

聚醚胺接枝氧化石墨烯对沥青性能的影响

颜可珍, 师峻逸, 王敏[†], 史开心, 柳金洪, 洪哲

(湖南大学 土木工程学院, 湖南长沙 410082)

摘要:为了改善氧化石墨烯(GO)在沥青基体中的分散性,提升GO及其衍生物改性沥青的性能,合成了聚醚胺接枝氧化石墨烯(PEA-GO)并通过傅里叶红外光谱(FTIR)试验和X射线衍射光电子能谱(XPS)对聚醚胺接枝前后的GO进行化学结构表征,验证了PEA-GO的成功合成.对不同掺量GO及PEA-GO改性沥青的性能规律进行了分析,结果表明:相较于GO,PEA-GO对沥青常规性能的改善作用更加明显.在相同掺量下,PEA-GO改性沥青的针入度、延度、软化点均高于GO改性沥青,而PEA-GO改性沥青的黏度低于GO改性沥青.在相同掺量下,PEA-GO改性沥青的复数剪切模量(G^*)、车辙因子($G^*/\sin\delta$)均高于GO改性沥青,当PEA-GO的掺量为沥青质量的0.05%时,改性沥青的 G^* 最高,且PEA-GO改性沥青的相位角(δ)均低于GO改性沥青,表明PEA-GO对沥青的高温抗变形能力、弹性恢复能力、抗车辙能力的改善优于GO.

关键词:氧化石墨烯;化学接枝;聚醚胺;改性沥青;分散性

中图分类号:U414

文献标志码:A

Effect of Polyether Amine Grafted Graphene Oxide on Properties of Asphalt

YAN Kezhen, SHI Junyi, WANG Min[†], SHI Kaixin, LIU Jinhong, HONG Zhe

(College of Civil Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China)

Abstract: In order to improve the dispersity of graphene oxide (GO) in asphalt matrix and the performance of GO-modified asphalt, polyether amine grafted GO (PEA-GO) was synthesized, and the chemical structure of PEA-GO was characterized by Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), which verified the successful synthetization of PEA-GO. The properties of GO and PEA-GO-modified asphalt with different dosages were analyzed. The results indicate that PEA-GO shows a more obvious improvement effect on the conventional performance of asphalt than GO. At the same dosage, the penetration, ductility, and softening point of PEA-GO-modified asphalt are higher than those of GO-modified asphalt, while the viscosity of PEA-GO-modified asphalt is lower than that of GO-modified asphalt. At the same dosage, G^* and $G^*/\sin\delta$ of PEA-GO-modified asphalt are higher than those of GO-modified asphalt. When the dosage of PEA-GO is 0.05wt.%, G^* of modified asphalt is the highest, and δ of PEA-GO-modified asphalt is lower than that of GO-modified asphalt. The results show that PEA-GO is superior to GO in improving the high-temperature deformation resistance, elastic recovery ability, and anti-rutting ability of asphalt.

Key words: graphene oxide; chemical graft; polyether amine; modified asphalt; dispersity

* 收稿日期:2021-11-15

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51778224), National Natural Science Foundation of China(51778224)

作者简介:颜可珍(1975—),男,湖南桃江人,湖南大学教授

[†] 通信联系人, E-mail: wangmin19@hnu.edu.cn

沥青作为目前主要的路面材料,具有良好的路用性能和行车舒适性,但高低温性能差、易老化等缺点使其难以满足现代交通的要求^[1]. 近年来,将纳米材料用于提升沥青的各项性能是改性沥青领域的研究热点. 纳米材料具有显著的纳米尺寸效应,即当材料的尺寸与光波波长、德布罗意波长以及超导态的相干长度或透射深度等物理特征尺寸相当或更小时,将在声、光、电、磁、热、力学等方面呈现出特殊的理化性质^[2]. 氧化石墨烯(GO)是一种典型的二维片层状纳米材料,其作为石墨烯的衍生物具有优异的机械性能,其片层结构中包含的大量含氧基团(羟基、羧基、环氧基)极易与含氨基、羧基、异氰酸酯基等基团的化合物发生反应,具有良好的结构可设计性^[3-6]. GO改性沥青可提高沥青的高温稳定性、低温抗裂性和抗老化性能^[7-10]. 然而,GO具有片层比表面积大的特点,片层间存在强的范德华吸引力使其在沥青中难以分散,无法发挥优异的理化性质,阻碍了其改性沥青的高性能化^[11-12].

