

文章编号:1007-9629(2021)06-1341-07

基于表面能的氧化石墨烯改性沥青黏附性

赵艳¹, 李波^{1,2}, 曹贵^{1,2}, 杨娟³, 李志伟¹

(1. 兰州交通大学 道桥工程灾害防治技术国家地方联合工程实验室, 甘肃 兰州 730070;

2. 甘肃省公路交通建设集团有限公司 公路建设与养护技术、材料及装备交通运输行业

研发中心, 甘肃 兰州 730030; 3. 中国科学院兰州化学物理研究所 清洁能源化学

与材料实验室, 甘肃 兰州 730000)

摘要: 为了研究氧化石墨烯(GO)对沥青黏附性能的影响,在基质沥青和SBS改性沥青中添加0.5%GO粉末和GO分散液来制备GO改性沥青并对其进行接触角试验.基于表面自由能理论,计算GO改性沥青的黏附功、黏聚功和剥落功等参数来评价其黏附性能,同时通过浸水马歇尔和冻融劈裂试验对GO改性沥青混合料的水稳定性进行验证.结果表明:GO提高了沥青和集料体系的表面能,增加了表面能中色散成分的比例;GO分散液比GO粉末在沥青中的分散程度更好;GO分散液对基质沥青和SBS改性沥青的黏聚功、黏附功及剥落功有明显的提升;SBS-2#GO改性沥青混合料的残留稳定性和冻融劈裂强度比最大,表明GO增强了沥青混合料的抗水损害性能.

关键词: 表面自由能;氧化石墨烯改性沥青;抗水损害性能;黏附特性

中图分类号: U414

文献标志码: A

doi: 10.3969/j.issn.1007-9629.2021.06.029

Adhesion Characteristics of Graphene Oxide Modified Asphalt Based on Surface Free Energy

ZHAO Yan¹, LI Bo^{1,2}, CAO Gui^{1,2}, YANG Juan³, LI Zhiwei¹

(1. National and Provincial Joint Engineering Laboratory of Road & Bridge Disaster Prevention and Control, Lanzhou

Jiaotong University, Lanzhou 730070, China; 2. Research and Development Center of Transport Industry of

Technologies, Materials and Equipment of Highway Construction and Maintenance, Gansu Province Highway Traffic

Construction Group Co., Ltd., Lanzhou 730030, China; 3. Laboratory of Clean Energy Chemistry and Materials,

Lanzhou Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

Abstract: To investigate the effect of graphene oxide (GO) on adhesion characteristics of modified asphalt, 0.5% GO powder and GO dispersion were added to base asphalt and SBS modified asphalt, and contact angel test was performed on GO modified asphalt. Based on the surface free energy theory, cohesion work and spalling work were calculated to evaluate the adhesion performance of graphene oxide modified asphalt. The water stability of the mixture was verified by immersion Marshall and freeze-thaw splitting tests. The results show that GO can improve the surface energy of asphalt and aggregate system, and increases the proportion of dispersive components in surface energy. The dispersion effect of GO dispersion is better than that of GO powder. GO could significantly improve the cohesion work, adhesion work and peeling work of both base asphalt and SBS modified asphalt. GO dispersion has the best effect on improving the residual stability and freeze-thaw splitting

收稿日期:2020-07-31; 修订日期:2020-09-21

基金项目:中国科学院科技服务网络计划区域重点项目(KFJ-STS-QYZD-149);国家自然科学基金资助项目(51668038,51868042);甘肃省杰出青年基金项目(1606RJDA318);甘肃省高等学校产业支撑引导项目(2020C-13)

第一作者:赵艳(1994—),女,甘肃武威人,兰州交通大学硕士生.E-mail: 906812332@qq.com

通讯作者:李波(1981—),男,宁夏中卫人,兰州交通大学教授,博士生导师,博士.E-mail: libo@maillzjtu.cn

strength ratio of SBS modified asphalt, which further confirms the strengthening effect of GO on the water damage resistance of the mixture.

Key words: surface free energy; graphene oxide modified asphalt; water damage resistance; adhesive property

近年纳米材料的发展引起了各个行业的广泛关注,并且越来越多的纳米材料被应用在路面材料领域,如采用纳米黏土、纳米SiO₂和纳米ZnO^[1-3]来提升沥青及混合料性能.氧化石墨烯(GO)作为石墨烯的衍生物^[4],性能更好,与聚合物的融合更优,表面携带丰富的含氧官能团且化学连接很活跃^[5],引起了各行业的高度关注.Habibet等^[6]、Abdelrahman等^[7]和Amirkhanian等^[8]发现加入少量GO可以增加沥青的黏度和劲度模量,提高沥青的高温抗车辙性能和低温抗开裂性能.Zhu等^[9]研究了添加GO对沥青的老化影响,发现GO可以阻碍氧气分子的穿过,减缓沥青的老化速度.但是GO对沥青水敏感性的影响作用机理没有得到深入的研究.

