1	5
<b>160/220</b>	NON MISCELATO	NO	—	—
	B.160/220_M10%	Si	1	5
	B.160/220_M20%	Si	1	5
	B.160/220_M30%	Si	1	5
	NON MISCELATO	NO	—	—

Legante testato		Penetrazione	Numero dei provini testati	Numero di ripetizioni per ogni provino
<b>PBMSOFT</b>	PBMSOFT_S5%	Si	1	5
	PBMSOFT_S10%	Si	1	5
	PBMSOFT_S15%	Si	1	5
	PBMSOFT_M5%	Si	1	5
	PBMSOFT_M10%	Si	1	5
	PBMSOFT_M15%	Si	1	5
	PBMSOFT_B5%	Si	1	5
	PBMSOFT_B10%	Si	1	5
	PBMSOFT_B15%	Si	1	5
<b>PBMHARD</b>	PBMHARD_S5%	Si	1	5
	PBMHARD_S10%	Si	1	5
	PBMHARD_S15%	No	—	—
	NON MISCELATO	NO	—	—
	NON MISCELATO	NO	—	—

Il bitume 160/220 non è stato miscelato con le lignine S e B in quanto a seguito delle nozioni apprese durante la sperimentazione si è visto che ciò che influenzata la modifica dei bitumi è stata la percentuale di lignina sostituita e non la sua tipologia, pertanto tale bitume non avrebbe dato risultati voluti per la sperimentazione in questione.

Il medesimo discorso è stato fatto per il bitume PBMHARD.

Tabella 3.3.2 Riepilogo dei leganti testati con prova di palla-anello.

Legante testato		Numero dei provini testati	Numero di ripetizioni per ogni provino
<b>70/100</b>	B.70/100_S30%	2	1
<b>100/150</b>	B.100/150_M30%	2	1
	B.100/150_B30%	2	1
<b>PBMSOFT</b>	PBMSOFT_S5%	2	1
	PBMSOFT_S10%	2	1
	PBMSOFT_S15%	2	1
	PBMSOFT_M5%	2	1
	PBMSOFT_M10%	2	1
	PBMSOFT_M15%	2	1
	PBMSOFT_B5%	2	1
	PBMSOFT_B10%	2	1
	PBMSOFT_B15%	2	1

Legante testato		Numero dei provini testati	Numero di ripetizioni per ogni provino
<b>PBMHARD</b>	PBMHARD_S5%	2	1
	PBMHARD_S10%	2	1

La prova di palla anello è stata eseguita sui leganti considerati come coppie migliori bitume-legante; infatti sono leganti che presentano la stessa classe di consistenza 50/70 e inoltre ottimizzano la percentuale di lignina sostituita.

La prova inoltre è stata portata avanti anche con il bitume modificato per controllarne le prestazioni.

Tabella 3.3.3 Riepilogo dei leganti testati con prova di viscosità.

Legante testato		Numero dei provini testati	Numero di ripetizioni per ogni provino	Temperature di prova (°C)
<b>70/100</b>	B.70/100_S30%	1	1	130-145-160
<b>100/150</b>	B.100/150_M30%	1	1	130-145-160
	B.100/150_B30%	1	1	130-145-160
<b>PBM_SOFT</b>	PBM_SOFT_S10%	1	1	130-145-160
<b>PBMHARD</b>	PBMHARD_S10%	1	1	130-145-160

La prova di viscosità è stata fatta per tutti i bitumi tradizionali di partenza, per quelli modificati solamente per le coppie migliori che sono state scelte dopo avere analizzato i risultati della prova di penetrazione e della palla-anello.

Tabella 3.3.4 Riepilogo dei leganti sottoposti all'invecchiamento a breve termine.

Legante testato		Temperatura di prova (°C)	Tempo di prova (min)	Prove eseguite sui provini al termine di RTFOT
<b>70/100</b>	B.70/100_S30%	163	75	Penetrazione, palla-anello e viscosità
<b>100/150</b>	B.100/150_M30%	163	75	Penetrazione, palla-anello e viscosità
	B.100/150_B30%	163	75	Penetrazione, palla-anello e viscosità
<b>PBMSOFT</b>	PBMSOFT_S10%	163	75	Penetrazione, palla-anello e viscosità
<b>PBMHARD</b>	PBMHARD_S10%	163	75	Penetrazione, palla-anello e viscosità

L'invecchiamento a breve termine è stato eseguito sui leganti B70/100\_S30%, B100/150\_M30% e B100/150\_B30% in quanto a seguito dei risultati ottenuti si è visto come questi 3 leganti rispecchino al massimo le caratteristiche del bitume di riferimento 50/70; tuttavia l'invecchiamento è stato fatto anche sui bitumi modificati PBMSOFT e PBMHARD per vedere se fosse possibile effettuare anche su loro una modifica, seppur minore, con la lignina.

# Capitolo 4

## Risultati sperimentali

Nel seguente capitolo verranno illustrati ed analizzati i risultati delle sperimentazione. Si presenteranno dapprima i risultati inerenti alla prova di penetrazione, fondamentale per individuare i leganti in grado di soddisfare i requisiti desiderati.

Successivamente vengono esposti i risultati ottenuti dalle prove di palla-anello e viscosità.

Si ricorda tuttavia che per necessità esecutive, in laboratorio la prima prova eseguita è stata quella di viscosità sui bitumi vergini allo scopo di ricavare le temperature di miscelazione per ottenere i bio-leganti.

### 4.1 Risultati delle prove di penetrazione

La sperimentazione ha previsto lo studio delle diverse combinazioni bitume-percentuale di lignina attraverso la prova di penetrazione al fine di selezionare le combinazioni tali per cui le prescrizioni dettate dal Capitolato Speciale d'appalto ANAS risultassero rispettate. In particolare, lo scopo era quello di ottenere dei bio-leganti con delle caratteristiche confrontabili al bitume selezionato come riferimento, avente classe di consistenza 50/70.

La Figura 4.1. mostra i dati relativi alla penetrazione del bitume 70/100.

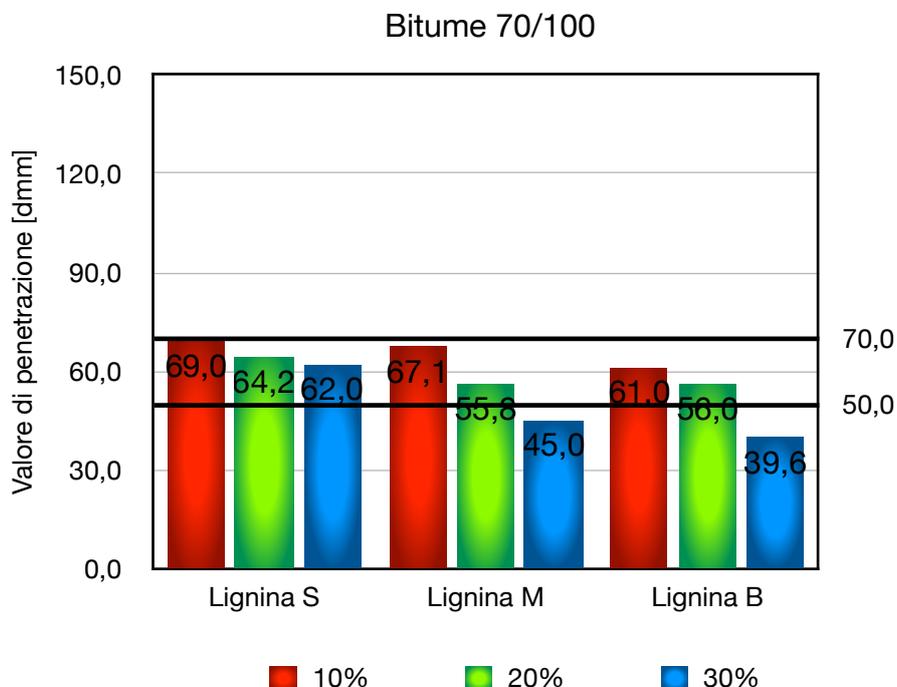


Figura 4.1 Penetrazione del bitume 70/100 con le tre lignine.