GO在沥青基体中分散性的改善方法主要有机械法和化学法. 机械法主要包括搅拌、超声等,尽管可将GO暂时地分散均匀,但在停止外力作用后GO会自发地在沥青中通过片层间的吸引力和热运动而重新聚集堆叠^[13]. 实现GO在沥青中良好分散的必要条件是整个体系达到热力学稳定状态,即沥青基体向GO传递的分散力必须大于GO片层间强的范德华力. 因此,降低GO片层间的范德华力有利于提高其在沥青中的分散性. 依据空间位阻稳定理论,通过化学法将具有空间位阻效应的结构引入到GO片层上可有效削弱片层间的范德华力,实现GO在沥青中的良好分散^[14].

本文将聚醚胺分子接枝到GO片层结构上,合成了聚醚胺接枝石墨烯(PEA-GO),通过FTIR及XPS验证了PEA-GO的成功合成. 对比了不同掺量GO及PEA-GO改性沥青的各项性能.

1 试验材料

1.1 沥青

本文使用的沥青为70#基质沥青,其物理性能如表1所示.

表1 基质沥青的物理性能
Tab. 1 Physical properties of base asphalt

技术指标	测试结果	技术要求	试验方法
针入度(25 °C)/(0.1 mm)	77.60	60~80	T0604—2019
软化点/°C	47.50	>45	T0606—2019
延度(10 °C)/cm	>150	>100	T0605—2019
黏度(135 °C)/(Pa·s)	0.46	—	T0625—2019

1.2 化学试剂

GO以纯石墨为原料,采用改性 Hummers'法制备. 聚醚胺(M2070和M1000,98%)购自苏州龙科实业有限公司,其中M2070的相对分子质量为2 000,M1000的相对分子质量为1 000. N,N-二甲基甲酰胺(DMF)、4-二甲氨基吡啶(DMAP)和N,N'-二环己基二亚胺(DCC)购自阿拉丁化学有限公司,均为分析纯.

2 试样制备及性能测试

2.1 PEA-GO的制备

图1为PEA-GO的制备原理图. 通过GO片层上的羧基、环氧基与聚醚胺分子链末端的胺基发生反应,以DMAP为引发剂、DCC为脱水剂可将聚醚胺化学接枝到GO上. 具体步骤包括:第一步将GO、聚醚胺和DMAP分散在DMF中超声5 min制得混合物,将其在冰浴中冷却;第二步将DCC溶解于DMF,逐滴加入混合物中;第三步移除冰浴,在35 °C下搅拌反应12 h,采用旋转蒸发器除去DMF,将产物在水中透析7 d移除多余的未反应单体即得PEA-GO. 通过测定

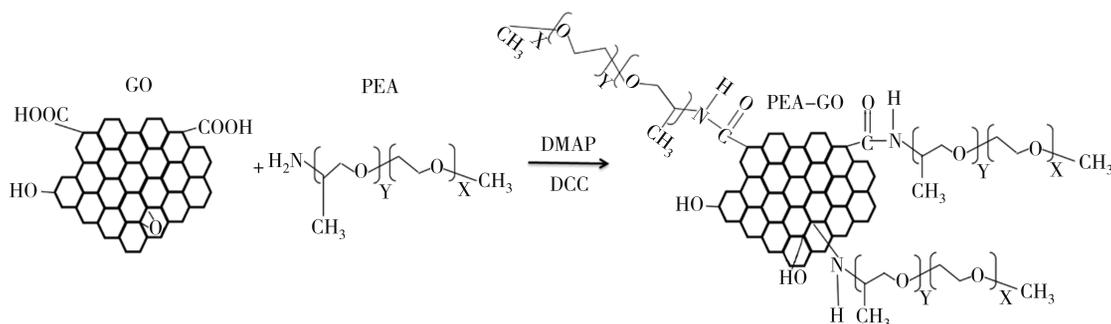


图1 PEA-GO的制备原理图

Fig.1 Schematic diagram of PEA-GO preparation

未反应聚醚胺含量,得出转化率为 63.2%.

2.2 PEA-GO 改性沥青的制备

首先将沥青加热至流动状态,在 135 °C 保持 1 h 后分别将 0.01%、0.02%、0.03%、0.04%、0.05% 质量分数的 GO 或 PEA-GO 掺入沥青中,150 °C 搅拌 20 min 后再剪切搅拌 1 h,剪切结束后,135 °C 静置 1.5 h,使改性沥青体系稳定.