目前,大多数研究采用水煮法或者挂绳法来评价沥青的黏附性能,试验过程受人为因素的影响较大,不能准确地表征沥青的黏附性能.表面自由能(SFE)是原子或分子水平在宏观力学上的体现,是目前可以定量评价沥青黏附性能的有效方法.李波等^[10]研究发现抗剥落剂提高了沥青对集料的黏附,在水分子进入时,降低了沥青的脱落程度,使沥青混合料的水稳定性得到了一定的提升.Bhasin等^[11]、李海波等^[12]研究发现,加入改性剂对沥青抗水损害性

能有较好的改善效果.

本文将GO掺加到SK90[#]基质沥青和SBS改性沥青中,在表面能理论的基础上通过接触角测试得到GO-沥青体系的表面能相关参数.同时进行水稳定性评价,分析该体系的黏附特性,结合光学显微镜观测不同状态GO在沥青中的分散情况,进一步揭示GO对沥青水敏感性的作用机理.

1 原材料

1.1 沥青

沥青选取SK90[#]基质沥青和SBS改性沥青,其主要技术指标如表1所示.

表1 沥青的主要技术指标
Table 1 Main technical indexes of asphalt

Index	SK90 [#] asphalt	SBS modified asphalt
Softening point/°C	45.4	79.5
Penetration (25 °C)/(0.1 mm)	53.4	64.8
Ductility(5 °C)/cm	41.1	43.7

1.2 石墨烯

选用中国科学院兰州化学物理研究所提供的石墨烯,其主要技术指标如表2所示.

表2 石墨烯的主要技术指标
Table 2 Main technical indexes of graphene

Index	Detection typical value	Detection method
Bulk density/(g·mL ⁻¹)	0—0.10	GB/T 1479.1—2011
Specific surface area/(m ² ·g ⁻¹)	6—10	GB/T 19587
Average layer thickness/nm	2.5	HRTEM observation, statistical average

1.3 氧化石墨烯及改性沥青的制备

GO制备:首先选用干净整洁的石墨烯,按照一定比例称取高锰酸钾和硫酸,先将硫酸加入盛有石墨烯的烧杯中,再按“多次少量”原则缓缓加入高锰酸钾并做好降温措施,加完高锰酸钾之后将烧杯放在35 °C油浴搅拌机中连续搅拌3 h,搅拌结束后用胶头滴管逐滴加入盐酸,直至不出现气泡为止;氧化结束后将制备的GO在离心机中进行重复清洗,最后通过处理得到粉末状GO和GO分散液,编号分别为1[#]GO和2[#]GO.

GO改性基质沥青制备:将基质沥青加热到135 °C后加入1[#]GO和2[#]GO,然后发育45 min得到

GO改性基质沥青,编号分别为SK90[#]-1[#]GO和SK90[#]-2[#]GO.

SBS-GO改性沥青制备:首先将基质沥青加热到160 °C时加入SBS,在高速剪切机中以转速4 500 r/min高速剪切20 min,然后加入1[#]GO和2[#]GO发育2 h后得到SBS-GO改性沥青,编号分别为SBS-1[#]GO和SBS-2[#]GO.通过光学显微镜(500倍)对粉末GO和GO分散液在沥青中的分散性进行观察,结果如图1所示.由图1可见:1[#]GO以片状分布在沥青中,有可能发生了团聚现象;2[#]GO分散液在沥青中的分散更为均匀,这也说明GO分散液比粉末GO与沥青的融合效果好,与沥青的兼容性相对更好.通过分散