È possibile osservare che, indipendentemente da tipo di lignina, una sostituzione pari al 10% e 20% appare sempre un'ipotesi percorribile per il bitume in questione. Un replacement pari al 30%, invece, condurrebbe ad un legante troppo duro nel caso di impiego di lignina M e B, che in generale presentano sul bitume 70/100 effetti di indurimento più marcati rispetto alla lignina S.

Quest'ultima, infatti, se dosata al 30% in peso di bitume, produce un legante finale la cui consistenza è perfettamente compatibile con la classe di penetrazione desiderata (50/70). Per questo motivo, nell'ottica di voler massimizzare il replacement di lignina per ridurre quanto più possibile l'impiego del bitume, la configurazione B70/100\_S\_30 è stata selezionata per ulteriori indagini.

Per le indagini successive il primo step è stato ripreparare i leganti scelti al fine di verificare definitivamente i dati di penetrazione e palla-anello e successivamente, sottoporli all'invecchiamento a breve termine e nuovamente alle prove di penetrazione, palla-anello e viscosità per verificare la loro idoneità secondo il capitolato ANAS.

Si prosegue con la penetrazione del bitume 100/150 nella figura 4.2.

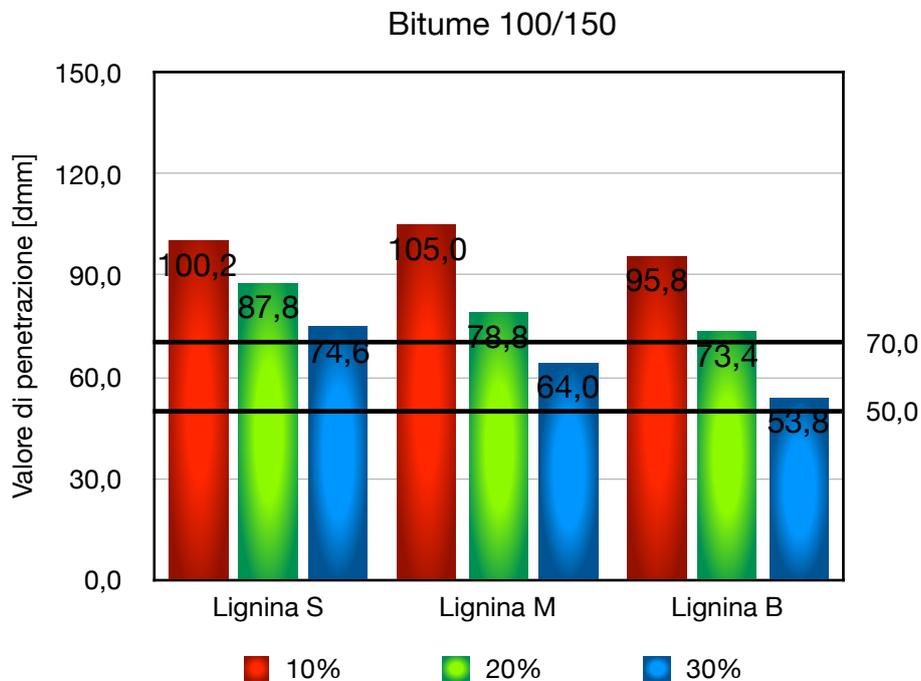


Figura 4.2 Penetrazione del bitume 100/150 con le tre lignine.

Si può notare come nel caso del bitume 100/150 una sostituzione pari al 10% e 20% risulta non sufficiente per raggiungere la classe di consistenza richiesta, mentre una sostituzione del 30% in peso per le lignine M e B rende il legante perfettamente confrontabile con il bitume di riferimento.

La lignina S sembra indurire di meno il bitume e per questo un replacement del 30% con questo polimero non è stato preso in considerazione.

Sono stati portati avanti nella sperimentazione invece i leganti B100/150\_M\_30 e B100/150\_B\_30.

Si prosegue, in figura 4.3, con la i risultati del bitume 160/220.

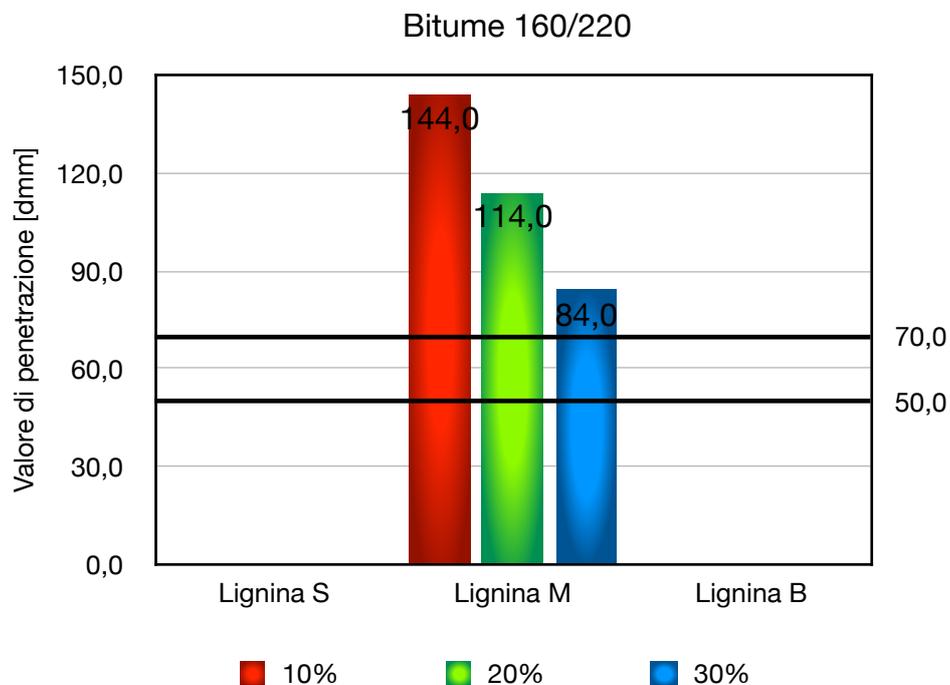


Figura 4.3 Penetrazione del bitume 160/220 con lignina M.

Per il seguente bitume non sono disponibili i dati legati alle penetrazioni con le lignine S e B in quanto, a seguito dell'esperienza appresa in laboratorio si è notato che il fattore che influenza maggiormente i risultati della prova è la percentuale di lignina sostituita e si è visto che per il seguente bitume anche una sostituzione in peso del 30% non era sufficiente per raggiungere la consistenza del bitume di riferimento in quanto il bitume risultava troppo morbido.

Di seguito (figura 4.4 e 4.5) si mostrano i risultati relativi alla penetrazione dei bitumi modificati con i polimeri SBS.