2.3 性能测试

按照《公路工程沥青及沥青混合料试验规程》(JTG E20—2019)规定的方法对改性沥青进行性能指标测试.

3 试验结果

3.1 GO/PEA-GO 的结构表征

采用傅里叶变换红外光谱 (FTIR) 及 X 射线衍射光电子能谱 (XPS) 对聚醚胺接枝前后的 GO 进行化学结构表征. 图 2 所示为 GO、透析处理后 PEA-GO 的 FTIR 谱图. 由图 2 可知,GO 中存在强的含氧基团吸收峰,如 C=O、C—O 和 O—H. PEA-GO 在 1 640

cm^{-1} 和 1 580 cm^{-1} 存在明显的酰胺基 ($\begin{matrix} \text{O} & \text{H} \\ \parallel & | \\ \text{—C—} & \text{N—} \end{matrix}$)

双吸收峰,表明聚醚胺成功接枝到 GO 上^[15-16]. 此外,PEA-GO 的 FTIR 谱图上 N—H、CH₂—CH₂ 和 C—N 特征吸收峰的出现也证明了 PEA-GO 的成功制备. 图 3 (a) 和 (b) 所示分别为 GO 和 PEA-GO 的 XPS 谱图中 C 1s 峰的拟合谱图. 由图 3(a) 可知,GO 的 C 1s 峰包括 4 个部分,分别为 O—C=O、C=O、C—O 和 C—C. 然而,如图 3(b) 所示,PEA-GO 的 C 1s 可拟合为 5 部分,不仅包含 O—C=O、C=O、C—O 和 C—C,还出现了新的 C—N 峰 285.0 eV^[17-18],这也证明了 PEA-GO 的成功制备.

3.2 GO/PEA-GO 改性沥青的常规性能

图 4 所示为 PEA-GO 与 GO 改性沥青的针入度试验结果. 由图 4 可知,PEA-GO 与 GO 改性沥青的针入度均随掺量的增加呈下降趋势. 当 PEA-GO 与 GO 的掺量为沥青质量的 0.05% 时,改性沥青的针入度较基质沥青 (0%) 分别下降了 8.9% 及 10.7%,表明 PEA-GO 与 GO 使沥青稠度增加、变硬,这是由于 PEA-GO 与 GO 特有的片层结构会与沥青分子链发

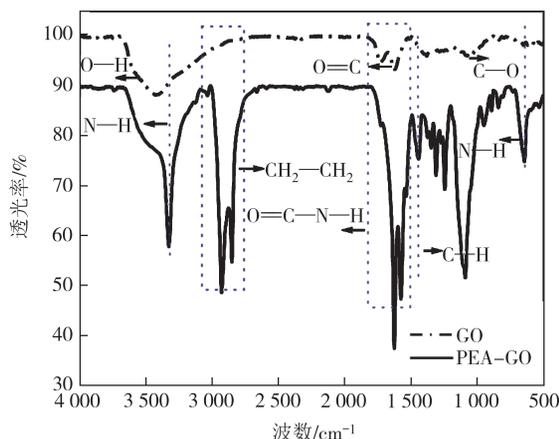
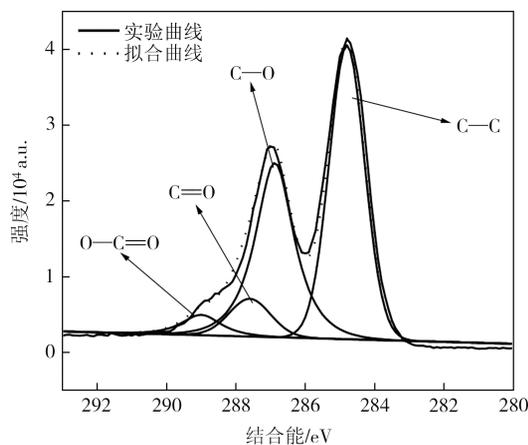
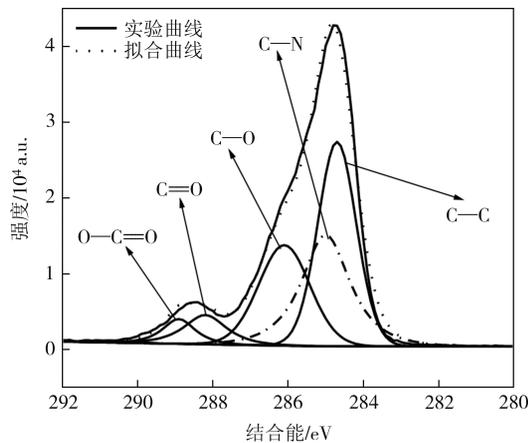


