Vol. 53 No. 3

Mar. 2021

DOI:10.11918/202005033

## 沥青粘附性自愈合性能评价与机理分析

吕 泉<sup>1,2,3</sup>,黄卫东<sup>2,3</sup>,孙立军<sup>1,2,3</sup>,周 璐<sup>2,3</sup>,刘力源<sup>2,4</sup>

(1.上海市轨道交通结构耐久与系统安全重点实验室(同济大学),上海 201804;

- 2.道路与交通工程教育部重点实验室(同济大学),上海 201804;3.同济大学 交通运输工程学院,上海 201804;
- 4.黄土地区公路建设与养护技术国家交通行业重点实验室(山西交通科学研究院集团有限公司),太原 030006)

关键词: 粘附性自愈合性能;分子链结构指数;BBS 实验;红外光谱实验

中图分类号: U414

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2021)03-0033-09

# Evaluation and mechanism analysis of adhesive self-healing property of asphalt

LÜ Quan<sup>1,2,3</sup>, HUANG Weidong<sup>2,3</sup>, SUN Lijun<sup>1,2,3</sup>, ZHOU Lu<sup>2,3</sup>, LIU Liyuan<sup>2,4</sup>

- (1. Shanghai Key Laboratory of Rail Infrastructure Durability and System Safety (Tongji University), Shanghai 201804, China;
  - 2. Key Laboratory of Road and Traffic Engineering of Ministry of Education (Tongji University), Shanghai 201804, China;
- 3. College of Transportation Engineering, Tongji University, Shanghai 201804, China; 4. Key Laboratory of Highway Construction and Maintenance Technology of Ministry of Transport in Loess Region (Shanxi Transportation Research Institute Group Co., Ltd.), Taiyuan 030006, China)

Abstract: To compare and evaluate the adhesive self-healing properties of different asphalt and explain the mechanism of asphalt self-healing from micro-level, the binder bond strength (BBS) test was conducted on seven base asphalt binders and four types of modified asphalt with different dosages (SBS, terminal blend rubber, gilsonite, and high-density polyethylene). Fourier transform infrared (FTIR) test was carried out on selected asphalt, and the mechanism of self-healing was analyzed by asphalt molecular chain structure index (methylene plus methyl hydrogen to carbon, MMHC). The correlation between viscosity of asphalt and self-healing performance was obtained. Results show that the adhesive self-healing properties of different base asphalt binders after multiple failure-healing cycles were significantly different. High-density polyethylene and gilsonite at low dosages could improve the self-healing property of asphalt, whereas linear, radial SBS, and rubber powder had negative effect on the adhesive self-healing property of asphalt. There was a significant negative linear correlation between MMHC index and healing ratio of base asphalt. However, the MMHC index could not be used to predict the adhesive self-healing property of modified asphalt. The Brookfield rotary viscosity of base asphalt and modified asphalt at 135 °C both showed good linear correlation with their healing ratio. Compared with MMHC index, Brookfield rotary viscosity at 135 °C is a more suitable evaluation indicator for predicting the adhesive self-healing property of asphalt. Keywords: adhesive self-healing property; MMHC index; BBS test; FTIR test

收稿日期: 2020-05-10

基金项目: 国家自然科学基金(51978518,51778481,51908426)

作者简介: 吕 泉(1991--),男,博士;

黄卫东(1970—),男,研究员,博士生导师; 孙立军(1963—),男,教授,博士生导师

通信作者: 周 璐,1251136@ tongji.edu.cn

粘附性是沥青的本质属性<sup>[1]</sup>,同时,它还具有 反复粘结的能力,即自愈合属性<sup>[2]</sup>.要理解沥青的 粘附特性,就需要将粘附与自愈合两个属性结合在 一起进行研究.路面沥青混合料在长期的使用过程 中,沥青与集料界面会出现粘附性破坏、再粘附、再破坏的反复交替,即粘附性自愈合现象.相对应地,沥青还存在内聚性自愈合现象,即沥青材料内部微裂缝在自身黏性驱动下的闭合现象<sup>[3]</sup>.美国德州农工大学的 Lytton 研究<sup>[4]</sup>表明,沥青粘附性自愈合是联系沥青混合料抗水损害、疲劳、耐久及高温等众多路用性能的纽带,在一定程度上决定了沥青材料诸多路用性能的优劣.

目前沥青自愈合相关的研究主要集中在内聚性 自愈合[2],对于工程实际中大量存在的粘附性自愈 合现象却关注较少,且很多研究并没有区分粘附性 自愈合与内聚性自愈合,将两者混为一谈,造成了沥 青自愈合评与价指标的失准研究结果的前后矛 盾[5]. 关于不同改性剂对沥青自愈合性能的影响作 用,不同文献得出的结论并不统一[6]. 一部分研究 认为, 高分子改性剂的存在阻碍了受到损伤后沥青 基团之间的重新相互接触,对沥青的自愈合进程产 生不利影响[7]:但也有一部分研究认为,改性剂聚 合物能够在沥青中发育溶胀,形成错杂交互的三维 网状结构,这增强了沥青的自愈合能力<sup>[8]</sup>. 以 SBS 为例,不同评价方法结论可能有所不同:在沥青层 面,文献[7]依据原子力显微镜与表面能实验结果 提出 SBS 利于沥青自愈合性能;而在沥青胶浆层 面,文献[9]基于直接拉伸实验指出 SBS 不利于胶 浆自愈合性能;在混合料层面,文献[10]利用疲劳 小梁实验又提出 SBS 有利于混合料自愈合性能. 类 似这样的矛盾结论会造成业内人士在材料选择上的 困扰. 因此,需要用一种能够明确区分内聚与粘附 性自愈合的实验方法,对不同改性剂对沥青粘附性 自愈合性能的影响进行系统的对比评价. 同时,也 需要从微观层面对不同沥青的粘附性自愈合性能机 理进行研究.