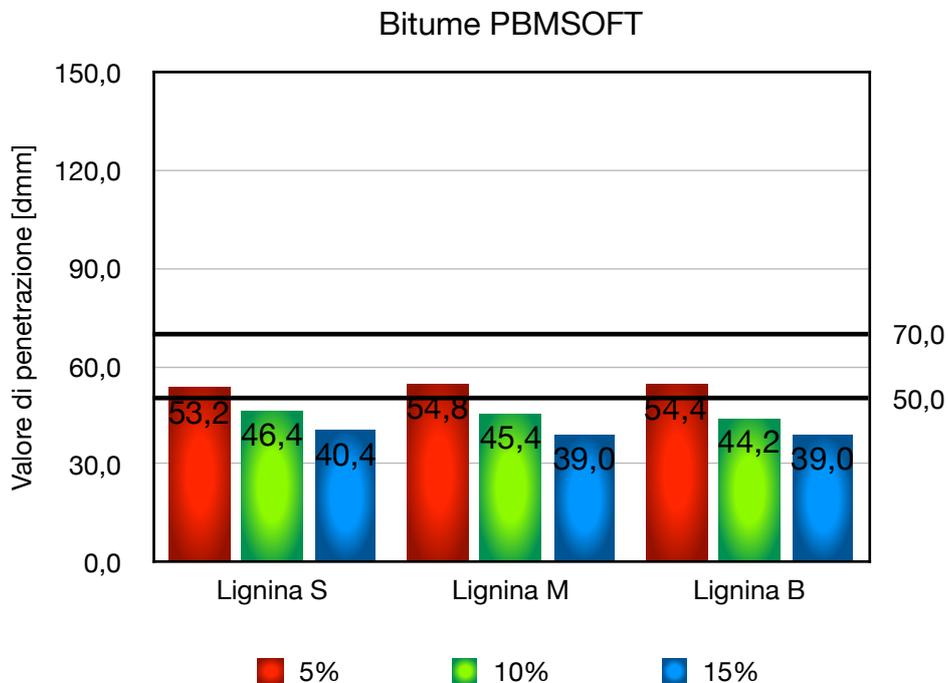


Figura 4.4 Penetrazione del bitume PBM SOFT con le tre lignine.

Nel caso del bitume PBM SOFT si nota che la sostituzione pari al 5% è sempre possibile mentre all'aumentare della percentuale sostituita i valori della penetrazione tendono a scendere leggermente sotto il minimo richiesto dal bitume di riferimento.

Nonostante un replacement del 10% non fornisca dati coerenti con il bitume di riferimento il legante che si è scelto per continuare la sperimentazione è proprio il PBMSOFT\_S\_10 in quanto il suo valore di penetrazione è inferiore solo di 3,6 dmm al valore richiesto e soprattutto perché una sostituzione del 5% in peso non è sufficiente per definire un bitume come modificato.

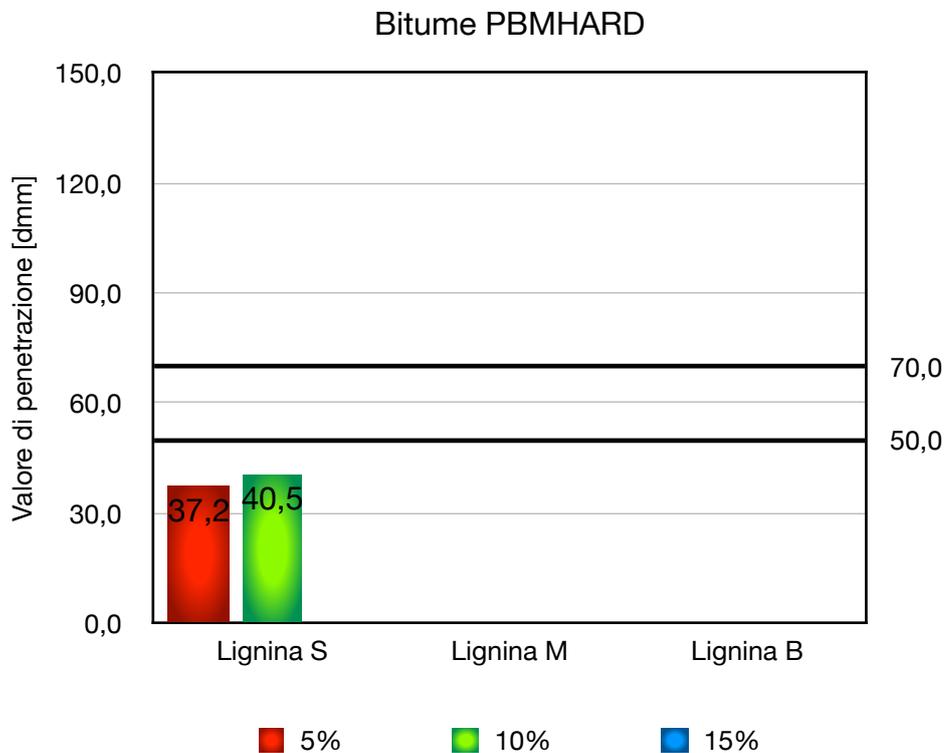


Figura 4.5 Penetrazione del bitume PBM HARD con la lignina S.

Si può osservare che, come per il bitume di classe 160/220, anche il PBM HARD non presenta tutti i dati di penetrazione in quanto a seguito dell'esperienza acquisita si è visto che non risulta idoneo ai fini della sperimentazione, si può notare infatti come anche un replacement del 5% fornisca dati troppo al di sotto del minimo richiesto.

In generale si può concludere dicendo che il bitume tende ad indurire se gli si sostituisce una percentuale di lignina via via sempre maggiore.

Quello che varia di meno invece è il valore della penetrazione al variare della tipologia della lignina impiegata a parità di percentuale sostituita.

Si osservi anche che i bitumi 160/220 e il PBM HARD non sono risultati idonei ai fini di questa sperimentazione e pertanto anche se il PBM HARD è stato sottoposto a diverse prove quali ad esempio l'invecchiamento a breve termine non si forniranno i risultati delle prove relative a questo legante; si prosegue perciò con l'analisi dei risultati relativi alle coppie scelte come migliori.

Di seguito, nella tabella 4.6 si riassumono i leganti con i quali è continuata la sperimentazione.

Tabella 4.6 Risultati delle prove di penetrazione dei leganti scelti.

Materiale	Penetrazione (dmm)		
	10%	20%	30%
B70/100_S	69,0	64,4	62,0
B100/150_M	105,0	78,8	64,0
B100/150_B	95,8	73,4	53,8
	5%	10%	15%
PBMSOFT_S	53,2	46,4	40,4

Al termine dell'invecchiamento a breve termine tutti i materiali quindi sono stati sottoposti nuovamente alle prove di penetrazione, palla-anello e viscosità per verificare la loro idoneità secondo i requisiti di accettazione prescritti dal Capitolato ANAS scelto come riferimento. (Tabelle 4.7 A e B)

Tabella 4.7 A Capitolato per bitumi tradizionali

TABELLA 6.A		Bitume 50/70	Bitume 70/100
caratteristiche	U.M.	valore	
PRIMA PARTE			
penetrazione a 25° C	dmm	50-70	70-100
punto di rammollimento	° C	45-60	40-60
punto di rottura Fraass, min.	° C	≤-6	≤-8
ritorno elastico	%	-	-
stabilità allo stoccaggio tube test	°C	-	-
viscosità dinamica a 160° C	Pa x s	0,03-0,10	0,02-0,10
SECONDA PARTE - valori dopo RTFOT (*)			
incremento del punto di rammollimento	°C	≤ 9	≤ 9
penetrazione residua	%	≥ 40	≥ 50

Tabella 4.7 B Capitolato per bitumi modificati

<b>TABELLA 6.B - BITUMI MODIFICATI CON AGGIUNTA DI POLIMERI</b>				
<b>caratteristiche</b>	<b>U.M.</b>	<b>Base Modifica BM</b>	<b>Soft 2,5%-3,5% SF</b>	<b>Hard 4%-6% HD</b>
penetrazione a 25° C	dmm	80-100	50-70	50-70
punto di rammollimento	° C	40-60	60-80	70-90
punto di rottura Fraass	° C	≤-8	≤ -10	≤ -12
ritorno elastico a 25° C	%	-	≥ 70	≥ 80
viscosità dinamica a 160° C	Pa x s	0,01-0,10	0,10-0,35	0,15-0,4
Stabilità allo stoccaggio tube test	°C	-	≤ 3 <sup>(*)</sup>	≤ 3 <sup>(*)</sup>
valori dopo RTFOT - Rolling Thin Film Oven Test				
penetrazione residua a 25° C	%	≥ 50	≥ 40	≥ 40
Incremento del punto di rammollimento	° C	≤ 9	≤ 8	≤ 5

Si presenta il grafico (figura 4.8) relativo ai valori della penetrazione dei leganti prima e dopo l'invecchiamento.