图 2 GO 及 PEA-GO 的红外光谱图

Fig.2 FTIR spectra of GO and PEA-GO



(a) GO



(b) PEA-GO

图 3 GO 及 PEA-GO 的 XPS 谱图及分峰拟合结果

Fig.3 XPS spectra and peak fitting results of GO and PEA-GO

生互穿交织作用,片层间强的范德华力会阻碍沥青分子链的自由运动,在宏观性能上表现为沥青变稠变硬. 并且在相同掺量下,GO 改性沥青针入度均低于 PEA-GO,这是由于聚醚胺的接枝减小了片层间的范德华力,使片层结构对沥青分子链运动的阻碍

作用减弱,进而削弱了其对沥青针入度的降低程度。

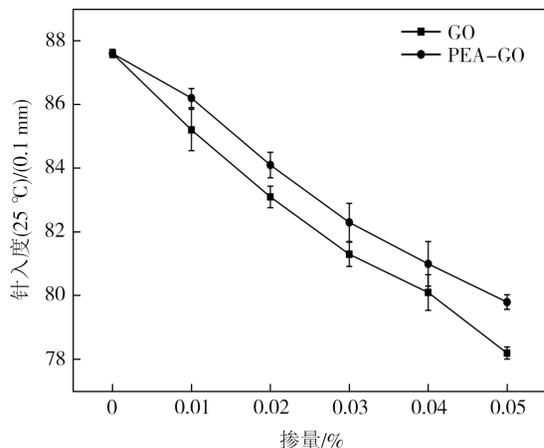


图4 GO及PEA-GO改性沥青的针入度

Fig.4 Penetration of GO and PEA-GO modified asphalt

图5所示为PEA-GO与GO改性沥青的软化点试验结果。由图5可知,改性沥青的软化点随着PEA-GO与GO掺量的增加表现为持续增长的趋势。当PEA-GO与GO的掺量为沥青质量的0.05%时,改性沥青的软化点较基质沥青(0%)分别上升了6.6%及5.3%,这表明PEA-GO与GO的加入使得沥青的黏度增加,对沥青高温性能有所改善。这是由于PEA-GO与GO本身具有良好的高温稳定性及导热性,片层结构分散在沥青基体中可形成连续的导热通道,有利于热量的散出。并且在相同掺量下,GO改性沥青的软化点均低于PEA-GO,这是由于聚醚胺接枝改善了片层结构在沥青中的分散性,使沥青基体中导热通道增加,进而提升了沥青的导热性及高温稳定性。

图6所示为PEA-GO与GO改性沥青的延度试

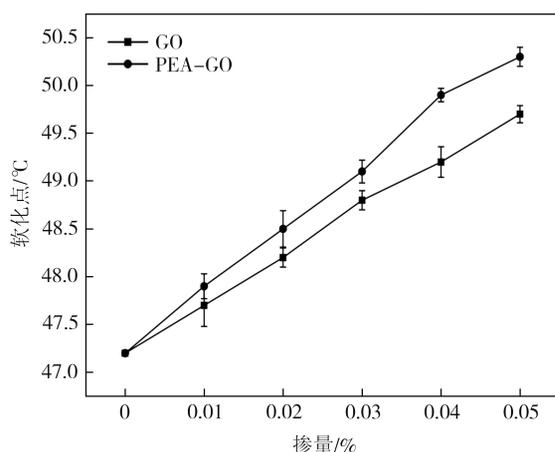


图5 GO及PEA-GO改性沥青的软化点

Fig.5 Softening point of GO and PEA-GO modified asphalt

验结果。由图6可知,改性沥青的延度随着PEA-GO与GO掺量的增加而下降,表明其改性沥青的低温抗裂性能降低。这是因为PEA-GO与GO的碳片层为无机物,与沥青之间的相互作用力弱。此外PEA-GO与GO在沥青中团聚会使沥青中出现缺陷,导致延度急剧下降,并且在相同掺量下,GO改性沥青的延度低于PEA-GO,当PEA-GO与GO的掺量为沥青质量的0.05%时,其改性沥青的延度分别为56.3 cm及37.1 cm。这是因为PEA-GO片层上的聚醚胺链段产生的空间位阻效应改善了碳片层结构在沥青基体中的分散性,并且聚醚胺的有机分子链改善了无机碳片层与有机沥青基体的相容性,进而减少了改性沥青延度的降低。

