Kunstmatige veroudering van bindmiddel in het laboratorium. Wat doen we eigenlijk?

D. van Lent
TNO

K. Roetert Steenbruggen
TNO

K. Varveri
Technische Universiteit Delft

R. Jing
Technische Universiteit Delft

S. Khalighi
Technische Universiteit Delft

Samenvatting
De veroudering van het asfaltbindmiddel is een van de belangrijkste eigenschappen die een invloed hebben op de levensduur van open deklagen. Door versneld kunstmatig verouderen in het laboratorium worden de eigenschappen en prestaties gesimuleerd en geëvalueerd van wegenbouwmaterialen na jaren in de weg. Tot op heden zijn de kunstmatige verouderingstechnieken in het laboratorium niet erg representatief gebleken voor de veroudering in de praktijk. Hierdoor zijn de prestaties van verschillende asfaltmengsels lastiger te voorspellen. In deze paper wordt ingegaan op de processen die spelen bij kunstmatige veroudering en hoe deze processen verschillen of juist overeenkomen met de verouderingsprocessen in de wegpraktijk. Verder wordt er een invalsrichting gegeven hoe de kunstmatige veroudering op te zetten zodat deze meer representatief en voorspellend wordt voor de wegpraktijk.

Steekwoorden veroudering, reologie, bindmiddel, laboratorium, praktijk

1. Introductie

Het is algemeen bekend dat de eigenschappen van asfaltdeklagen veranderen over de tijd als gevolg van veroudering. Het bindmiddel ondergaat fysische en/of chemische veranderingen als gevolg van temperatuurcycli, diffusie van vocht, lucht (zuurstof) en UV-straling, welke invloed hebben op de prestaties van het bindmiddel. In het algemeen verminderen deze veranderingen de duurzaamheid van het materiaal onder invloed van belastingen. Dit fenomeen wordt bijvoorbeeld algemeen waargenomen bij veranderingen in de (visco-elastisch) mechanische eigenschappen van bindmiddelen [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9].

Door versneld kunstmatig verouderen in het laboratorium worden de eigenschappen en prestaties gesimuleerd en geëvalueerd van wegenbouwmaterialen na jaren in de weg. Tot op heden zijn de kunstmatige verouderingstechnieken in het laboratorium niet erg representatief gebleken voor de veroudering in de praktijk. Hierdoor zijn de prestaties van verschillende asfaltmengsels lastiger te voorspellen. Door verschillende marktpartijen zijn een aantal wensen en eisen naar voren gekomen waaraan een te ontwikkelen nieuw verouderingsprotocol zou moeten voldoen, zoals:

- De resulterende veroudering moet zo representatief mogelijk zijn voor de praktijk, d.w.z. in overeenstemming met veroudering in de weg.
- Er mag niet een te lange doorlooptijd zijn, maximaal 6 weken, maar 3 weken is wenselijk.
- Voldoende voorspellend vermogen, d.w.z. de resulterende veroudering moet vergelijkbaar zijn met een veroudering in de weg van minimaal 10 jaar. Bv. rafelingsschade van open deklagen wordt met name rond 10 jaar in de praktijk belangrijk. Om dit verouderingsprotocol voor asfaltmengsels voor open deklagen krachtig te laten zijn is een verkregen kunstmatige veroudering van 10 jaar gewenst.
- De benodigde apparatuur voor het protocol mag niet te duur zijn, apparatuur aanschaf vergelijkbaar met PAV (maximaal ca. € 20 k.).
- Na eventueel aanschaf van apparatuur moet het protocol uit te voeren zijn in Nederlandse asfaltlaboratoriums, qua veiligheid en expertise.
- Een andere mogelijkheid is dat de opstelling commercieel beschikbaar is tegen niet te hoge kosten (max. € 350 - 500 per monster).
- Geaccepteerd in de sector, m.n. door opdrachtgevers.
- Bij voorkeur geschikt voor verschillende wegenbouwmaterialen.

In deze paper wordt verder ingegaan op de verouderingsmechanismen en hoe deze geadresseerd kunnen worden tijdens kunstmatige veroudering. Hieruit volgt de afweging tussen versneld verouderen en gematigder versneld verouderen en tussen representatief en voorspellend vermogen voor levensduurvoorspellingen.