近年来,在国内外一些研究中,采用一种规范的小型拉拔实验(binder bond strength test, BBS)对沥青-集料的粘结性能进行测试<sup>[11]</sup>.该实验不仅仪器便携,且实验过程较为简单快捷、数据直观,逐渐在沥青材料工程研究中得到广泛应用<sup>[12-16]</sup>.

针对目前关于各类改性剂对沥青粘附性自愈合的影响机制不明、沥青粘附性自愈合的机理解析研究相对缺乏的现状与不足,本文将基于 BBS 实验进行多次自愈合实验,对 6 种不同产地的基质沥青与4类多种掺量的改性沥青(SBS 改性沥青、TB (terminal blend)溶解性胶粉改性沥青(简称 TB 胶粉沥青)、岩沥青改性沥青、以及高密度聚乙烯(high-density polyethylene, HDPE)改性沥青)的粘附性自愈合能力进行同一实验条件下的系统评价.同

时,借助红外光谱(Fourier transform infrared, FTIR) 官能团分析对沥青-集料界面粘附性自愈合机理进行探究,并将沥青常用指标布氏粘度与沥青的自愈合性能进行相关性分析.

## 1 实验

#### 1.1 实验材料

对于基质沥青,选取了7种不同产地的70#沥青:美国埃克森美孚公司生产的ESSO沥青、昆仑沥青、塔河沥青、金山沥青、东海沥青、中海沥青与韩国SK沥青,在本文中,分别以ES、KL、TH、JS、DH、ZH、及SK进行表示.

改性沥青包括 SBS 改性沥青(研究掺量(质量分数)为 1.5%,3.0%,4.5%),TB 胶粉沥青(研究掺量为 5%,10%,15%,20%),岩沥青改性沥青(研究掺量为 4%,8%,12%,20%,24%)及 HDPE 改性沥青(研究掺量为 2%,4%,6%,8%). 改性沥青在制备时的基质沥青均为 ES 70#沥青.

在各类改性沥青中,TB 胶粉沥青是一种经过高温脱硫制成的橡胶类沥青,其中的橡胶颗粒粒径一般小于40目.与普通的橡胶沥青相比,TB 胶粉沥青的显著优势在于其具有良好的储存稳定性与较小的黏度,这为沥青的储存与现场施工带来很大便捷[17].

#### 1.2 实验方法

#### 1.2.1 BBS 实验

BBS 实验中,采用美国 DeFelsko 公司生产的 PosiTest AT-A 全自动数字显示拉拔式附着力测试仪、金属拔头及经过工厂打磨抛光后的玄武岩石板进行成型. 其中,金属拔头底部加工有成环形凹槽,如图 1(a)所示,内径为 18 mm,外径为 20 mm,凹槽的深度为 0.2 mm. 在试件成型的过程中,将适量加热后的流动沥青滴在石板表面,并将拔头平放置在高温下自流平的沥青上,施加压力,多余的沥青即可从 4个凹槽开口处(溢流孔)流出,并受到拔头周围硅胶圈提供的侧限,如图 1(b)、1(c)所示,由此可形成由凹槽深度决定的沥青膜,沥青膜厚度为0.2 mm.



(a) 拔头 (b) 拔头与石板粘结

(c) 养护压重

图 1 BBS 实验拔头及试件

Fig.1 Stub and sample in BBS test

为了保证沥青与集料界面具有足够的粘附强 度,将成型好后的试件放置在25 ℃恒温箱中养护 1 h. 接着将试件放入 40 ℃水浴箱中 24 h,以促进其 发生沥青-石板界面的粘附性破坏,再将试件取出 并放入25 ℃恒温箱中干燥1 h 后,标记每个拔头的 位置并进行第1次拉拔实验,得到初始拉拔强度 (initial pull-off tensile strength), 记为 POTS-I. 随后, 根据标记,将拔头放回原位置,将试件再次放入25℃ 水浴箱进行愈合养护,并在顶部放置压重,经过24 h 愈合取出试件,重复拉拔实验,测得的愈合强度记为 POTS-A. 这样的拉拔-愈合循环被记为F-H循环 (failure-healing cycle),每个试件可以经过i个F-H 循环,每次测得愈合拉拔强度为 POTS - A. 在本文 中,为模拟实际路面中沥青材料经历的路面荷载反复 加载与间歇愈合,对沥青-石板试件多次 F-H 循环. 拉拔实验中的试件愈合率计算公式为

$$HI_i = \frac{POTS - A_i}{POTS - I} \times 100\%. \tag{1}$$

式中  $\mathrm{HI}_i$  为 i 个  $\mathrm{F-H}$  循环后沥青-集料粘附强度的愈合率.

本文将采用愈合强度和愈合率这两个指标来评价沥青-集料的粘附性自愈合特性. 受不同沥青材料、系统误差等的影响,各组试件的初始强度之间存在着一定差异. 因此,对于不同种类的沥青,需同时考虑愈合强度和愈合率两个指标,借此综合评价沥青-集料界面的自愈合特性.