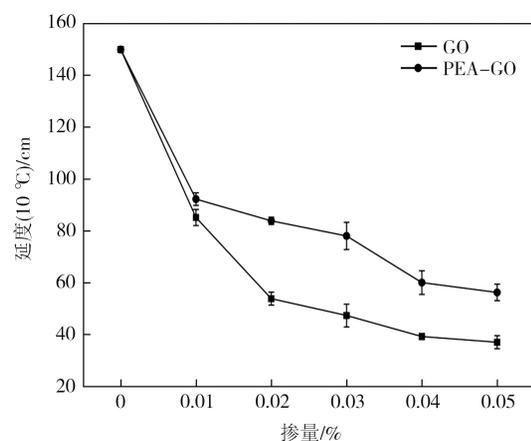


图6 GO及PEA-GO改性沥青的延度

Fig.6 Ductility of GO and PEA-GO modified asphalt

3.3 GO/PEA-GO改性沥青的黏度

采用旋转黏度计测试PEA-GO与GO改性沥青在135°C下的黏度,如图7所示。改性沥青的黏度随着PEA-GO与GO掺量的增加而增大,并且在所有掺量下,PEA-GO改性沥青的黏度都小于GO改性沥青。当PEA-GO与GO的掺量为沥青质量的0.05%时,改性沥青的黏度分别上升为1 199 mPa·s及1 233 mPa·s,这是因为GO片层间存在强的范德华力吸引力,导致改性沥青体系的黏聚力增加,而聚醚胺接枝后PEA-GO纳米片层之间的范德华力减弱,故PEA-GO改性沥青的黏度低于GO改性沥青。

3.4 GO/PEA-GO改性沥青流变性能

沥青的高温流变特性通过动态剪切流变仪(DSR)试验进行研究。试件的直径为25 mm,厚度为1 mm,温度扫描范围30~90°C。改性沥青在不同温度

条件下的复数模量 G^* 、相位角 δ 、车辙因子 $G^*/\sin\delta$ 如图 8~图 10 所示。

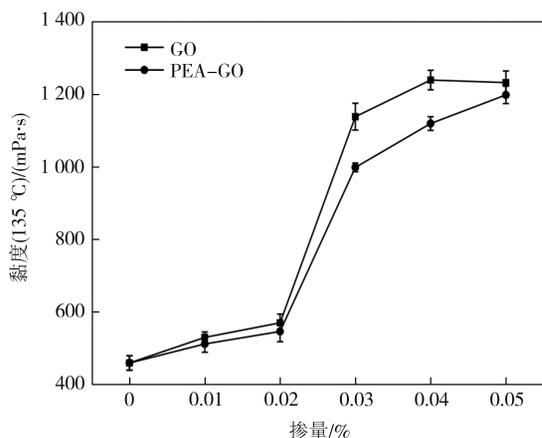


图 7 GO 与 PEA-GO 改性沥青的黏度

Fig.7 Viscosity of GO and PEA-GO modified asphalt

复数剪切模量 G^* 表示沥青在处于重复剪切变形状态下抵抗其所受变形总阻力的能力。若 G^* 越大, 沥青重复剪切变形状态下抵抗所受变形总阻力的能力越强。相位角 δ 反映了沥青中黏性与弹性成分比例关系。在黏弹性材料产生变形过程中, 其应变的发生会相应地滞后于应力。若 δ 值越大, 则表明其应变滞后情况更为明显, 即沥青所含黏性成分更多, 而沥青的变形恢复能力就越差。车辙因子 ($G^*/\sin\delta$) 反映了沥青材料的抗永久变形能力, 其值越大表示沥青在荷载作用下弹性成分越大, 可恢复部分越大, 越容易抵抗永久变形, 高温性能越好^[19]。

图 8 为不同掺量的 GO 与 PEA-GO 改性沥青的 G^* 。由图 8 可知, 在所有掺量下, GO 与 PEA-GO 改性沥青的 G^* 均随温度的升高而降低, 说明温度上升导致了改性沥青的弹性能力降低。掺入 GO 或 PEA-GO 后改性沥青 G^* 均高于基质沥青, 表明由于 GO 及 PEA-GO 的加入, 沥青的高温抗变形能力得到了改善。此外, PEA-GO 改性沥青的 G^* 均高于 GO, 当 PEA-GO 的掺量为沥青质量的 0.05% 时仍具有较好的分散性, 均匀分布在沥青中的片层结构有效阻止了沥青在高温下的流动, 高掺量 PEA-GO 改性沥青在相对高温下的抗变形能力更强, 说明 PEA-GO 在沥青基体中分布的越多, 阻止沥青胶体流动的能力越强。