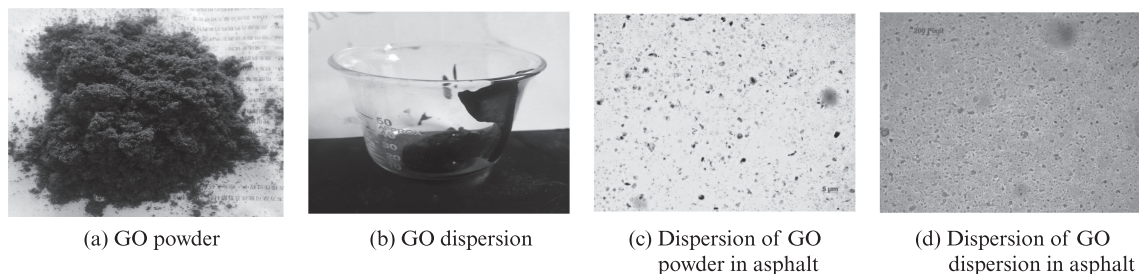


图1 氧化石墨烯在沥青中的分散

Fig. 1 Dispersion of GO in asphalt

液的方法将GO加入到沥青中,较大程度地提高了GO在沥青中的分散,达到分散程度高且分散均匀的效果。

2 试验方法

2.1 沥青的接触角试验

称取沥青(1.5±0.5)g置于载玻片上,然后将载玻片放在已调整水平以及一定高度的加热架上,控制加热炉温度约163℃并持续加热沥青至流动状态,使得载玻片上的沥青形成光滑的水平面。待其冷却后,在干燥容器中水平放置8h,获得接触角试样。接触角测试设备为德国Kruss公司生产的DSA100型光学接触角/表面张力仪,接触角为0°~180°,分辨率为±0.1°;温度为室温~400℃。在测试前1h将仪器温度保持在25℃,尽可能避免测试温度对测试结果带来的影响。另外,在进行测试时,每种测试液与沥青进行5次平行试验,结果取其平均值。

2.2 相关性分析

通过将测试液蒸馏水、甲酰胺、甘油3种液体滴定在沥青表面,获得接触角。沥青是一种非极性疏水性材料,而集料是亲水性材料,这就要求测试液能较好的在沥青表面扩散分布且不与沥青发生物理化学反应,测试结果如表3所示。表中 γ_L 、 γ_L^d 、 γ_L^p 、 γ_L^+ 、 γ_L^- 分别为测试液的表面能、极性分量、色散分量、路易斯酸、路易斯碱。

表3 测试液的表面能参数

Table 3 Surface free energy parameters of test liquid

Liquid type	γ_L	γ_L^d	γ_L^p	γ_L^+	γ_L^-
Distilled water	72.8	21.8	51.0	25.50	25.5
Glycerol	64.0	34.0	30.0	3.92	57.4
Formamide	58.0	38.0	19.0	2.28	39.6

为保证表面能参数计算结果的准确性,需要对所测接触角试验的结果进行检验。Kwok等^[13]提出,

对一种固体材料而言,不同测试液体的表面能 γ_L 与 $\gamma_L \cos \theta$ (其中 θ 为沥青与测试液体的接触角)应存在线性关系。因此,根据3种测试液与沥青接触角的测试值 γ_L 与 $\gamma_L \cos \theta$ 进行相关性系数拟合,通过拟合指数 R^2 大小与1接近程度来检验测试值是否有效,结果如表4所示。由表4可见, γ_L 与 $\gamma_L \cos \theta$ 之间的相关系数都在0.947 9以上,说明 γ_L 与 $\gamma_L \cos \theta$ 具有良好的相关性,验证了GO改性沥青与3种液体接触角测试值的有效性。

表4 沥青 γ_L 与 $\gamma_L \cos \theta$ 的相关系数Table 4 Linear relationship between γ_L and $\gamma_L \cos \theta$ of asphalt

Asphalt type	R^2	Asphalt type	R^2
SK90 [#]	0.926 6	SBS modified	0.947 3
SK90 [#] -1 [#] GO	0.939 1	SBS-1 [#] GO modified	0.924 1
SK90 [#] -2 [#] GO	0.967 9	SBS-2 [#] GO modified	0.958 2

3 表面自由能及黏附理论

表面自由能(SFE)定义为一种材料在保持温度、应力、组分不变时产生单位面积的新界面所需要做的功。一种材料的表面能(γ)主要由极性分量(γ^p)和色散分量(γ^d)2部分组成,计算公式如式(1)所示。式中 γ^+ 为路易斯酸, γ^- 为路易斯碱。

$$\gamma = \gamma^d + \gamma^p = \gamma^d + 2\sqrt{\gamma^+ \gamma^-} \quad (1)$$

依据杨氏方程,表面能与接触角之间满足式(2)。

$$\gamma_a \cos \theta = \gamma_s - \gamma_{as} \quad (2)$$

沥青黏附功是指液体与固体之间的附着能力,沥青-集料的黏附功(W_{as})通过公式(3)计算得到。

$$W_{as} = \gamma_a(1 + \cos \theta) = 2\sqrt{\gamma_a^d \gamma_s^d} + 2\sqrt{\gamma_a^+ \gamma_s^-} + 2\sqrt{\gamma_a^- \gamma_s^+} \quad (3)$$