#### 1.2.2 红外光谱实验

本文中采用配有全散射 ATR 配件的 Bruker Tensor 27 红外光谱仪进行样品测试. 实验中采集沥青样品的不同波长处的峰面积,通过式(2)计算分子链结构指数  $^{[18]}$ ,即沥青中亚甲基(— $\mathrm{CH}_2$ )与甲基(— $\mathrm{CH}_3$ )官能团(图 2)上氢原子与碳原子之比 (methylene plus methyl hydrogen to carbon, MMHC). 每组试件有 4 个平行样品.

MMHC = 
$$\frac{H_{-CH_3} + H_{-CH_2}}{C_{-CH_3} + C_{-CH_2}} = \frac{\frac{A_{1380}}{5} + \frac{A_{2920}}{7}}{\frac{A_{1380}}{15} + \frac{A_{2920}}{14}}$$
. (2)

式中:  $A_{1380}$  为烷烃  $CH_3$  对称伸缩振动峰对应的面积,对应的波数为 1 365~1 385  $cm^{-1}$ ;  $A_{2920}$  为烷烃  $CH_2$ 反对称伸缩振动峰对应的面积,对应的波数为 2 916~2 936  $cm^{-1}$ ; 5,7,14,15 为官能团中基于单位原子重量的氢原子、碳原子数目更正常量.

#### 1.2.3 135 ℃ 布式旋转粘度

本文采用 Brookfield 旋转粘度仪测试沥青在 135 ℃下粘度. 实验方法按照《公路工程沥青及沥青 混合料实验规程》(JTJ 052—2000)规定. 试每组试件有两个平行样品.

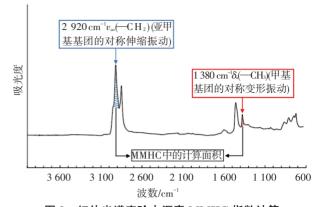


图 2 红外光谱实验中沥青 MMHC 指数计算

Fig.2 Calculation of MMHC index of asphalt in FTIR test

## 2 实验结果与分析

## 2.1 基于 BBS 实验的沥青粘附性自愈合性能评价

为研究不同基质沥青在多次破坏-愈合循环中的粘附性自愈合性能表现,以及不同改性剂对沥青粘附性自愈合性能的影响,利用 BBS 实验对沥青-石板试件进行拉拔-自愈合-再拉拔实验.其中,对于基质沥青试件,进行 6 次 F-H 循环,即 1 次初始拉拔实验与 5 次愈合-再拉拔实验;对于改性沥青试件,进行 3 次 F-H 循环.图 3~7 展示了不同基质沥青与改性沥青的粘附性自愈合性能评价.值得注意的是,本文中 BBS 实验结论仅限于沥青与玄武岩石料在有水条件下的粘附性自愈合性能,在其他养护条件下得到的沥青与其他石料的粘结自愈合性能结果可能会与本文中的评价结果有所出入.

#### 2.1.1 不同基质沥青的粘附性自愈合性能对比

不同来源、不同产地的基质沥青在沥青组分、生 产工艺上有所区别,表现出不同的粘附性自愈合性 能. 由图 3 可见,随着 F-H 循环次数的增加,所有基 质沥青的愈合强度及愈合率都呈现出先快后慢的衰 减趋势. 除塔河沥青表现出明显较低的自愈合能力 外,其他基质沥青的愈合率及变化情况相互之间较 为接近:从第1次到第6次F-H循环,愈合强度总 体上从平均约 0.90 MPa 衰减至约 0.40 MPa,愈合率 从最高的约40%衰减至约15%. 此外,值得注意的 是,在第1次F-H循环中,昆仑沥青的愈合强度与 愈合率均排在倒数第2,而在6次破坏-愈合循环 后,其愈合强度与愈合率均为其中基质沥青中最高. 由此可见,在对沥青粘附性自愈合性能进行评价时, 不仅要关注沥青-集料的初始愈合强度,同时也应 关注其在多次破坏-愈合循环后的稳定愈合强度与 愈合率,这能够反映沥青的长期路用性能.

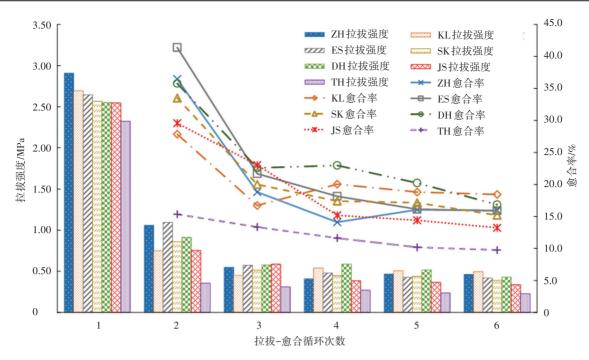


图 3 不同基质沥青粘附性自愈合性能对比

Fig.3 Comparison of adhesive self-healing properties of different base asphalt

2.1.2 线型/星型 SBS 改性沥青的粘附性自愈合性能根据图 4 可以看出,对于线型和星型 SBS 来说,随着掺量的增加,3 次 F-H 循环后沥青的愈合率均随之下降,且小于对应的基质沥青自愈率,说明 SBS 改性剂不利于沥青的粘附性自愈合性能.相比之下,虽然星型 SBS 改性沥青的愈合率要高于线型 SBS 改性沥青的愈合率,但这是由于星型 SBS 改性沥青的初始粘结强度较低所致,如果考虑愈合强度

的绝对值,线型与星型 SBS 改性沥青之间的自愈合能力差异不大.

SBS 类改性剂对沥青自愈合性能有不利影响的原因有两点:一是 SBS 改性剂本身并无粘附性能,其存在阻碍了沥青被石板表面的微小孔隙的吸附过程;二是 SBS 的加入提高了沥青的粘度与模量,减小了 SBS 改性沥青在愈合过程中的重新粘附面积,因此展现出较低的愈合率.