图 9 所示为不同掺量的 GO 与 PEA-GO 改性沥青的相位角 δ 。如图 9 所示, 在所有的掺量下, 改性

沥青的 δ 随着温度的升高呈现上升的趋势, 即随着温度升高, 改性沥青中黏性成分增多, 应力应变滞留效应提高, 抗高温变形能力减弱。此外, GO 及 PEA-GO 的掺入使改性沥青的 δ 降低, 表明 GO 及 PEA-GO 的加入能够有效地降低沥青中黏性成分。当 PEA-GO 掺量为沥青质量的 0.05% 时, 改性沥青的 δ 达到最低, 且 PEA-GO 对沥青黏性成分的降低效果优于 GO。

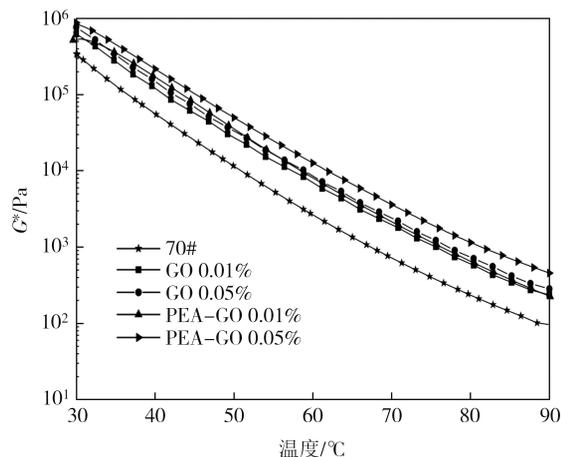


图 8 GO 与 PEA-GO 改性沥青的复数模量

Fig.8 G^* of GO and PEA-GO modified asphalt

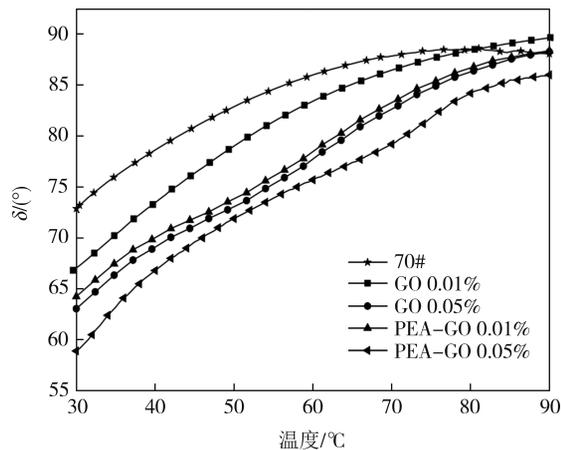


图 9 GO 与 PEA-GO 改性沥青的相位角

Fig.9 δ of GO and PEA-GO modified asphalt

图 10 所示为 GO 与 PEA-GO 改性沥青的车辙因子。由图 10 可知, 在所有掺量下, 改性沥青的 $G^*/\sin\delta$ 随着温度上升逐渐减小, 说明在高温状态下, 改性沥青的抗变形能力均逐渐变弱。同时, 掺入 GO 或 PEA-GO 后, 改性沥青的 $G^*/\sin\delta$ 大于基质沥青, 且 PEA-GO 掺量为沥青质量的 0.05% 时, 改性沥青的 $G^*/\sin\delta$ 达到最大。表明 GO 及 PEA-GO 的加入对沥青的抗车辙能力有一定改善, 掺量越大, 其抗车辙能力越强。并且, PEA-GO 对沥青抗车辙性能的改善大于 GO。