式中: γ_a 、 γ_s 分别为沥青、集料表面能,mJ/m²。

沥青混合料黏聚功的计算如式(4)所示。

$$W_{cohesion} = 2\gamma_a \quad (4)$$

沥青混合料剥落功的计算如式(5)所示。

$$W_{asw} = 2\sqrt{\gamma_a^d \gamma_w^d} + 2\sqrt{\gamma_s^d \gamma_w^d} + 2\sqrt{\gamma_w^+} (\sqrt{\gamma_a^-} + \sqrt{\gamma_s^-}) + 2\sqrt{\gamma_w^-} (\sqrt{\gamma_a^+} + \sqrt{\gamma_s^+}) - 2\gamma_w^d - 2\sqrt{\gamma_a^d \gamma_s^d} - 2\sqrt{\gamma_a^+ \gamma_s^-} - 2\sqrt{\gamma_a^- \gamma_s^+} - 4\sqrt{\gamma_w^- \gamma_w^+} \quad (5)$$

按式(6)可计算得到沥青-集料体系的配伍率(CR).

$$CR = \left| \frac{W_{as}}{W_{asw}} \right| \quad (6)$$

4 结果及分析

4.1 表面能及其分量

在沥青混合物中,表面能是一个非常重要的水敏感性评价指标.沥青-集料的黏附作用是通过沥青对集料表面逐渐浸润形成的,这是一个沥青-集料体系表面能降低的过程^[14],而固体或者液体的表面拉伸是色散成分和极性成分受牛顿力与非牛顿力的作

用^[15].沥青的表面能及其极性分量、色散分量,结果图2所示.由图2可见:(1)加入GO对沥青的表面自由能有所提升,基质沥青加入1#GO和2#GO之后表面自由能分别提高了23%和42%,SBS改性沥青加入1#GO和2#GO后表面自由能提高了19.5%和76%.分析原因,可能是在SBS改性沥青中添加GO,分散在沥青中的SBS分子结构与GO层状结构形成物理连接,由于沥青质之间电子移动、分子间作用力和氢键化学键的连接,共同作用下增强了体系的总体极性^[15].(2)基质沥青的极性分量最大,GO增加了沥青对集料的浸润性.色散分量的增加也表明GO的添加对沥青的黏附是有提升效果的,GO可以降低接触