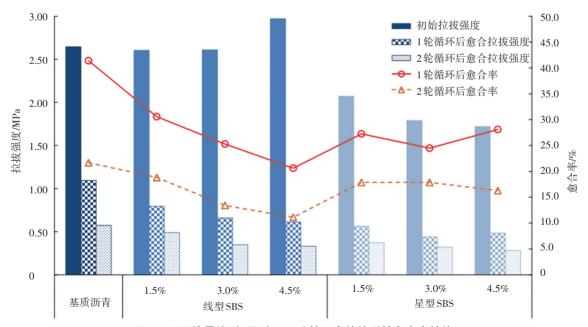


图 4 不同掺量线型/星型 SBS 改性沥青的粘附性自愈合性能

Fig.4 Adhesive self-healing properties of linear/radial SBS-modified asphalt with different dosages

2.1.3 TB 胶粉改性沥青的粘附性自愈合性能 从图 5 可见,随着 TB 胶粉沥青中胶粉的增多,

其愈合率逐渐下降. 对于 15%与 20%掺量(质量分数)下的 TB 胶粉沥青,在两次破坏-愈合循环后,其

愈合强度已经过低而无法利用拉拔仪进行测量.

TB 胶粉对沥青自愈合性能有不利影响的原因有两点:一是当胶粉掺量较高时,沥青的粘度较大,其流动形变能力受到影响,因此破坏,沥青无法依靠流动性完全重新浸润集料表面,导致愈合强度的下降;二是较高的胶粉掺量会使得 TB 胶粉沥青在制

备的过程中,产生较多炭黑,阻碍了沥青被集料表面 孔隙吸附的过程,造成了沥青反复粘附性能的下降.但是值得注意的是,5%和 10%掺量的 TB 胶粉沥青相较于基质沥青,愈合强度的衰减并不大,这是由于低掺量的 TB 胶粉沥青均匀性较好,其粘附性自愈合性能与基质沥青相近.

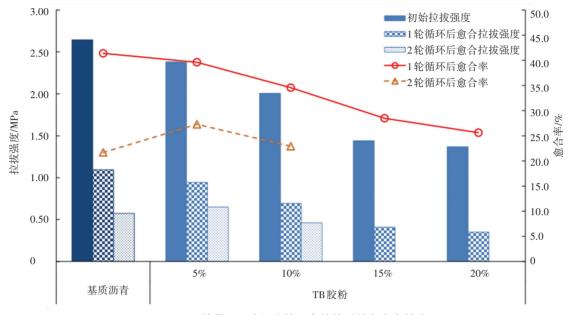


图 5 不同掺量 TB 胶粉改性沥青的粘附性自愈合性能

Fig.5 Adhesive self-healing properties of TB rubberized asphalt with different dosages

#### 2.1.4 岩沥青改性沥青的粘附性自愈合性能

由图 6 可见,岩沥青能够显著提高沥青的粘附强度,但却会导致沥青在破坏-愈合循环后的愈合率大幅下降,且愈合率随着岩沥青掺量的上升而逐渐下降.从愈合拉拔强度的角度来看,低掺量与高掺量的岩沥青改性沥青展现出了不同的自愈合强度表现:当岩沥青掺量较低的时候(≤12%),以 4%掺量为代表

的岩沥青改性沥青的愈合强度高于基质沥青.可以看出,虽然岩沥青改性沥青的愈合率较低,但这是由于其初始强度较高所造成的,其愈合强度依旧处于较高范围内;而当岩沥青掺量较高的时候(≥20%),沥青的再次粘附性能基本下降为零,仅仅在1次破坏-愈合的循环后,试件若受到轻微扰动,拔头与石板间的粘结便会失效,以至于无法测出愈合强度.

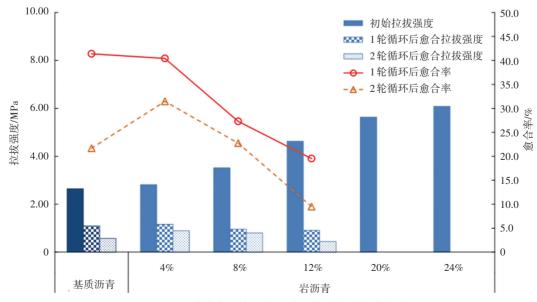


图 6 不同掺量岩沥青改性沥青的粘附性自愈合性能

Fig.6 Adhesive self-healing properties of gilsonite-modified asphalt with different dosages

不同掺量岩沥青对沥青自愈合强度带来的双面作用效果可以解释为:一方面岩沥青包含了氮、某些金属元素在内的各类杂原子,提高沥青的极性与浸润能力<sup>[19]</sup>,改善了沥青的粘附性能,但另一方面,岩沥青的加入也会提高沥青的粘度与模量,降低其针入度,大大降低了沥青在常温下的流动能力.较低掺量的岩沥青改性沥青虽然在愈合过程中流动性受阻,但一旦沥青与石板重新粘附,依旧能够形成较高的粘附强度.但在相同的愈合温度条件下(25℃),较高掺量的岩沥青改性沥青基本没有流动愈合的能力,因此表现出极低的愈合强度.