2. Verouderingsmechanismen van het bindmiddel

Om een representatief en voorspellend kunstmatig verouderingsprotocol voor asfaltbindmiddelen te ontwikkelen is het van belang om meer inzicht te krijgen in de verschillende effecten die een rol spelen in de verharding van de bindmiddelen tijdens de aanleg en het gebruik van het wegdek. Een overzicht van verschillende factoren die een rol spelen in de asfaltlevensduur is hieronder weergegeven. De meest erkende dominante processen zijn hierbij; oxidatie, vervluchtiging, polymerisatie en sterische verharding. Toch

bestaat nog veel onduidelijkheid in welke mate deze (en overige) processen een rol spelen in het asfalt verhardingsproces. Dit omdat de verhardingsprocessen vaak door dezelfde factoren worden beïnvloed en ze dus nauw aan elkaar verwant zijn [10].

Oxidatie
Asfalt, bestaand uit voornamelijk koolwaterstoffen, oxideert onder invloed van zuurstof. Het oxidatieproces van asfalt wordt beïnvloed door tijd, warmte en zuurstof. Door oxidatie neemt de viscositeit van het asfalt toe, het bitumen wordt stijver en het gehalte aan asfaltenen neemt toe [11].

Door de hoge temperaturen tijdens het productieproces, treedt tijdens de productie al een grootte mate van oxidatie van het mengsel op. Tijdens de gebruiksfase zet de oxidatie voort. Goed verdicht asfalt, mengsels met een relatief laag percentage holle ruimte en een relatief hoog bitumenaandeel zijn minder gevoelig voor oxidatie [12, 13].

De chemische veranderingen door oxidatie worden veelal in kaart gebracht met Infrared Spectroscopy (FTIR). De gedetecteerde carbonyl- en sulfoxides, worden geïnterpreteerd als oxidatieproducten, en geven een maat voor oxidatieve veroudering. Onderzoek naar in het laboratorium verouderde bitumen met de standaard verouderingstesten (PAV en RCAT) lieten, in vergelijking met veldmateriaal (teruggewonnen bitumen) veel lagere hoeveelheden sulfoxides en grotere hoeveelheden carbonyl zien. Hetgeen suggereert dat er mogelijk andere (oxidatie) mechanismen in het veldmateriaal een rol spelen dan bij bitumenmonsters die worden verouderd met behulp van de reguliere verouderingstesten in het laboratorium [13]. Wanneer ook zonlicht (UV) invloed heeft op het oxidatieproces, wordt hier ook wel naar gerefereerd met de term foto-oxidatie. Dit proces vindt voornamelijk plaats in een dunne film aan het asfaltoppervlak, waarna deze tijdens het gebruik mogelijk erodeert [10, 14].

Vervluchtiging
Vervluchtiging verwijst naar de verdamping van lichte, vluchtige fracties vanuit de binder. Samen met oxidatie, wordt het optreden van vervluchtiging als een van de meest dominante verhardingsmechanismen tijdens het productieproces gezien. Dit komt door de hoge temperaturen, waar het ontstaan van vervluchtiging het meest gevoelig voor is [15]. Tijdens de gebruiksfase lijkt vervluchtiging in tegenstelling tot oxidatie een veel minder dominante rol te spelen, door de relatief lage wegtemperaturen [10, 16].

In de literatuur wordt gebruikt gemaakt van massaverlies bepalingen na veroudering als mate voor de opgetreden vervluchtiging [15]. Om vervolgens de mate van verharding ten gevolge van enkel verluchtiging te kunnen kwantificeren is een volgende uitdaging. Veelal wordt hier gebruik gemaakt van verhitting onder anaerobe omstandigheden, waardoor verharding door o.a. oxidatie kan worden uitgesloten [15, 16].

Sterische verharding
Bij sterische verharding of leeftijd- of tijdverharding, wordt de binder harder door het ontstaan van interne structuren, onder temperaturen lager dan het verwekingspunt [10]. Sterische verharding wordt in verband gebracht met het ontstaan van structuren in de wassen [17] en asfaltenen [18] van het bindmiddel.

Traxler en Schweyer (1936) waren een van de eerste die kwantitatief het tijdsafhankelijke verhardingseffect beschreven. Ze merkte op dat bitumen bij een constante temperatuur van 25°C, hard wordt, zelfs in de afwezigheid van oxidatie of vervluchtiging [19]. Daarbij werden

bepaalde bitumensoorten harder (viskeuzer) dan andere. Sterische verharding wordt, in tegenstelling tot oxidatie en vervluchtiging, gezien als een (deels)omkeerbaar. Het grootste deel van de opgetreden verharding is door het toevoegen van energie, afhankelijke van het asfalttype, omkeerbaar [16].