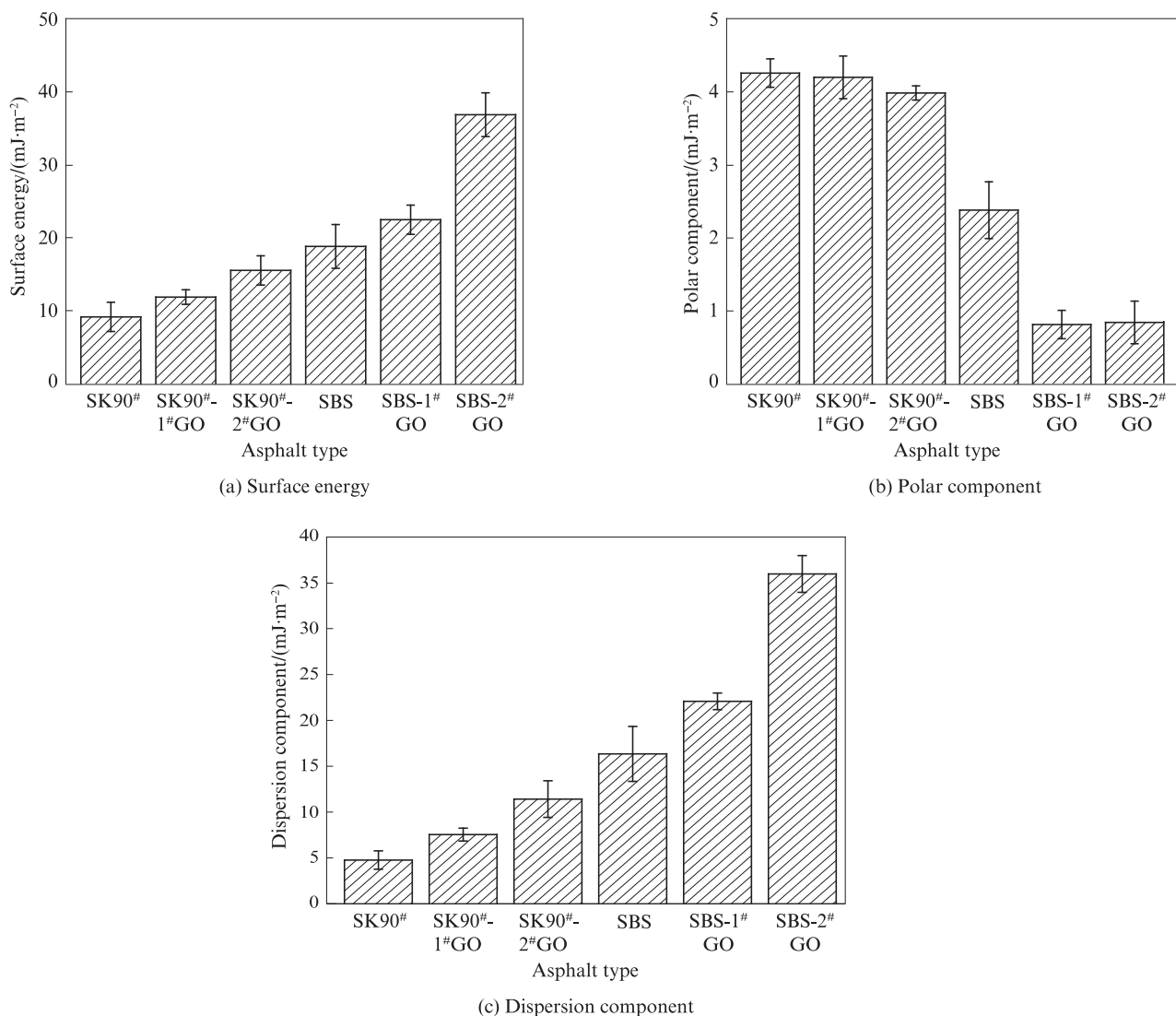


图2 不同沥青的表面能及其分量
Fig. 2 Surface energy and its components of different asphalts

角,提高沥青对集料的浸润^[15],改善沥青的水敏感性。(3)表面能中色散成分所占的比例很大,色散分量越大,表明物理黏附力越大,沥青-集料体系也趋于相对稳定的状态,混合物的水稳定性得到了提升。此外,路易斯酸和路易斯碱构成了极性分量,极性分量的增加,意味着越容易吸收水分子,沥青越容易从集料表面脱落^[16]。

4.2 黏聚功、黏附功及剥落功

沥青与集料的黏附性能主要通过黏聚功、黏附功及剥落功来进行定量评价。黏聚功表示沥青的抗开裂能力,黏聚功越大,说明沥青的黏聚特性越好,抗开裂能力越强。图3为GO对沥青黏聚功的影响。Hamed等^[17]的研究认为,黏聚功与表面自由能值之间存在2倍关系。因此就变化趋势而言,黏聚功与表面自由能是有相同趋势的。由图3可见:添加2[#]GO对基质沥青和SBS沥青黏聚功的提升效果优于1[#]GO;与未添加GO的沥青相比,添加GO沥青的黏聚功分别提升了21.0%和43.6%;SBS-2[#]GO改性沥青的抗黏聚破坏能力最强,从黏聚角度看SBS-2[#]GO改性沥青表现出相对更好的自聚力,有较好的抗开裂性能,而未添加GO的基质沥青产生疲劳开裂的可能较大。原因可能是2[#]GO较好的分散程度增加了沥青的自聚力,这主要是因为GO与沥青成分形成氢键连接,使沥青组分之间的连接更加稳定。

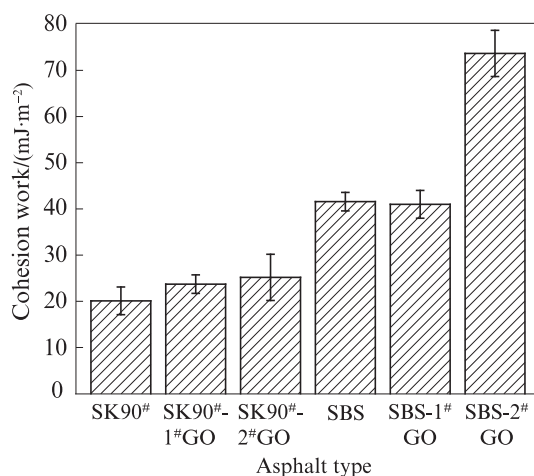


图3 不同沥青的黏聚功

Fig. 3 Cohesion work of different asphalts

对沥青-集料来说,黏附功是在无水条件下从沥青与集料由2个表面体系结合成为沥青-集料1个界面体系所释放出的能量。黏附功越大,表明沥青-集料体系所释放的能量也越大,沥青和集料这2个体系的兼容性更好,整个体系更加稳定,可以从另一个角