## 2.1.5 HDPE 改性沥青的粘附性自愈合性能

根据图 7.HDPE 改性沥青的自愈合性能随着

HDPE 的掺量先上升后下降,2%是其最佳掺量. 对比图 4~7,可以看出,2% HDPE 改性沥青在经历 3次破坏-愈合循环后的愈合强度甚至还要高于其他改性沥青经历 1次破坏-愈合循环后的愈合强度. 综合来看,HDPE 改性沥青在本研究所涉及的各类改性沥青中,粘附性自愈合性能表现最优. 这可能是由于 HDPE 改性剂的长线性结构使得沥青分子更容易在裂缝界面进行移动,提高了沥青的流动愈合能力与分子间作用力的再形成<sup>[20]</sup>. 然而,HDPE中所含过多的聚烯烃长链会使得沥青材料分子更容易堆积与结晶化,因此过高掺量的 HDPE 改性剂会使得沥青硬化并出现离析现象,进而降低沥青的自愈合能力.

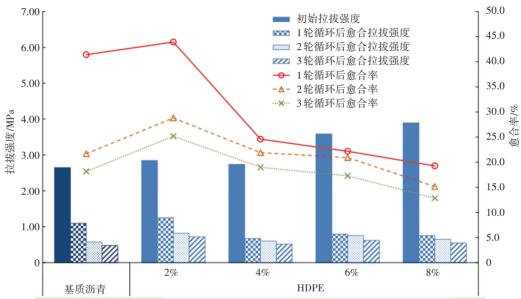


图 7 不同掺量 HDPE 改性沥青的粘附性自愈合性能

Fig.7 Adhesive self-healing properties of HDPE-modified asphalt with different dosages

#### 2.2 基于 FTIR 实验的沥青粘附性自愈合机理分析

为了从微观角度解释沥青的粘附性自愈合性能机理,本文利用 FTIR 实验对沥青的官能团进行分析. 选取了 BBS 实验中评价的 6 种 70#基质沥青与11 种不同改性沥青进行红外光谱测量,将 MMHC指数与 BBS 实验中的初次愈合率进行相关性分析,以验证沥青分子结构特征与粘附性自愈合表现的内在相关性. 实验数据结果见表 1.

## 2.2.1 基质沥青 MMHC 指数与粘附性自愈合性能的关系

MMHC 指数是沥青中亚甲基与甲基官能团上 氢原子与碳原子之比. 当沥青中甲基数量较多的时候,MMHC 指数接近于 3,而当沥青中亚甲基数量较 多的时候,MMHC 指数接近于 2. 因此,MMHC 指数 表明了沥青的分子链结构情况,其值越小,表明沥青 中分子链越长,且分支越少.根据表1中沥青红外

#### 表 1 不同沥青 BBS 与 FTIR 实验结果

Tab.1 BBS and FTIR test results for different asphalt binders

ES 2.335 1 41.4 SK 2.338 3 33.5 TH 2.370 0 15.4 DH 2.329 3 35.7 JS 2.340 0 29.6 KL 2.353 8 27.9  1.5%线型 SBS 改性沥青 2.333 9 30.6 3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6 4%岩沥青改性沥青 2.322 7 20.6 8%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 改性沥青 12%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 次性沥青 2.328 5 43.9 8%HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5%TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6				
基质沥青	沥青种类	沥青分类	MMHC 指数	愈合率/%
基质沥青 DH 2.370 0 15.4 DH 2.329 3 35.7 JS 2.340 0 29.6 KL 2.353 8 27.9    1.5%线型 SBS 改性沥青 2.333 9 30.6 3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6 4%岩沥青改性沥青 2.322 7 20.6 8%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 12%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 12%岩沥青改性沥青 2.328 5 43.9 8%HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5%TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6	基质沥青	ES	2.335 1	41.4
基质沥青 DH 2.329 3 35.7 JS 2.340 0 29.6 KL 2.353 8 27.9 1.5%线型 SBS 改性沥青 2.333 9 30.6 3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6 4%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 改性沥青 12%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 2% HDPE 改性沥青 2.328 5 43.9 8% HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5% TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10% TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		SK	2.338 3	33.5
DH 2.329 3 35.7  JS 2.340 0 29.6  KL 2.353 8 27.9  1.5%线型 SBS 改性沥青 2.333 9 30.6 3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6  4%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3  改性沥青 12%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3  2%HDPE 改性沥青 2.328 5 43.9 8%HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3  5%TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		TH	2.370 0	15.4
KL       2.353 8       27.9         1.5%线型 SBS 改性沥青       2.333 9       30.6         3.0%线型 SBS 改性沥青       2.330 0       25.3         4.5%线型 SBS 改性沥青       2.322 7       20.6         4%岩沥青改性沥青       2.328 9       40.4         8%岩沥青改性沥青       2.328 3       27.3         改性沥青       12%岩沥青改性沥青       2.327 1       19.5         2%HDPE 改性沥青       2.328 5       43.9         8%HDPE 改性沥青       2.338 7       19.3         5%TB 胶粉沥青       2.337 4       39.6         10%TB 胶粉沥青       2.350 9       34.6		DH	2.329 3	35.7
1.5%线型 SBS 改性沥青 2.333 9 30.6 3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6 4%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 25.6 2% HDPE 改性沥青 2.328 5 43.9 8% HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5% TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10% TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		JS	2.340 0	29.6
3.0%线型 SBS 改性沥青 2.330 0 25.3 4.5%线型 SBS 改性沥青 2.322 7 20.6 4%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 12%岩沥青改性沥青 2.327 1 19.5 2%HDPE 改性沥青 2.328 5 43.9 8%HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5%TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		KL	2.353 8	27.9
4.5%线型 SBS 改性沥青       2.322 7       20.6         4%岩沥青改性沥青       2.328 9       40.4         8%岩沥青改性沥青       2.328 3       27.3         改性沥青       12%岩沥青改性沥青       2.327 1       19.5         2%HDPE 改性沥青       2.328 5       43.9         8%HDPE 改性沥青       2.338 7       19.3         5%TB 胶粉沥青       2.337 4       39.6         10%TB 胶粉沥青       2.350 9       34.6	改性沥青	1.5%线型 SBS 改性沥青	2.333 9	30.6
4%岩沥青改性沥青 2.328 9 40.4 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 27.3 27.5 2% 2.328 5 43.9 8% HDPE 改性沥青 2.328 5 43.9 8% HDPE 改性沥青 2.338 7 19.3 5% TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10% TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		3.0%线型 SBS 改性沥青	2.330 0	25.3
改性沥青 8%岩沥青改性沥青 2.328 3 27.3 27.3 27.3 27.3 27.3 27.3 27.3 27		4.5%线型 SBS 改性沥青	2.322 7	20.6
改性沥青       12%岩沥青改性沥青       2.327 1       19.5         2%HDPE 改性沥青       2.328 5       43.9         8%HDPE 改性沥青       2.338 7       19.3         5%TB 胶粉沥青       2.337 4       39.6         10%TB 胶粉沥青       2.350 9       34.6		4%岩沥青改性沥青	2.328 9	40.4
2%HDPE 改性沥青       2.328 5       43.9         8%HDPE 改性沥青       2.338 7       19.3         5%TB 胶粉沥青       2.337 4       39.6         10%TB 胶粉沥青       2.350 9       34.6		8%岩沥青改性沥青	2.328 3	27.3
8%HDPE 改性沥青2.338 719.35%TB 胶粉沥青2.337 439.610%TB 胶粉沥青2.350 934.6		12%岩沥青改性沥青	2.327 1	19.5
5%TB 胶粉沥青 2.337 4 39.6 10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		2%HDPE 改性沥青	2.328 5	43.9
10%TB 胶粉沥青 2.350 9 34.6		8%HDPE 改性沥青	2.338 7	19.3
		5%TB 胶粉沥青	2.337 4	39.6
2007 TD		10%TB 胶粉沥青	2.350 9	34.6
20%10 版物 目 2.372 3 23.0		20%TB 胶粉沥青	2.372 3	25.6