Naast sterische verharding wordt er in de literatuur gerefereerd naar een ander tijdafhankelijk verhardingsproces: fysische verharding. Onderzoekers van het Strategic Highway Research Program (SHARP) [20] refereerde voor het eerst naar het bestaan van '(lage temperatuur)-fysische veroudering' voor asfalt, ter beschrijving van het optreden van tijdsafhankelijke verharding van asfalt onder een lage temperatuur, vlakbij de glastemperatuur. De studie liet zien dat bij het afkoelen van de binder bij lage temperaturen, deze niet een evenwicht bereiken, maar afnames van het vrije volume ondergaan. In het algemeen wordt er voor tijdsafhankelijke verharding bij kamertemperatuur gerefereerd naar sterische verharding en vlakbij de glastemperatuur als fysische verharding [21].

Polymerisatie
Met polymerisatie wordt er in de asfalt terminologie gerefereerd naar het harder worden van het asfalt door het toevoegen van warmte. Hierbij worden moleculen samengevoegd tot grote ketens. De verhardingssnelheid is afhankelijk van de temperatuur en de bitumencompositie [10, 16].

Water
Water kan als een katalysator werken voor een of meerdere reacties van het bitumen. Daarnaast speelt water natuurlijk een grote rol in de vorstschade. In het InfraQuest onderzoek [22] zijn de fenomenen, die tot vorstschade van Zeer Open Asfalt Beton (ZOAB) leiden, onderzocht aan de hand van een ontwikkelde vorstschadeproef. Uit dit onderzoek blijkt dat vorst-dooibelasting in combinatie met het behoud van water in de poriën resulteert in lagere indirecte treksterkte van open asfaltmengsels.

Syneresis en separatie
Syneresis is de extractie van olieachtige bestanddelen en/of harsen uit het bindmiddel, waardoor het asfalt harder wordt. Syneresis ontstaat door het samenknijpen, krimpen/herrangschrikken van de polymeerachtige fracties, waardoor olieachtige componenten uit het bindmiddel loopt. Het is een tijd en temperatuur afhankelijk proces [9, 16].

Het uitlopen van de olieachtige componenten wordt beïnvloed door het proces van absorptie en adsorptie van aggregaat. De hoeveelheid materiaal dat wordt opgenomen is afhankelijk van het aggregaat type, tijd en temperatuur en bitumentype [10].

Microbiologische achteruitgang
Ook micro-organismen zoals schimmels en bacteriën kunnen een rol spelen in het verharden of verzachten van asfalt bijvoorbeeld door het uitscheiden van corrosieve zuren [23]. De belangrijkste factoren die een rol spelen zijn de pH, type organismen, asfalt compositie, temperatuur en zuurstof [10].

3. Veroudering van bindmiddel in het laboratorium
Van de verouderingsmechanismen beschreven in de vorige worden vele mechanismen meegenomen in huidige (gestandaardiseerde) kunstmatige verouderingsmethoden. Het meest belangrijke mechanisme voor opendeklaag mengsels, oxidatie, wordt in laboratoriumveroudering meegenomen door verhoogde (partiële) zuurstofdrukken (bv. PAV)

en verhoging van de temperatuur. Verhoogde (partiële) zuurstofdrukken zijn echter niet onvoorwaardelijk toe te passen voor veroudering voor asfaltproeven [2]. Een te grote verhoging van de temperatuur levert voor sommige bitumen negatieve neveneffecten op waardoor kunstmatige verouderingen juist niet zonder meer representatief zijn voor de wegpraktijk [24].