度说明沥青混合料的整体稳定度主要影响其强度、稳定性和耐久性。图4为不同沥青的黏附功。由图4可见:(1)沥青-集料黏附功的排序为:SBS-2[#]GO>SBS-1[#]GO>SBS>SK90[#]-2[#]GO>SK90[#]-1[#]GO>SK90[#]。SBS-2[#]GO改性沥青对黏附功的影响最大,SK90[#]改性沥青的黏附功最低。(2)SK90[#]-1[#]GO和SK90[#]-2[#]GO改性沥青的黏附功相比SK90[#]分别提高了23.6%和27.3%。(3)相比SBS改性沥青,SBS-2[#]GO改性沥青的黏附功提高了35%,SBS-1[#]GO改性沥青的黏附功提升较小。在无水条件下,SBS-2[#]GO改性沥青与集料表现出优异的黏附性能。(4)GO对SBS改性沥青-集料体系的影响较大,原因在于GO表面携带丰富的官能团,提供了与沥青更多的接触位点,层状结构插入沥青中形成稳定的结构,GO分散液的分散性比粉末GO更好,因此改性沥青的黏附功提升明显。

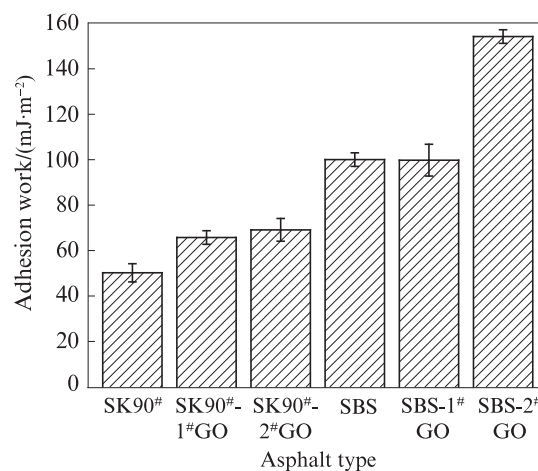


图4 不同沥青的黏附功

Fig. 4 Adhesion work of different asphalts

在有水条件下,水分子通过裂纹或者车辆动荷载作用进入到沥青混合料内部,其中一部分水分子进入沥青-集料界面,出现水-沥青界面体系和水-集料界面体系^[18]。剥落功越大,说明沥青与集料的粘结越脆弱,水分子越容易替代沥青膜,混合料可能出现因水稳定性差而产生的病害。图5为不同沥青的剥落功。由图5可见:水分子的浸入大幅度降低了沥青-集料的黏附性能;GO对基质沥青和SBS改性沥青的剥落功均有一定程度的降低;SK90[#]-1[#]GO和SK90[#]-2[#]GO改性沥青的抗剥落功相比SK90[#]改性沥青分别降低了7.2%和15.6%;相比SBS改性沥青,SBS-1[#]GO和SBS-2[#]GO改性沥青的抗剥落功分别降低了11.8%和26.4%。这表明GO降低了沥青的水敏感性,提高了其抗水损害性能。