光谱数据可得,所有基质沥青和改性沥青的 MMHC 指数仅仅在 2.327 1~2.372 3 之间有很小波动. 然而,这种微小的变化依然能够反映不同沥青自愈合性能之间的差异. 将基质沥青与改性沥青分别分析,6 种基质沥青的 MMHC 指数与粘附性自愈合性能的相关性分析如图 8 所示.

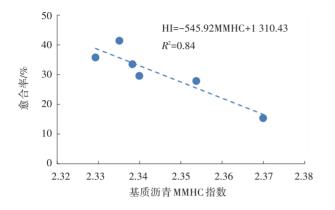


图 8 基质沥青的粘附性愈合率与 MMHC 指数相关性

Fig.8 Correlation between healing ratio and MMHC index of base asphalt binders

图 8 表明,基质沥青粘附性自愈合性能与MMHC 指数呈明显的线性负相关关系 ( $R^2 = 0.84$ ),即基质沥青的分子链结构指数越小,其粘附性自愈合性能越好.这是由于沥青分子结构平均链长越长,支链越少,沥青分子就更容易通过表层塌滑在破坏裂缝界面间移动,从而具有更好的自愈合能力.

此外,沥青中沥青质及其他高度结构化的芳香 组分中的空间结构也可以解释这种现象[18]. 沥青可 以分成四组分:沥青质、胶质、芳香分和饱和分.沥 青质是由 4~10 个稠环形成的平面芳香结构,外面 通过 π-π 键聚合了长度大小各异的脂肪族支 链[21],胶质则作为油性介质与沥青质形成两相过渡 区. 相比之下, 芳香分则以脂肪族的结构及形状包 围着沥青质,其结构主要以长链的形式为主,且基本 上没有苯环. 饱和分在化学式上可以划分为脂肪族 的碳水化合物,其中均分子质量只有 600 g/mol [22]. 由于沥青质中含有大量的芳香稠环,其空间结构大 都是以 π—π 键连结在一起的多层平面类石墨烯结 构[21]. 这些层面间的 π 键只有在两个平面相聚很 近的时候才能形成稳定的联结,当有类似于芳香分、 饱和分中的脂肪族支链小分子处于两个平面之间的 时候,就会阻碍层间联结. 因此,从理论上来说,沥 青的线型小分子越多,沥青的流动性就会越好,进而 表现出更好的粘附性自愈合能力[18].

- 2.2.2 改性沥青 MMHC 指数与粘附性自愈合性能 的关系
  - 11 种改性沥青的 MMHC 指数与粘附性自愈合

性能的相关性分析如图 9 所示. 图 9 表明,与基质沥 青不同,改性沥青的粘附性自愈合能力与其 MMHC 指数没有明显相关性. 这可能是因为改性剂本身就 有一个为常数的 MMHC 指数,在不考虑改性剂与沥 青分子发生化学反应的情况下,将改性剂加入到沥 青中会单向提高或降低沥青的 MMHC 指数. 这种改 变可能会掩盖改性剂与沥青之间因化学反应而导致 的沥青结构 MMHC 指数的变化, 以线型 SBS 为例, 本文中测得纯 SBS 改性剂的 MMHC 指数为2.024 2. 这是由于SBS即苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚 物,为长链型共聚物,所以其分子链结构指数接近于 2. 将 SBS 加入到基质沥青中会降低沥青的分子链 结构指数. 若参照基质沥青自愈合性能与 MMHC 指 数的相关性进行判定,MMHC 指数较低的沥青具有 较好的自愈合性能. 然而从实际的 BBS 实验结果来 看,SBS 的加入却会降低沥青的自愈合性能. 这表明 MMHC 指数并不能够用来预测改性沥青的粘附性 自愈合性能.