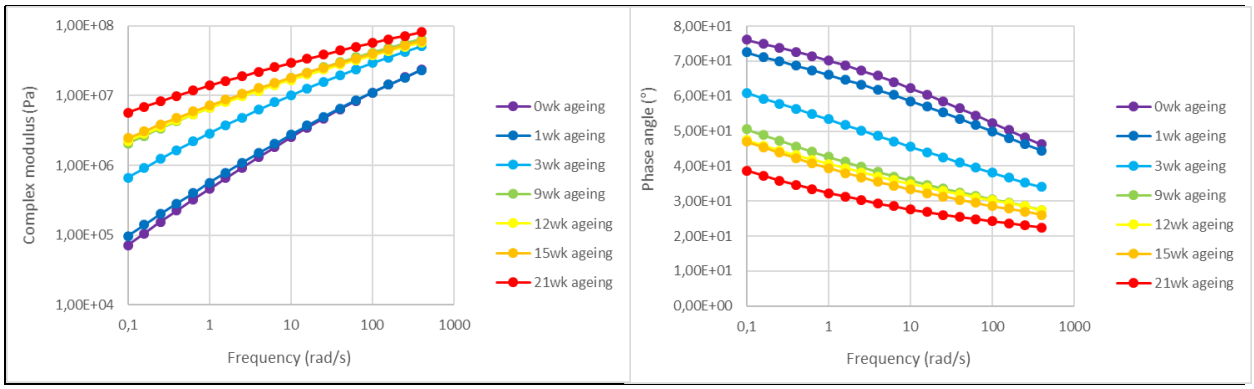
Vervluchtiging en polymerisatie worden ondervangen door met name verhoging van de temperatuur. Absorptie van componenten worden ondervangen door veroudering van bindmiddel op mengselniveau. Ook al is het hierbij wel de vraag of kortdurende laboratoriumveroudering (3 weken) genoeg recht doet aan het tijdsafhankelijke karakter van absorptie. Deze tijdsafhankelijke component wordt in de huidige kunstmatige verouderingsmethoden mogelijk ook niet goed ondervangen voor sterische verharding. Door de dominante oxidatieve veroudering van open asfaltdeklaagmengsels kan er voor open asfaltdeklaagmengsels nog mee weggekomen worden, maar voor dichte (deklaag)mengsels is deze component van belang [25].

In standaard verouderingsmethoden wordt de invloed van water en microbiologische achteruitgang niet meegenomen. Uit de Nederlandse praktijk komt niet naar voren dat microbiologische achteruitgang een direct gevaar vormt voor de bindmiddelen op de Nederlandse markt. Water daarentegen is mogelijk wel een belangrijke component om mee te (gaan) nemen. Allereerst om de representativiteit van de huidige laboratoriumveroudering voor de wegpraktijk te vergroten [24] en ten tweede omdat water mogelijk als katalysator kan dienen om het kunstmatige verouderingsproces te versnellen en toch het resulterende verouderede materiaal voorspellend te laten zijn voor bijvoorbeeld levensduurvoorspellingen.

4. Experiment voorspellend vermogen

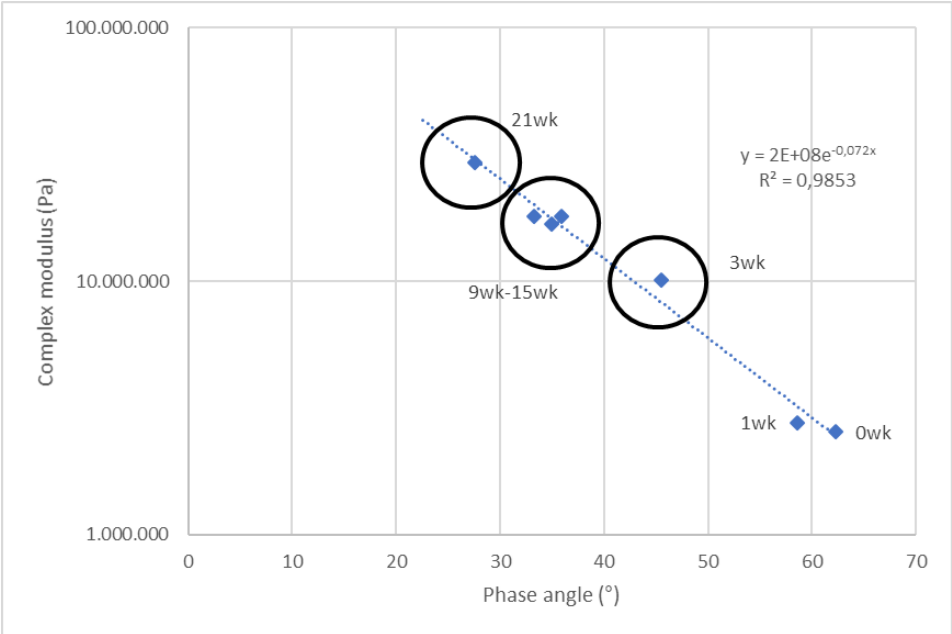
Om het belang aan te tonen voor het zoeken van katalysatoren voor kunstmatige veroudering voor alleen al open deklaagmengsels is het volgende experiment opgezet. Stel er wordt uitgegaan van een (voor sommige bindmiddelen te hoge) kunstmatige verouderingstemperatuur van 85°C hoe voorspellend is deze veroudering voor het gebruik van levensvoorspelling voor open deklaagmengsels? Om dit te onderzoeken is een bindmiddel als open asfaltmengsel verouderd in een oven met geforceerde ventilatie bij 85°C. Het niet gemodificeerde type bindmiddel dat is gebruikt is geselecteerd voor het feit dat van dit type bitumen mag worden verwacht dat een verouderingstemperatuur van 85°C geen afbreuk doet aan de representativiteit voor veroudering in de weg. Op specifieke momenten (1, 3, 9, 12, 15 en 21 weken) zijn er DSR, FTIR en GPC metingen verricht op het teruggewonnen bindmiddel.