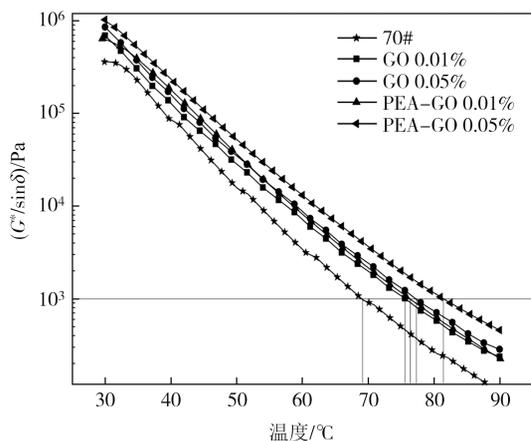


图10 GO与PEA-GO改性沥青的车辙因子

Fig.10 $G^*/\sin\delta$ of GO and PEA-GO modified asphalt

$G^*/\sin\delta$ 为1 kPa时的温度为未老化沥青高温等级临界时的失效温度,通常用于确定沥青的高温性能等级^[20]。如图10所示,GO及PEA-GO改性沥青的失效温度都高于基质沥青,且都大于70 °C。并且在相同掺量下,PEA-GO改性沥青的失效温度均大于GO,表明经过聚醚胺接枝后,PEA-GO对沥青高温性能的改善优于GO。

4 结论

1)以GO及聚醚胺为原材料,通过化学接枝的方法合成PEA-GO,PEA-GO的FTIR谱图中 $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ \text{C}-\text{N}-\text{H} \end{array}$ 特征峰及XPS谱图中新的C—N峰的出现,证明了PEA-GO的成功制备。

2)在相同掺量下,PEA-GO改性沥青的针入度、延度和软化点均高于GO改性沥青,而PEA-GO改性沥青的黏度低于GO改性沥青,相较于GO,PEA-GO对沥青常规性能的改善作用更加明显。

3)在相同的掺量下,PEA-GO改性沥青的 G^* 、 $G^*/\sin\delta$ 均高于GO改性沥青,当PEA-GO的掺量为沥青质量的0.05%时,改性沥青的 G^* 最高,且PEA-GO改性沥青的 δ 均低于GO改性沥青,PEA-GO对沥青的高温抗变形能力、弹性恢复能力、抗车辙能力的改善优于GO。

4)相较于GO,PEA-GO片层上的聚醚胺作为有机物,改善了无机碳片层与沥青基体的相容性。聚醚胺产生的空间位阻作用使PEA-GO在沥青中具有良好的分散性,均匀分布在沥青中的片层结构有效阻

止了沥青在高温下的流动。PEA-GO掺量越高,越多片层结构分布在沥青基体中,阻止沥青胶体流动的能力越强。

参考文献

- [1] 于华洋,马涛,王大为,等. 中国路面工程学术研究综述·2020[J]. 中国公路学报,2020,33(10):1-66.
YU H Y, MA T, WANG D W, et al. Review on China's pavement engineering research·2020[J]. China Journal of Highway and Transport,2020,33(10):1-66. (in Chinese)
- [2] 金大中,钱国平,白献萍. 纳米改性沥青材料研究进展[J]. 化工新型材料,2019,47(12):32-36.
JIN D Z, QIAN G P, BAI X P. Progress in nano modified asphalt material[J]. New Chemical Materials, 2019,47(12):32-36. (in Chinese)
- [3] MARCANO D C, KOSYNKIN D V, BERLIN J M, et al. Improved synthesis of graphene oxide [J]. ACS Nano, 2010, 4 (8) : 4806-4814.
- [4] YANG H F, LI F H, SHAN C S, et al. Covalent functionalization of chemically converted graphene sheets via silane and its reinforcement [J]. Journal of Materials Chemistry, 2009, 19 (26) : 4632.
- [5] GUAN L Z, WAN Y J, GONG L X, et al. Toward effective and tunable interphases in graphene oxide/epoxy composites by grafting different chain lengths of polyetheramine onto graphene oxide [J]. Journal of Materials Chemistry A, 2014, 2 (36) : 15058-15069.
- [6] WANG M, WANG R M, YAO H, et al. Adsorption characteristics of graphene oxide nanosheets on cement [J]. RSC Advances, 2016, 6(68):63365-63372.
- [7] 康馨,蒋明奕,马雄鹰,等. 氧化石墨烯改性沥青与表面各向异性集料界面相互作用研究[J]. 湖南大学学报(自然科学版), 2021,48(9):70-78.
KANG X, JIANG M Y, MA X Y, et al. Study on interface interaction between graphene oxide modified asphalt and surface anisotropic aggregate [J]. Journal of Hunan University (Natural Sciences), 2021,48(9):70-78. (in Chinese)
- [8] 赵艳,李波,曹贵,等. 基于表面能的氧化石墨烯改性沥青黏附性[J]. 建筑材料学报,2021,24(6):1341-1347.
ZHAO Y, LI B, CAO G, et al. Adhesion characteristics of graphene oxide modified asphalt based on surface free energy [J]. Journal of Building Materials, 2021, 24 (6) : 1341-1347. (in Chinese)
- [9] 刘克非,李超,朱俊材,等. 氧化石墨烯-改性竹纤维复合改性乳化沥青稀浆封层混合料性能研究[J]. 新型建筑材料,2020,