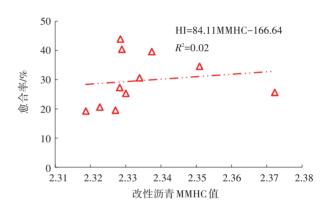


图 9 改性沥青的粘附性愈合率与 MMHC 指数相关性

Fig.9 Correlation between healing ratio and MMHC index of modified asphalt binders

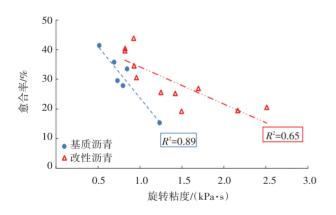
综上得出结论,MMHC指数能够用来区分不同产地来源的基质沥青的自愈合性能,但在评价改性沥青的粘附性自愈合能力时,由于改性剂自身的影响,采用 MMHC 指数作为评价指标将有可能导致结论不准确.

#### 2.3 沥青粘度与粘附性自愈合性能的相关性

上文中指出改性剂的掺入会影响 MMHC 指数预测沥青粘附性自愈合的有效性与准确性,因此对于改性沥青来说,寻找一个与自愈合性能相关的常用指标具有重要意义,为此,本文测量了 11 种改性沥青的 135 ℃布式旋转粘度,并将结果与 BBS 实验中的初始愈合率进行相关性分析,实验结果如图 10 所示.

由图 10 可知,基质沥青的 135  $^{\circ}$  C 布式旋转粘度 与其粘附性愈合率存在良好的相关性 ( $R^2 = 0.89$ ),

相比之下,改性沥青135 ℃粘度与其粘附性愈合率 的相关性稍差  $(R^2 = 0.65)$  , 但明显高于 MMHC 指 数与其粘附性愈合率之间的相关性. 总体来看, 沥 青的粘附性自愈合性能与其粘度呈负相关性. 这是 由于,在沥青-集料粘结体中,存在结构沥青与自由 沥青[23],粘度较大的沥青中自由沥青所占比例相对 较小,表明在温度相同的条件下,则其流动性越 弱[24], 而沥青-集料界面发生粘附性破坏后, 沥青 会从集料表面产生剥离,此时沥青的流动性能是决 定其能否再次与集料重新粘合的重要影响因素,由 图 10 得到的相关性结果验证了沥青粘度对沥青自 愈合性能的影响作用,也解释了为何大多数改性剂 非但没有提升反而会降低沥青的自愈合能力的原 因:通常情况下,经过改性后的沥青的粘度会增加, 因此降低了沥青的流动愈合性能,阻碍了沥青自愈 合的进程. 相较于 MMHC 指数,135 ℃ 布式旋转粘 度更适合作为预测改性沥青及基质沥青粘附性自愈 合能力的常规评价指标.



#### 图 10 基质沥青与改性沥青的 135 ℃旋转粘度与愈合率的 相关性

Fig.10 Correlation between Brookfield rotary viscosity (135 ℃) and healing ratio of base asphalt and modified asphalt

## 3 结 论

基于 BBS 实验与红外光谱实验,对不同产地的基质沥青与多种改性沥青的粘附性自愈合性能开展了评价对比与机理分析,并将沥青常用指标布氏粘度与沥青的自愈合性能进行了相关性分析,得出以下结论:

1)即使是同一标号的基质沥青,由于来源、产地及组分的不同,表现出不同的粘附性自愈合性能.由于多次破坏-自愈合循环后,不同沥青展现出的多次自愈合能力存在较大差异,一些初始自愈合性能表现不佳的沥青却可能有较高且稳定的多次愈合率,因此不仅要关注沥青与集料的初始愈合强度,同时也应关注其在多次破坏-愈合循环后的稳定愈合

强度.

- 2)不同改性剂对沥青粘附性自愈合性能基本都有不利影响,具体作用效果随掺量的不同而不同.除了低掺量下的 HDPE 与岩沥青能提高基质沥青的粘附性自愈合能力,线型、星型 SBS 及 TB 胶粉均不利于基质沥青的粘附性自愈合性能. 其中,星型 SBS 改性沥青的粘附性愈合率高于线型 SBS 改性沥青,但二者在自愈合强度方面的差异并不大. 较高掺量下的 TB 胶粉沥青与岩沥青改性沥青在常温下已基本没有了反复粘附的自愈合性能. 总体来看,2%HDPE 改性沥青与本文研究的各类沥青相比,粘附性自愈合性能最佳. 无论是什么类型的改性剂,增加改性剂掺量均不利于沥青的自愈合性能.
- 3)基质沥青粘附性自愈合的能力与分子链结构指数(MMHC)成明显的负相关关系,可以用MMHC指标对基质沥青的自愈合性能进行预测,但对于改性沥青,由于改性剂的掺入会对沥青的分子链结构造成不规律变化,因此 MMHC 指数并不适于评价改性沥青的粘附性自愈合性能.
- 4)135 ℃布式旋转粘度与基质沥青及改性沥青的愈合率具有良好的线性相关关系,沥青的粘度越大,沥青的粘附性自愈合能力就越低,相较于MMHC指数,135 ℃布式旋转粘度更适合作为预测改性沥青及基质沥青粘附性自愈合能力的常规评价指标.