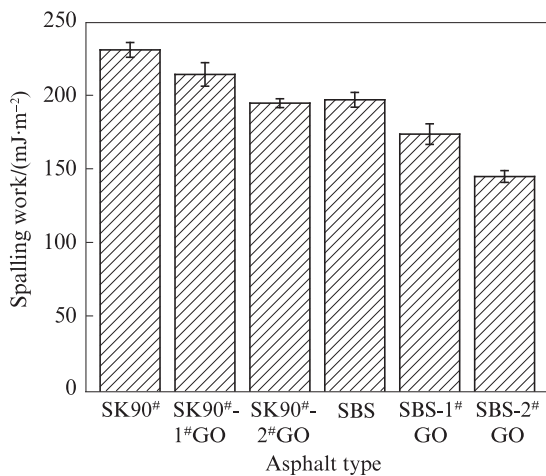


图5 不同沥青的剥落功

Fig. 5 Spalling work of different asphalts

4.3 配伍率

沥青与集料的配伍率表征的是沥青与集料这2个体系通过浸润相互融合、相互适应的过程.配伍率越高,说明2个体系的兼容性越好,沥青混合料的抗水损害性能越好.图6为不同沥青的配伍率.由图6可见:沥青的配伍率排序为:SBS-2[#]GO>SBS-1[#]GO>SBS>SK90[#]-2[#]GO>SK90[#]-1[#]GO>SK90[#];SK90[#]改性沥青的配伍率最低是0.289 1,SK90[#]-2[#]GO改性沥青的配伍率提高了23%;SBS-1[#]GO改性沥青的配伍率是0.691 3,SBS-2[#]GO改性沥青的配伍率最高达到1.148 2,相对于SBS改性沥青分别提高了22%和41%.GO在一定程度上提高了混合料的抗水损害性.

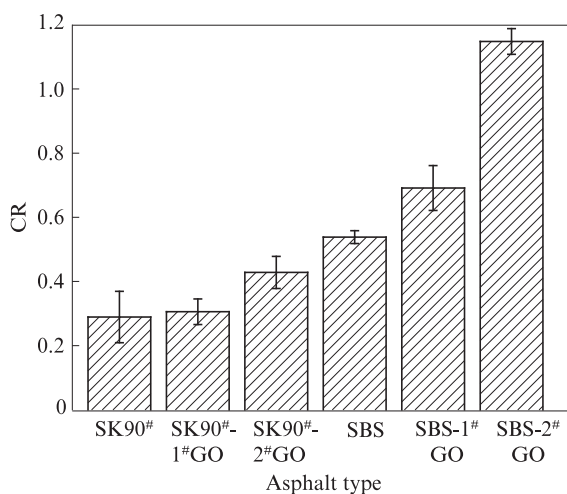


图6 不同沥青的配伍率

Fig. 6 CR of different asphalts

4.4 氧化石墨烯改性沥青混合料水稳定性验证

沥青混合料的水稳定性试验结果如图7所示.

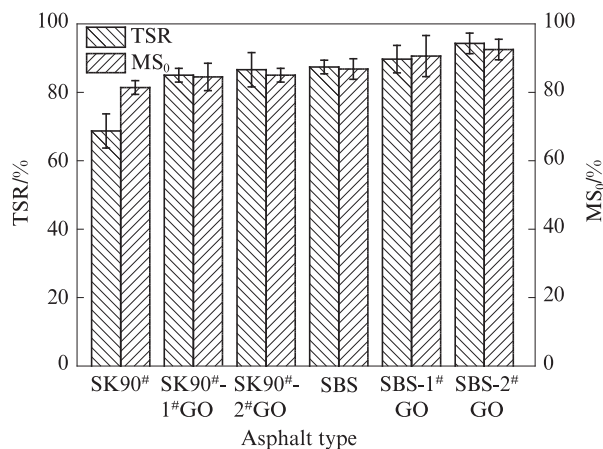


图7 沥青混合料的残留稳定性和冻融劈裂强度比

Fig. 7 MS₀ and TSR of asphalt mixture

由图7可见:添加GO后,所有沥青AC-13型混合料的残留稳定性(MS₀)和冻融劈裂强度比(TSR)均有一定程度提高;GO改性基质沥青混合料的水稳定性最差,SBS-2[#]GO沥青混合料的抗水损害性能较好;相对SBS改性沥青混合料,SBS-2[#]GO改性沥青混合料的残留稳定性提高了18.6%,冻融劈裂强度比提高了21.4%.这表明GO能够有效阻止水分子进入混合料的油石界面,提高了沥青与集料之间的界面强度,降低沥青从集料表面剥离的概率,从而再次验证了GO对沥青混合料水稳定性的增强作用.

5 结论

(1)GO可以提高沥青-集料体系的表面能,增加了表面能中色散成分的比例.GO分散液的分散性比GO粉末好.

(2)GO对基质沥青和SBS改性沥青的黏聚功、黏附功及剥落功有明显的提升.相对其他5种沥青,SBS-2[#]GO改性沥青的黏聚功、黏附功及剥落功均较高,黏附特性较好,提高了沥青的抗水损害性能.

(3)添加GO增加了沥青与集料2个体系相互适应和相互融合的能力,配伍率提升,使得沥青-集料体系连接更为稳定,表现出较好的水稳定性.

(4)SBS-2[#]GO改性沥青混合料的残留稳定性和冻融劈裂强度比最大,其AC-13型混合料相比其他5种改性沥青混合料的水稳定性更好.