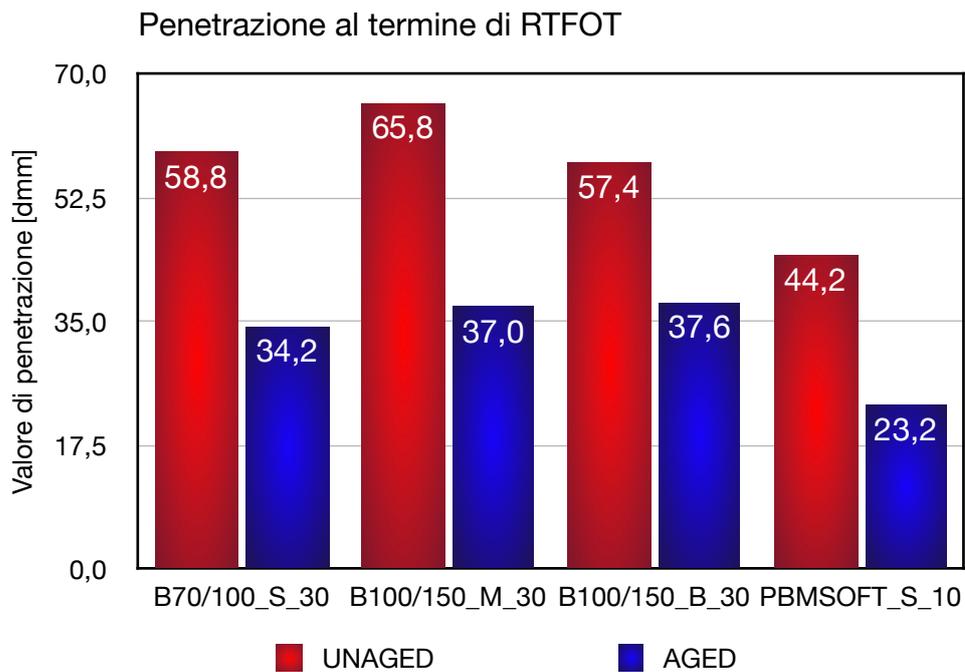


Figura 4.8 Penetrazione prima e dopo l'invecchiamento.

Come si evince dal capitolato (tabella 4.7 A e B) per il bitume di classe di consistenza 50/70 e per il modificato soft i valori della penetrazione al termine della prova RTFOT devono essere maggiori o uguali al 40% della penetrazione iniziale; valore che perciò deve essere rispettato anche dai leganti modificati con lignina che hanno come riferimento il bitume 50/70.

Si mostra pertanto nella tabella sottostante (tabella 4.9) il valore soglia minimo che i leganti avrebbero potuto presentare e il valore di penetrazione effettivo al termine dell'invecchiamento a breve termine.

Tabella 4.9 Valori della penetrazione al termine dell'invecchiamento a breve termine.

<b>Legante</b>	<b>Valore della penetrazione unaged (dmm)</b>	<b>Valore minimo accettabile aged (dmm)</b>	<b>Valore effettivo aged (dmm)</b>
<b>B70/100_S_30%</b>	58,8	23,5	34,2
<b>B100/150_M_30%</b>	65,8	26,3	37,0
<b>B100/150_B_30%</b>	57,4	23,0	37,6
<b>PBMSOFT_S10%</b>	44,2	17,7	23,2

Come si deduce dalla tabella sovrastante (tabella 4.9) tutti i leganti preparati rispettano i valori della penetrazione richiesti dal capitolato sia prima che dopo l'invecchiamento.

## 4.2 Risultati delle prove di Palla-Anello

Come per i risultati della prova di penetrazione anche quelli della palla-anello vengono rappresentati mediante l'utilizzo di istogrammi.

Nella tabella 4.10 sono riportati i valori della palla anello dei bitumi vergini non modificati.

Tabella 4.10 Punti di rammollimento dei bitumi

Bitume	Temperatura °C
B50/70	51,4
B70/100	48,0
B100/150	49,8
B160/220	—
PBMSOFT	58,5
PBMHARD	73,8

Nel grafico che segue (figura 4.12) sono riportati i valori della palla anello delle coppie scelte come migliori prima e dopo il processo dell'invecchiamento a breve termine.

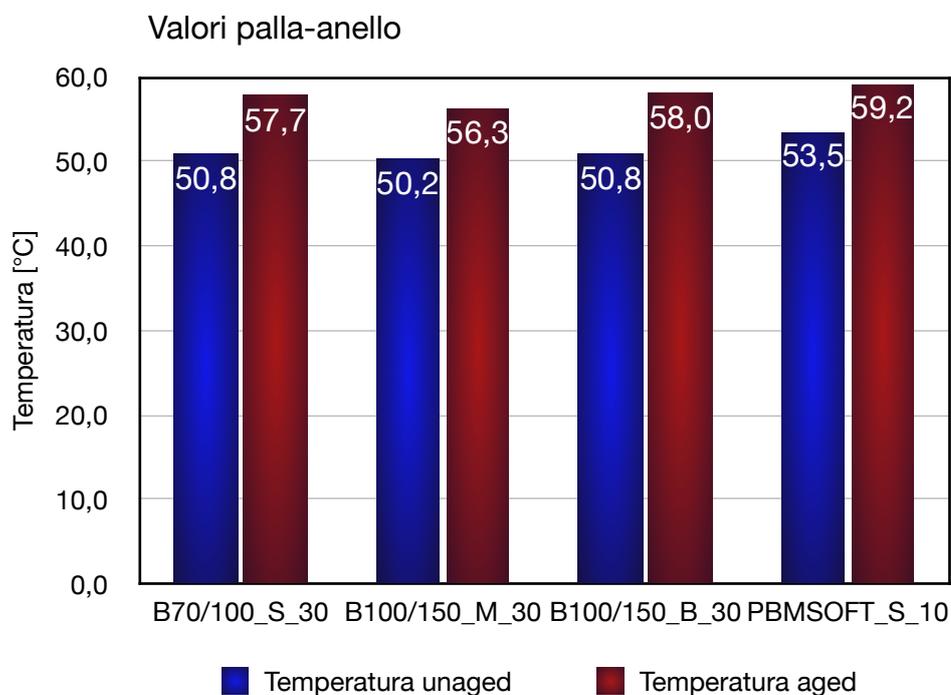


Figura 4.12 Valori di palla-anello prima e dopo l'invecchiamento.

Consultando il capitolato (figura 4.7 A e B) si evince che il bitume di riferimento 50/70 prima dell'invecchiamento deve avere una temperatura di rammollimento compresa tra 45-60°C mentre a seguito dell'invecchiamento a breve termine può presentare un incremento del punto di rammollimento di massimo 9°C.

Il modificato soft può presentare una temperatura di rammollimento compresa tra 60-80°C e un incremento a termine dell'invecchiamento a breve termine di 8°C; alla luce di questo si mostra la tabella 4.13 nella quale si presentano le possibili temperature dei bitumi modificati e le effettive ricavate in laboratorio.