- 47(10):93-97.
- LIU K F, LI C, ZHU J C, et al. Properties of graphene oxide-modified bamboo fiber composite modified emulsified asphalt slurry seal mixture[J]. *New Building Materials*, 2020, 47(10): 93-97. (in Chinese)
- [10] 刘克非,朱俊材,张雪飞,等. 氧化石墨烯改性沥青性能评价及其OGFC混合料路用性能[J]. *长安大学学报(自然科学版)*, 2020, 40(1):40-48.
- LIU K F, ZHU J C, ZHANG X F, et al. Performance evaluation of graphene oxide modified asphalt and pavement performance of OGFC mixtures[J]. *Journal of Chang'an University (Natural Science Edition)*, 2020, 40(1):40-48. (in Chinese)
- [11] 王成超. 碳纳米材料改性沥青的制备、机理与性能研究[D]. 西安:长安大学, 2017.
- WANG C C. Preparation, mechanism and properties of carbon nanomaterials modified asphalt[D]. Xi'an: Changan University, 2017. (in Chinese)
- [12] PARHIZKAR N, SHAHRABI T, RAMEZANZADEH B. A new approach for enhancement of the corrosion protection properties and interfacial adhesion bonds between the epoxy coating and steel substrate through surface treatment by covalently modified amino functionalized graphene oxide film[J]. *Corrosion Science*, 2017, 123:55-75.
- [13] 李亚丽,刘爱华,杨博凯. 石墨烯/氧化石墨烯在沥青路面中的应用与研究[J]. *现代交通技术*, 2020, 17(5):17-20.
- LI Y L, LIU A H, YANG B K. Application and research on graphene/GO in asphalt pavement[J]. *Modern Transportation Technology*, 2020, 17(5):17-20. (in Chinese)
- [14] HAN M Z, LI J, MUHAMMAD Y, et al. Studies on the secondary modification of SBS modified asphalt by the application of octadecyl amine grafted graphene nanoplatelets as modifier[J]. *Diamond and Related Materials*, 2018, 89:140-150.
- [15] QIAN X D, SONG L, YU B, et al. One-pot surface functionalization and reduction of graphene oxide with long-chain molecules: preparation and its enhancement on the thermal and mechanical properties of polyurea[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, 236:233-241.
- [16] JIANG T W, KUILA T, KIM N H, et al. Enhanced mechanical properties of silanized silica nanoparticle attached graphene oxide/epoxy composites[J]. *Composites Science and Technology*, 2013, 79:115-125.
- [17] YOO M J, KIM H W, YOO B M, et al. Highly soluble polyetheramine-functionalized graphene oxide and reduced graphene oxide both in aqueous and non-aqueous solvents[J]. *Carbon*, 2014, 75:149-160.
- [18] LI P P, ZHENG Y P, SHI T, et al. A solvent-free graphene oxide nanoribbon colloid as filler phase for epoxy-matrix composites with enhanced mechanical, thermal and tribological performance[J]. *Carbon*, 2016, 96:40-48.
- [19] 曾梦澜,夏颖林,祝文强,等. 生物沥青、岩沥青及复合改性沥青常规性能与流变性能的相关性[J]. *湖南大学学报(自然科学版)*, 2019, 46(11):131-136.
- ZENG M L, XIA Y L, ZHU W Q, et al. Correlation between conventional performance and rheological performance of bio-asphalt, rock asphalt and composite modified asphalt[J]. *Journal of Hunan University (Natural Sciences)*, 2019, 46(11):131-136. (in Chinese)
- [20] 颜可珍,李慧丽,洪哲,等. LDPE/EVA复合改性沥青流变性能研究[J]. *建筑材料学报*, 2022, 25(4):408-414.
- YAN K Z, LI H L, HONG Z, et al. Rheological properties of LDPE/EVA composite modified asphalt[J]. *Journal of Building Materials*, 2022, 25(4):408-414. (in Chinese)