参考文献:

- [1] JIAO Y, ZHANG Y, FU L, et al. Influence of crumb rubber and pack super on performances of SBS modified porous asphalt mixtures [J]. Road Materials and Pavement Design, 2019, 20:196-216.

- [2] SHAFABAKHSH G H, JAFARI ANI O. Experimental investigation of effect of nano $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ modified bitumen on the rutting and fatigue performance of asphalt mixtures containing steel slag aggregates[J]. *Construction and Building Materials*, 2015, 98:692-702.
- [3] DREYER D R, PARK S, BIELAWSKI C W, et al. The chemistry of graphene oxide [J]. *Chemical Society Review*, 2010, 39 (1):228-240.
- [4] ZHOU G, ZHONG J, ZHANG H, et al. Influence of releasing graphene oxide into a clayey sand: Physical and mechanical properties[J]. *RSC Advances*, 2017(7):18060-18067.
- [5] MCALLISTER M J, LI J L, ADAMSON D H, et al. Single sheet functionalized graphene by oxidation and thermal expansion of graphite[J]. *Chemistry of Materials*, 2007, 19:4396-4404.
- [6] HABIB N Z, AU N C, ZOOROB S E, et al. Use of graphene oxide as a bitumen modifier: An innovative process optimization study [J]. *Advanced Materials Research*, 2015, 1105: 365-369.
- [7] ABDELRAHMAN M, KATTI D R, GHAVIBAZOO A, et al. Engineering physical properties of asphalt binders through nano clay-asphalt interactions[J]. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 2014, 26 (12):04014099.
- [8] AMIRKHANIAN S, LI Y, WU S, et al. Investigation of the graphene oxide and asphalt interaction and its effect on asphalt pavement performance[J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 165:572-584.
- [9] ZHU J, ZHANG K, LIU K, et al. Performance of hot and warm mix asphalt mixtures enhanced by nano-sized graphene oxide [J]. *Construction and Building Materials*, 2019, 217: 273-282.
- [10] 李波,张智豪,刘祥,等. 基于表面理论的温拌SBS改性沥青-集料体系的黏附性[J]. *材料导报*, 2017, 31(4):115-120.
LI Bo, ZHANG Zhihao, LIU Xiang, et al. Adhesion of based on the surface theory of SBS modified asphalt-aggregate [J]. *Material Review*, 2017, 31(4):115-120. (in Chinese)
- [11] BHASIN A, BOM AVARAM R, BOM AVARAM M L, et al. Use of molecule dynamics to investigate self-healing mechanisms in asphalt binders[J]. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 2011, 23(4):485-492.
- [12] 李海莲,李波,王起才,等. 基于表面能理论的老化温拌SBS改性沥青结合料的黏附性[J]. *材料导报*, 2017, 31(16): 129-133, 149.
LI Hailian, LI Bo, WANG Qicai, et al. Adhesion of based on the surface theory of aging temperature SBS modified asphalt [J]. *Material Review*, 2017, 31(16): 129-133, 149. (in Chinese)
- [13] KWOK D Y, NEUMANN A W. Contact angle measurement and contact angle interpretation [J]. *Advances in Colloid and Interface Science*, 1999, 81(3):167-249.
- [14] HAMED G H, NEJAD F M. Use of aggregate nanocoating to decrease moisture damage of hot mix asphalt[J]. *Road Materials and Pavement Design*, 2016, 17:32-51.
- [15] AZARHOOSH A, NEJAD F M, KHODAI A. Evaluation of the effect of nano- TiO_2 on the adhesion between aggregate and asphalt binder in hot mix asphalt[J]. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 2018, 22:946-961.
- [16] 魏建明. 沥青、集料的表面自由能及水分在沥青中的扩散研究[D]. 青岛:中国石油大学, 2008.
WEI Jianming. Study on surface free energy of asphalt and aggregate and water diffusion in asphalt[D]. Qingdao: China University of Petroleum, 2008. (in Chinese)
- [17] HAMED G H, NEJAD F M, OVEISI K, et al. Estimating the moisture damage of asphalt mixture modified with nano zinc oxide[J]. *Materials and Structures*, 2016, 49:1165-1174.
- [18] 陈燕娟,高建明,陈华鑫. 基于表面能理论的沥青集料体系的黏附特性研究[J]. *东南大学学报(自然科学版)*, 2014, 44 (1):183-187.
CHEN Yanjuan, GAO Jianming, CHEN Huaxin. Adhesion characteristics of asphalt aggregate system based on surface energy [J]. *Journal of Southeast University (Natural Science)*, 2014, 44(1):183-187. (in Chinese)