Tabella 4.13 Valori della prova di palla anello a seguito dell'invecchiamento.

<b>Legante</b>	<b>Valore della palla-anello unaged (°C)</b>	<b>Valore massimo accettabile aged (°C)</b>	<b>Valore effettivo aged (°C)</b>
<b>B70/100_S_30%</b>	50,8	59,8	57,7
<b>B100/150_M_30%</b>	50,2	59,2	56,3
<b>B100/150_B_30%</b>	50,8	59,8	58,0
<b>PBMSOFT_S10%</b>	53,5	61,5	59,2

Dai seguenti risultati, come era atteso, si può notare l'indurimento dei bitumi a seguito dell'invecchiamento a breve termine, infatti il bitume indurendo presenta una temperatura di rammollimento più alta.

I bitumi tradizionali modificati con la lignina rientrano perfettamente nel range richiesto mentre il modificato soft, seppure non rientra con il valore del punto di rammollimento richiesto rispetta le temperature date per il bitume di riferimento 50/70.

## 4.3 Risultati della prova di viscosità

Come è stato detto nel paragrafo iniziale prima di iniziare la sperimentazione è stata eseguita la prova di viscosità sui bitumi vergini ai fini di ricavare le temperature di miscelazione per ogni bitume.

Per poter ricavare le temperature di miscelazione si è scelto di lavorare con un torcente pari al 50% e una viscosità di circa 170 mPa\*s.

Si presenta pertanto un grafico illustrativo (figura 4.14) di come sono state ricavate tali temperature.

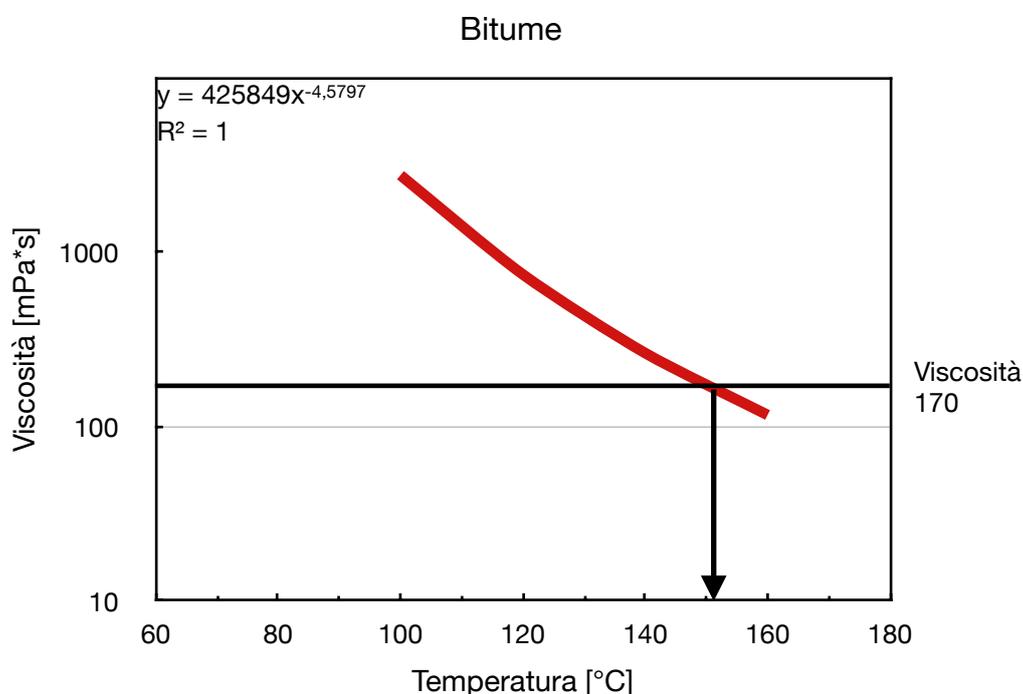


Figura 4.14 Esempio di come ricavare la temperatura di miscelazione.

Si sceglie la viscosità con la quale si vuole lavorare e dall'intersezione con il grafico della viscosità si ricava la temperatura di miscelazione.

Avendo fatto lo stesso procedimento per ogni bitume si possono ricavare le seguenti temperature di miscelazione (tabella 4.15):

Tabella 4.15 Temperature di miscelazione

TIPO DI LEGANTE	TORCENTE (%)	VISCOSITA (mPa*s)	TEMPERATURA (°C)
70/100	50	170	148
100/150	50	170	132
160/220	50	170	135
PBMSOFT	50	170	153
PBMHARD	50	170	179

In seguito, dopo aver preparato i leganti la prova di viscosità è stata eseguita su tutte le coppie scelte come migliori.

Si presentano pertanto di seguito (figure 4.16, 4.17, 4.18, 4.19) i grafici che rappresentano la curva viscosità-temperatura dei leganti scelti a confronto con il bitume di riferimento di classe 50/70.

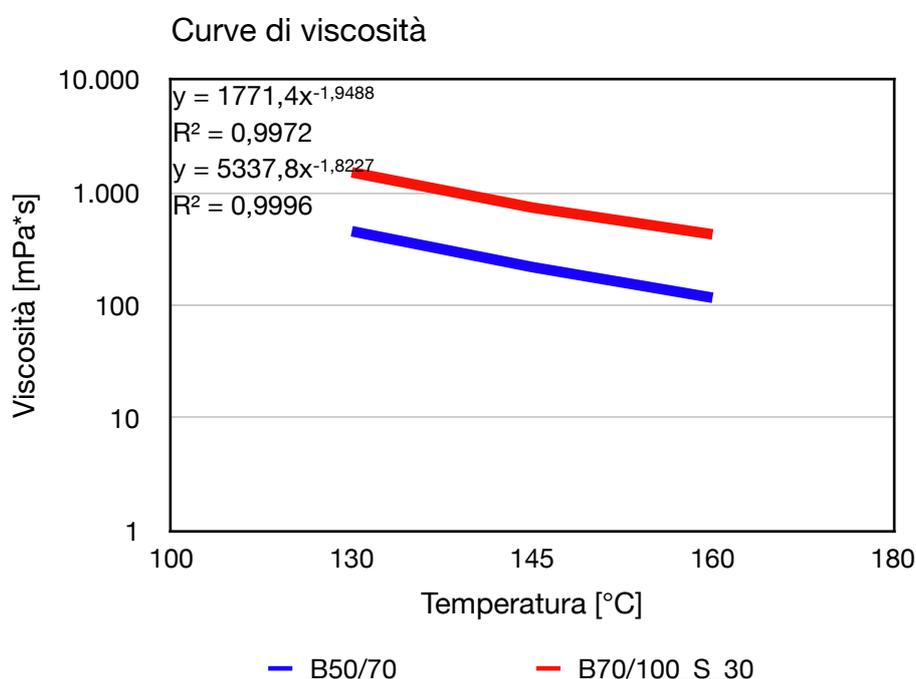


Figura 4.16 Confronto tra le viscosità, bitume 50/70 e B70/100\_S\_30.