## 参考文献

- [1] ADAMS R D. Handbook of adhesion technology [M]. Heidelberg: Springer, 2011;2
- [2] AYAR P, MORENO-NAVARRO F, RUBIO-GÁMEZ M C. The healing capability of asphalt pavements: a state of the art review[J]. Journal of Cleaner Production, 2016, 113:28
- [3] CHENG D X, LITTLE D, LYTTON R, et al. Surface energy measurement of asphalt and its application to predicting fatigue and healing in asphalt mixtures[J]. Transportation Research Record, 2002, 1810 (1):44
- [4] LYTTON R L, CHEN C W, LITTLE D N. Fundamental properties of asphalts and modified asphalts task K-microdamage healing in asphalt and asphalt concrete [R]. FHWA Final Report, Vol. 3, DT-FH61-929C-00170. Washington DC: FHWA, U.S. Department of Transportation, 1998
- [5] QIU J, VEN M V D, WU S, et al. Evaluating self healing capability of bituminous mastics[J]. Experimental Mechanics, 2012, 52(8): 1163
- [6] 孙大权, 林添坂. 改性剂对沥青自愈合能力的影响[J]. 公路, 2015(4):224

  SUN Daquan, LIN Tianban. The effect of modifiers on the asphalt self-healing property[J]. Highway, 2015(4):224
- [7] GONG M, YANG J, WEI J, et al. Characterization of adhesion and healing at the interface between asphalt binders and aggregate using atomic force microscopy [J]. Transportation Research Record,

- 2015, 2506(1): 100
- [8] LITTLE D N, BHASIN A. Exploring mechanism of healing in asphalt mixtures and quantifying its impact[J]. Springer, 2007, 100: 205
- [9] QIU J, VEN M V D, MOLENAAR A. Crack-healing investigation in bituminous materials [J]. Journal of Materials in Civil Engineering, 2012, 25(7): 864
- [ 10] LEE H J, DANIEL J S, KIM Y R. Continuum damage mechanics-based fatigue model of asphalt concrete [ J ]. Journal of Materials in Civil Engineering, 2000, 12(2): 105
- [11] Standard method of test for determining asphalt binder strength by means of the binder bond strength (BBS) test; AASHTO TP-91 [S]. Washington DC; American Association of State Highway and Transportation Officials, 2011
- [ 12]ZHOU L, HUANG W. Evaluation of adhesion properties of modified asphalt binders with use of binder bond strength test[J]. Transportation Research Record, 2017, 2632;92
- [ 13 ] COPELAND A, YOUTCHEFF J, SHENOY A. Moisture sensitivity of modified asphalt binders; factors influencing bond strength [ J ]. Transportation Research Record, 2007, 1998;20
- [14] GREYLING A, MILLER T, BAHIA H, et al. Development of a test method for determining emulsion bond strength using the bitumen bond strength (BBS) test-A South African perspective [C]// International Sprayed Sealing Conference. Melbourne: Australian Road Research Board, 2011:1
- [15] CHATURABONG P, BAHIA H U, et al. Effect of moisture on the cohesion of asphalt mastics and bonding with surface of aggregates [J]. Road Materials and Pavement Design, 2018, 19(3/4):741
- [16] 周璐, 黄卫东, 吕泉. 干湿条件下沥青自愈合性能评价与机理分析[J]. 建筑材料学报, 2021, 24(1):5
  - ZHOU Lu, HUANG Weidong, LÜ Quan. Evaluation and mechanism analysis of asphalt self-healing property under dry and wet conditions

[J]. Journal of Building Materials, 2021,24(1):5

als, 2016, 19(3):522

- [17] 黄卫东, 吕泉, 柴冲冲. TB+SBS 复合改性沥青的性能[J]. 建筑材料学报, 2016,19(3):522
  HUANG Weidong, LÜ Quan, CHAI Chongchong. Performance of TB+SBS composite modified asphalt[J]. Journal of Building Materi-
- [18] KIM Y R, LITTLE D N, BENSON F C. Chemical and mechanical evaluation on healing mechanism of asphalt concrete [J]. Journal of the Association of Asphalt Paving Technologists, 1990, 59: 240
- [ 19] KÖK B V, YILMAZ M, GULER M. Evaluation of high temperature performance of SBS+Gilsonite modified binder[J]. Fuel, 2011, 90 (10): 3093
- [20] SHEN S, SUTHARSAN T. Quantification of cohesive healing of asphalt binder and its impact factors based on dissipated energy analysis [J]. Road Materials and Pavement Design, 2011, 12(3); 525
- [21] LESUEUR D. The colloidal structure of bitumen: consequences on the rheology and on the mechanisms of bitumen modification [J]. Advances in Colloid & Interface Science, 2009, 145(1):42
- [22] POLACCO G, FILIPPI S, MERUSI F, et al. A review of the fundamentals of polymer-modified asphalts: asphalt/polymer interactions and principles of compatibility [J]. Advances in Colloid and Interface Science, 2015, 224:72
- [23]封晨辉. 沥青材料的粘度与粘附性研究[D]. 西安: 长安大学, 2003
  - FENG Chenhui. Research on viscosity and adhesion properties of asphalt materials [D]. Xi'an: Chang'an University, 2003
- [24]任玉娜. 聚合物改性沥青粘聚性与粘附性研究[D]. 北京:中国石油大学(北京), 2011
  - REN Yuna. Research on cohesion and adhesion properties of polymer modified asphalt [D]. Beijing: China University of Petroleum (Beijing), 2011

(编辑 魏希柱)