De reologische resultaten op basis van DSR metingen (@20°C) van het verouderde bindmiddel zijn weergegeven in Figuur 1.



Figuur 1: Complex modulus en fasehoek van kunstmatige verouderd bindmiddel

Door de resultaten uit te zetten bij 10 rad/s en 20°C (Figuur 2), kan een indicatie voor het voorspellend vermogen worden verkregen, door vergelijking met TNO's bitumenverouderingsdatabase [26]. Hieruit volgt dat de reologische eigenschappen van het kunstmatige verouderde bindmiddel na 3 weken veroudering ongeveer overeenkomen met reologische eigenschappen van bindmiddelen die slechts ongeveer 3 jaar in de wegpraktijk zijn verouderd. Na 12 weken verouderen heeft het kunstmatige verouderde bindmiddel reologische eigenschappen die ongeveer overeenkomen met reologische eigenschappen van bindmiddelen die ongeveer 6 jaar in de weg zijn verouderd. Pas na 21 weken verouderen in het laboratorium heeft het kunstmatig verouderde bindmiddel reologische eigenschappen die ongeveer overeenkomen met reologische eigenschappen van bindmiddelen die ongeveer 10 jaar in de weg zijn verouderd.



Figuur 2: Reologie van het kunstmatige verouderd bindmiddel uitgezet bij 10 rad/s en 20°C

5. Discussie

Uit de beschouwing volgt dat er momenteel geen kunstmatige verouderingsmethode bestaat die volledig aan alle eisen/wensen voldoet. De keuze voor de randvoorwaarden van een veroudering in het laboratorium zijn dan ook een afweging tussen een kortere doorlooptijd,

waardoor de betrouwbaarheid en representativiteit voor de praktijk mogelijk enigszins afneemt, een langere doorlooptijd of juist kiezen voor een minder sterk verouderd materiaal dat mogelijk juist een minder voorspellend vermogen oplevert.

Voor open deklaagmengsels geldt dat, indien er gekozen wordt voor een korte kustmatige veroudering op hoge temperaturen (≥ 85°C) (en eventuele hoge partiële zuurstofdrukken), het nadeel dan is dat de gerealiseerde veroudering niet voor ieder wegenbouwbindmiddel vergelijkbaar is met de praktijk. Bij het gebruik van laboratoriumverouderingen met gematigde temperaturen (< 70°C) zijn tot op heden de verouderingsrelaties, voor alle onderzochte bitumineuze bindmiddelen, intrinsiek overeenkomstig met de wegpraktijk [1, 2, 24, 26, 27]. Echter, met laboratoriumverouderingen met gematigde temperaturen is 10 jaar praktijkveroudering niet te simuleren gedurende een redelijke verouderingstijd in het laboratorium. Doordat het voorspellend vermogen van de veroudering lager is, is het mogelijk dat sommige bindmiddelen over- dan wel ondergewaardeerd worden, doordat niet valt uit te sluiten dat een bindmiddel bij mildere veroudering relatief beter presteert en dat na sterkere veroudering (en in de praktijk dus na jaren) de verandering in de materiaaleigenschappen versnellen. Voor dichtere deklaagmengsels zijn de hiervoor genoemde omstandigheden en relaties nog minder evident.