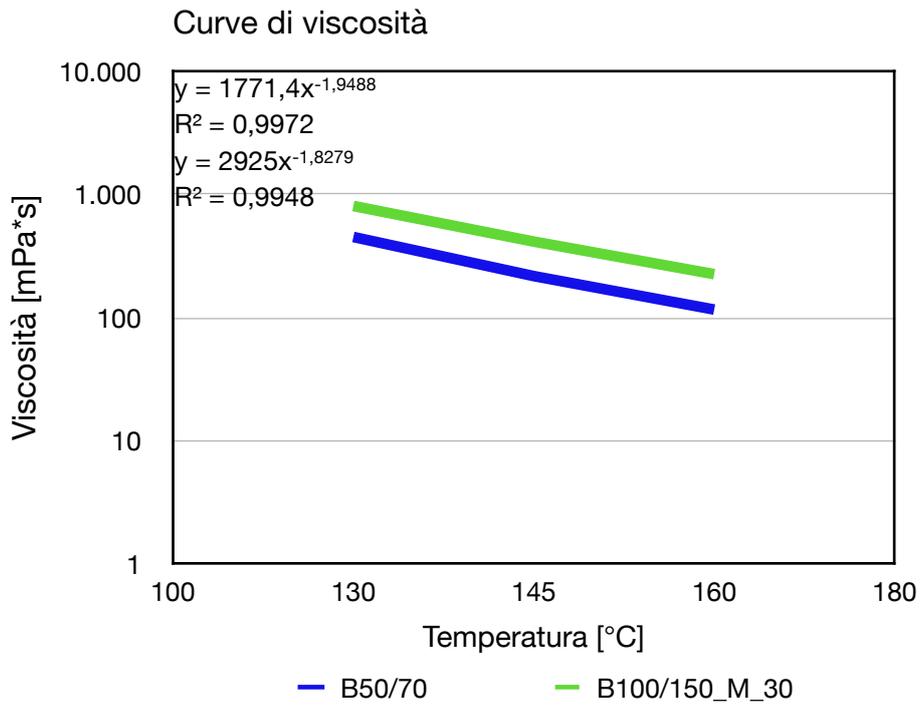


Figura 4.17 Confronto tra le viscosità, bitume 50/70 e B100/150\_M\_30.

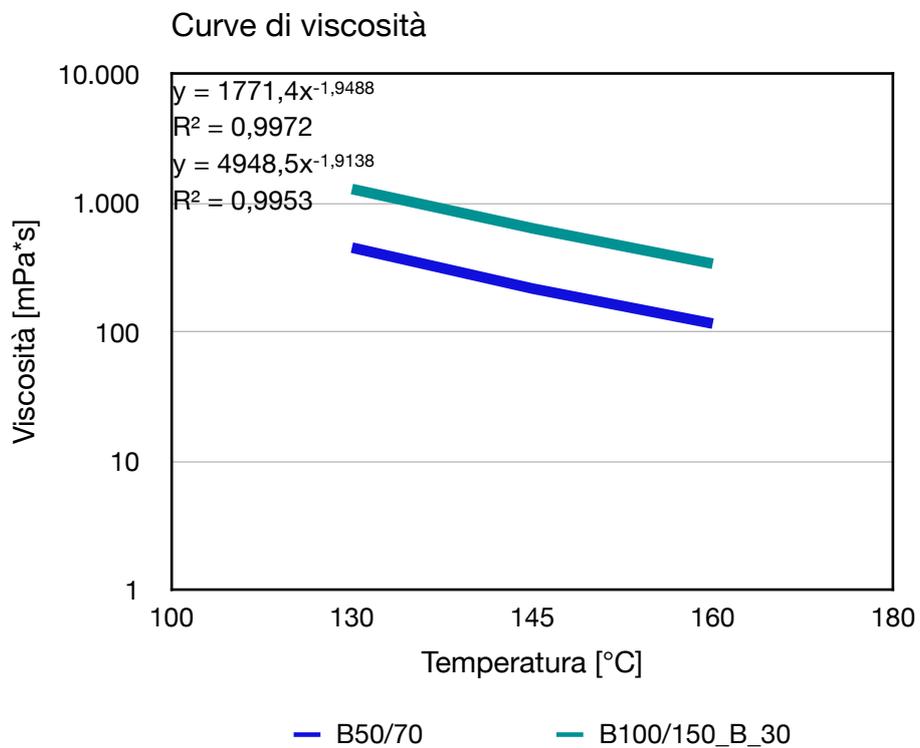


Figura 4.18 Confronto tra le viscosità, bitume 50/70 e B100/150\_B\_30.

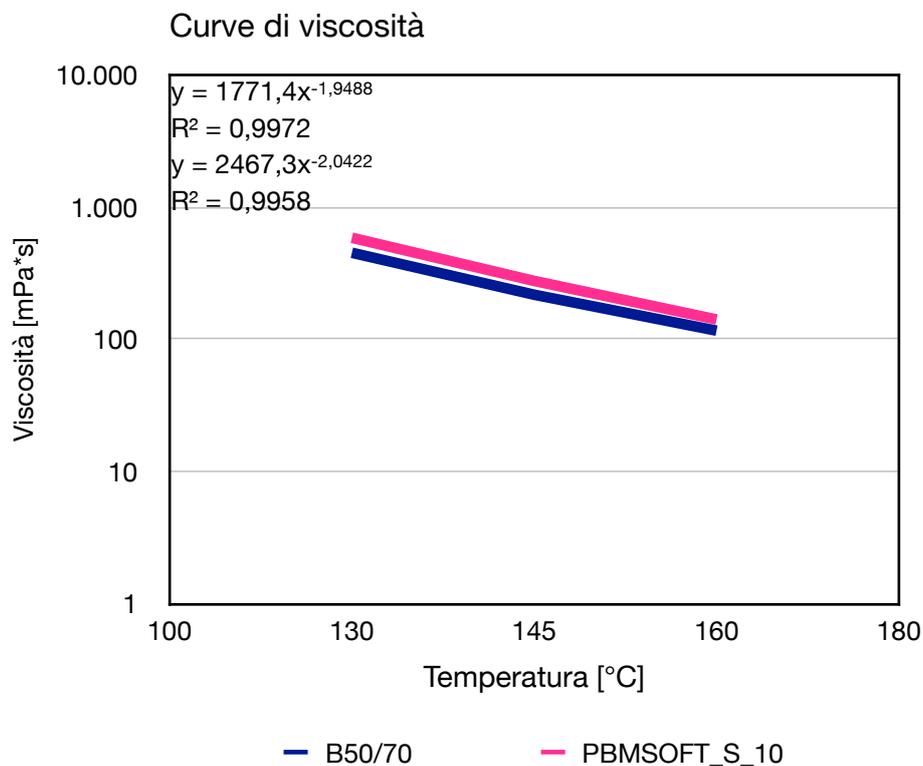


Figura 4.19 Confronto tra le viscosità, bitume 50/70 e PBMSOFT\_S\_10.

Si può dedurre facilmente dai grafici che la viscosità è l'unica caratteristica che non rispetta i parametri del bitume di riferimento, infatti le curve viscosità-temperatura dei leganti modificati si trovano al di sopra della curva del bitume di consistenza 50/70.

Le specifiche italiane infatti stabiliscono che la viscosità per i bitumi tradizionali a 160°C (tabella 4.20) deve essere compresa tra 0,03-0,10 Pa\*s mentre per quelli modificati soft può variare tra 0,10-0,35 Pa\*s.

Questi risultati erano facilmente prevedibili in quanto aggiungendo una fase solida al bitume questa ne cambia la consistenza.

Il fatto che tutte le curve dei leganti modificati a parità di temperatura con il bitume 50/70 abbiano un valore di viscosità maggiore va a significare che oppongono più resistenza al movimento, questo è causato dai piccolissimi granuli di lignina disciolti al loro interno.

Si può vedere come la curva del legante PBMSOFT\_S\_10 si avvicini maggiormente alla curva del bitume di riferimento, mentre le altre seppur presentando la stessa pendenza sono leggermente traslate.

Tabella 4.20 Tabella riassuntiva dei valori della viscosità

Legante	Temperatura °C	Unaged (Pa*s)	Aged (Pa*s)	Valore richiesto (Pa*s)	Rientra nei limiti
B70/100_S_30%	160	0,423	0,598	0,03-0,1	NO
B100/150_M_30%	160	0,339	0,590		NO
B100/150_B_30%	160	0,225	0,331		NO
PBMSOFT_S_10%	160	0,141	0,160	0,1-0,35	SI

Di seguito (Figure 4.21, 4.22, 4.23, 4.24) si mostrano le curve della viscosità per i leganti invecchiati e non invecchiati per vedere l'impatto sulla loro lavorabilità.

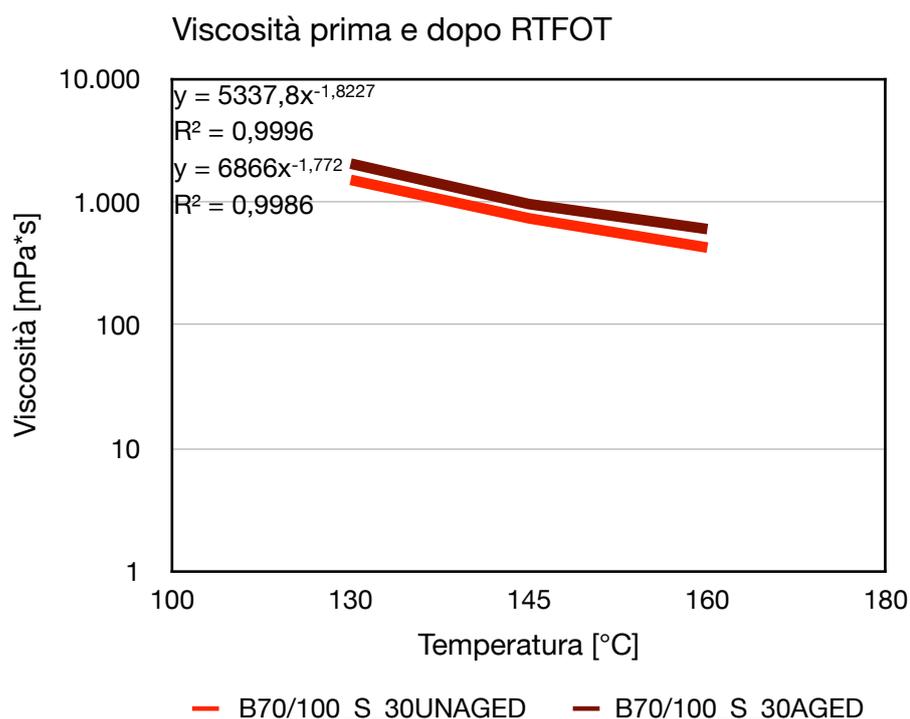


Figura 4.21 Legante B70/100\_S\_30 invecchiato e non invecchiato.

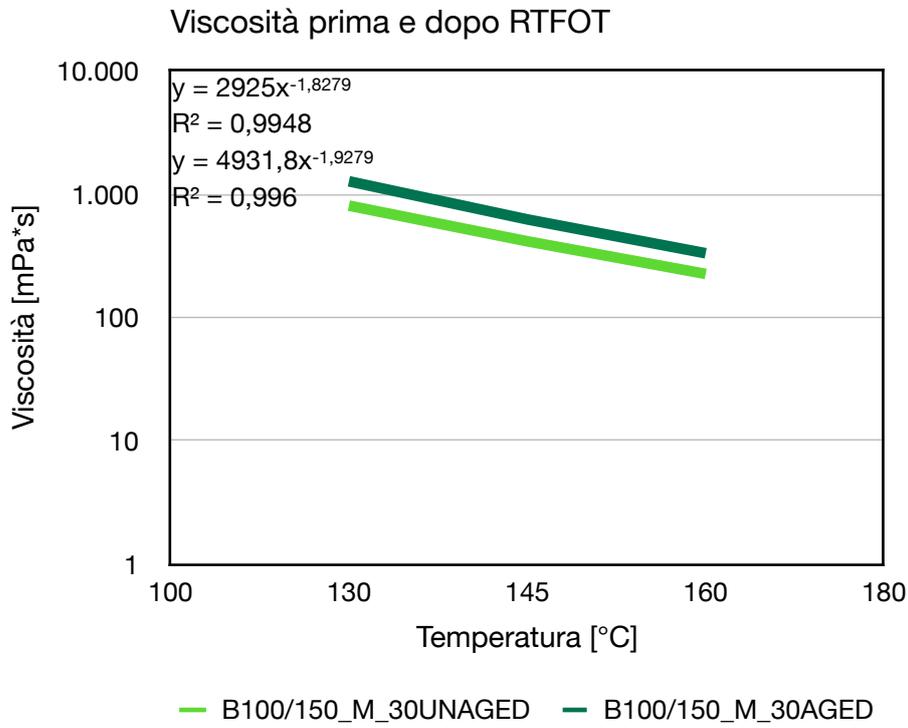


Figura 4.22 Legante B100/150\_M\_30 invecchiato e non invecchiato.

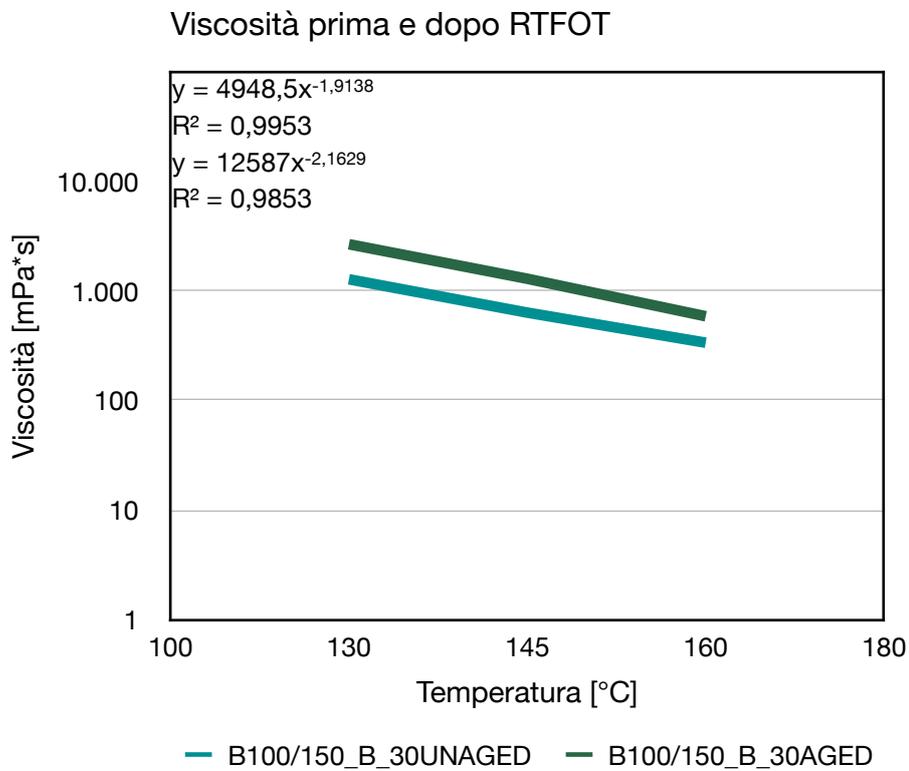


Figura 4.23 Legante B100/150\_B\_30 invecchiato e non invecchiato.

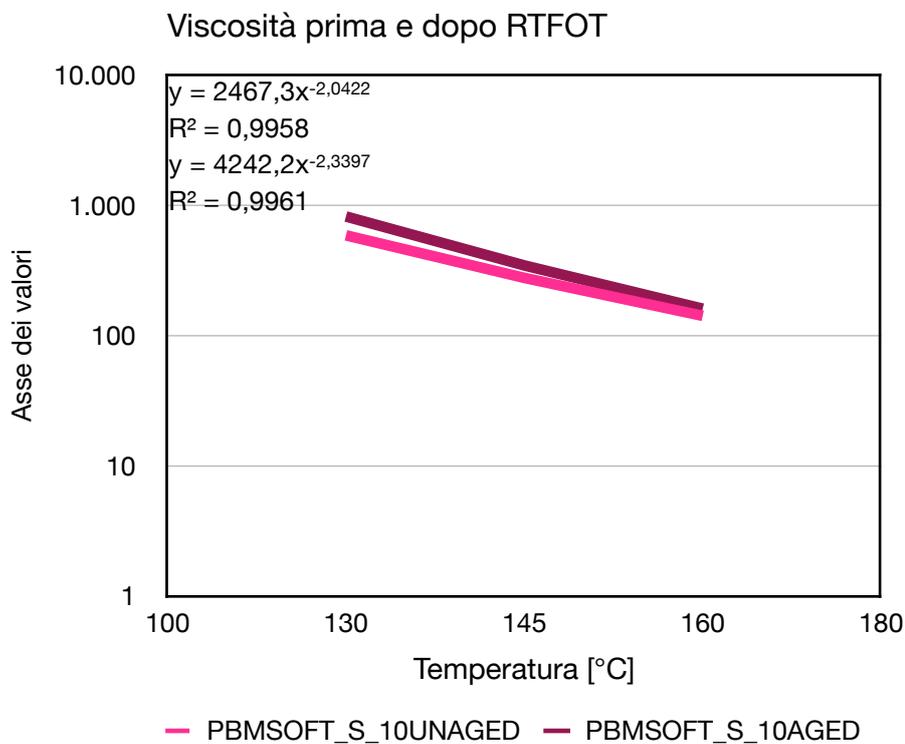


Figura 4.24 Legante PBMSOFT\_S\_10 invecchiato e non invecchiato.

Come è successo per tutte le altre prove eseguite, anche al termine della prova RTFOT l'indurimento del bitume è visibile dai dati ottenuti.

Tutte le curve viscosità-temperatura dei leganti invecchiati presentano infatti, a parità della temperatura di quelli non invecchiati, una viscosità maggiore, proprio questa va ad indicare che il legante, essendo più duro oppone maggiore resistenza al movimento, risulta perciò più difficile nella lavorazione.

Si può notare che la differenza di viscosità tra bitumi invecchiati e non invecchiati non è così elevata, le curve infatti si trovano molto vicine tra loro e in alcuni casi, come succede per il PBM SOFT tendono a sovrapporsi.

# Capitolo 5

## Conclusioni

A causa della crescente domanda di risorse esauribili come il petrolio, deriva la necessità di ricercare fonti rinnovabili che garantiscano la salvaguardia e la rigenerazione nel tempo di tali risorse. Nell'ambito delle infrastrutture di trasporto, le ricerche stanno vertendo verso lo studio di soluzioni alternative al bitume, approfondendo la possibilità di sostituire parzialmente o totalmente tale legante con materiali provenienti da risorse rinnovabili, introducendo materiali innovativi denominati bio-leganti.

In tale ambito, la presente sperimentazione si è occupata dello studio della lignina quale bio-materiale per la produzione di leganti.

Nello specifico, la sperimentazione si è focalizzata sulla possibilità di sostituire parzialmente il bitume con la lignina. Sono stati così ottenuti diversi bio-leganti a partire da 3 bitumi tradizionali caratterizzati da diverse consistenze (70/100, 100/150, 160/220), 2 modificati (PBM SOFT e PBM HARD) e tre diverse lignine (S, M, B).

Lo scopo è stato quello di massimizzare la sostituzione di bitume con lignina.

Attraverso sperimentazioni in laboratorio è stato possibile determinare le combinazioni bitume-lignina che presentassero alcune caratteristiche prestazionali quali la penetrazione, il punto di rammollimento e la viscosità dinamica confrontabili a quelle di un bitume di riferimento (50/70), dettate dal Capitolato Speciale d'Appalto ANAS. I bio-leganti selezionati sono stati testati sia in condizioni tal quali (unaged) che di invecchiamento a breve termine (aged).

Alla luce dei risultati emersi da tale sperimentazione è risultato quanto segue:

- Per i bitumi tal quali l'impiego di lignina come "replacement" è stato possibile fino ad un quantitativo pari al 30% in peso, pena l'insorgere di problematiche operative legate alla dispersione della lignina all'interno della fase legante;
- Nel bitume PBM SOFT è risultata possibile una sostituzione pari al 10%, mentre il PBM HARD non consente alcuna sostituzione data la sua consistenza iniziale;
- L'impiego di lignina ha comportato un incremento di consistenza (riduzione del grado di penetrazione e aumento del punto di rammollimento) dei bitumi

tradizionali; tale effetto di indurimento è risultato confrontabile a parità di legnate, indipendentemente dal tipo di lignina impiegata;

- Ad eccezione del bitume 160/220 e del PBM HARD, tutti i bio-leganti hanno raggiunto il grado di consistenza desiderato e ricadente nell'intervallo 50/70 (bitume di riferimento) a seguito di un replacement di lignina pari al 30% (bitumi tal quali) e 10% (PBM SOFT) nel rispetto delle prescrizioni dettate dal Capitolato sia in condizioni unagede che aged;
- Un replacement di lignina pari al 30% potrebbe tuttavia comportare difficoltà in fase di miscelazione considerata l'elevata viscosità dinamica associata, richiedendo delle temperature di produzione superiori.

A valle di tale sperimentazione, è emerso che la sostituzione parziale di bitume con lignina risulta essere un'ipotesi percorribile nell'ottica di ridurre l'impiego di bitume per la produzione di bio-leganti. Tuttavia, sono previsti ulteriori studi di laboratorio destinati all'indagine dell'applicazione di tali bio-leganti alle miscele in conglomerato bituminoso.

# Bibliografia

- [1] <https://geoconsultingitalia.com/bitume-che-cose/>
- [2] Federico Millosevich, Giovanni Ferro-Luzi, Bitume, Treccani
- [3] Figura 2.1.1 Wikipedia, processo di raffinazione del greggio
- [4] Felice A. Santagata, Teoria e tecnica delle costruzioni stradali, Pearson 2019, capitolo 6
- [5] [<https://www.stradeeautostrade.it/asfalti-e-bitumi/l-attualita-dei-bitumi-modificati/>]
- [6] <http://dx.doi.org/10.5772/intechopen.76832>
- [7] <http://www.chimicaverde.it/biopolimeri/>
- [8] Ignacio Pérez, Ana R. Pasandín, Jorge C. Pais, Paulo A. A. Pereira, Feasibility of Using a Lignin-Containing Waste in Asphalt Binders, Waste and Biomass Valorization 11, 3021-2034,(2019). <https://doi.org/10.1007/s12649-019-00590-4>
- [9] Ignacio Perez Perez, Ana María Rodríguez Pasandín, Jorge Carvalho Pais, Paulo Antonio Alves Pereira, Use of lignin biopolymer from industrial waste as bitumen extender for asphalt mixtures, Journal of Cleaner Production 220, 87-98,(2019)
- [10] Fadi S. Chakar, Arthur J. Ragauskas, Review of current and future softwood Kraft lignin process chemistry, Industrial Crops and Products 20, 131-141,(2004)
- [11] Mohsen Zahedi, Ali Zarei, Mohammad Zarei, The effect of lignin on mechanical and dynamical properties of asphalt mixtures, SN Applied Sciences (2020) 2:1242; <https://doi.org/10.1007/s42452-020-3041-4> .
- [12] wikipedia, processo kraft