6. Conclusies en aanbevelingen

Uit de paper volgt dat de kunstmatige veroudering van wegenbouwbindmiddelen voor als nog een afweging tussen representatief en voorspellend vermogen voor levensduurvoorspellingen.

De zekerheid van representativiteit voor de veroudering in de wegpraktijk wordt eerder verkregen door versneld verouderen bij gematigder omstandigheden (bv. < 70°C voor open deklaagmengsels) en juist een voorspellend vermogen wordt makkelijker bereikt bij intensievere omstandigheden (bv. ≥ 85°C voor open deklaagmengsels) in het laboratorium. Per casus is het dan ook het beste om te kijken welke kunstmatige veroudering het meest passend is bij de onderzoeksvraag.

Indien zekerheid van representativiteit voor de wegpraktijk en een voorspellend vermogen voor de wegpraktijk van bv. 10 jaar echt van belang zijn voor een onderzoeksvraag, dan moet er momenteel voor open deklaagmengsels nog rekening gehouden worden met versneld verouderen bij gematigder omstandigheden (bv. < 70°C) en langere doorlooptijden (> 21 weken).

7. Referenties

[1] Verandering in reologie van bindmiddel door veroudering in de weg en in het laboratorium, Van Lent, D.Q., Mookhoek, S.D. & Van Vliet, D., CROW Infradagen 2016

[2] De ontwikkeling van een methode voor versnelde representatieve veroudering van asfalt, Van Lent, D.Q., de Goeij, W.H., Giezen, C. & Suitela, W., CROW Infradagen 2018

[3] Unravelling Porous Asphalt Concrete towards a Mechanistic Material Design Tool, Huurman, R.M., Mo, L. & Woldekidan, M.F., Road Materials and Pavement Design, 11:3, 583-612, 2010

[4] Asphalt Oxidation Mechanisms and the Role of Oxidation Products on Age Hardening Revisited, Petersen, J.C. & Glaser, R., Road Materials and Pavement Design, 12:4, 795-819

[5] Characterisation of ageing processes on the asphalt mixture surface, Lopes, M., Zhao, D., Chailleux, E., Kane, M., Gabet, T., Petiteau, C. & Soares, J., Road Materials and Pavement Design, 15:3, 477-487, 2014
[6] Development of a new method for assessing asphalt binder durability with field evaluation, Glover, C.J., Davidson, R.R., Domke, C.H. Ruan, Y. Juristyarini, P., Knorr, D.B. Jung, S.H., Federal Highway Administration and Texas Department of Transportation, Report # FHWA/TX-05/1872-2, 2005
[7] UV and Thermal Aging of Pure Bitumen-comparison Between Laboratory Simulation and Natural Exposure Aging, Wu, S., Pang L., Mo, L., Qiu, J., Zhu, G. & Xiao, Y., Road Materials and Pavement Design, 9:sup1, 103-113, 2008
[8] Response Modelling of Bitumen, Bituminous Mastic and Mortar, Woldekidan, M.F., Ph.D. dissertation, Delft University of Technology, 2011
[9] The Effect of Aging on Binder Properties of Porous Asphalt Concrete, Hagos, E.T., Ph.D. dissertation. Delft University of Technology, 2008
[10] Durability and Durability Tests for Paving Asphalt: A State of the Art Report. Lee, D. Y. (1969). Engineering Research Institute, Iowa State University.
[11] The effects of asphaltenes on the chemical and physical characteristics of asphalt. Lin, M. S., Lunsford, K. M., Glover, C. J., Davison, R. R., & Bullin, J. A. (1995) In Asphaltenes (pp. 155-176). Springer, Boston, MA.
[12] Handreiking Dijkbekledingen Deel 3: Asfaltbekledingen. Deltares. Cirkel, J., van Dam, C., van den Akker, E., & Nell, J. W. (2015). In opdracht van: RWS WVL en Projectbureau Zeeweringen.
[13] Aging of Bituminous Binders–Laboratory Tests and Field Data. Lu, X., Talon, Y., & Redelius, P. (2008). In 4th Eurasphalt Eurobitume Congress (pp. 1-12)
[14] Investigation of ultraviolet radiation aging gradient in asphalt binder. Chen, Z., Zhang, H., & Duan, H. (2020). Construction and Building Materials, 246, 118501.
[15] Effects of exposure time and temperature in aging test on asphalt binder properties. Yener, E. en Hınıslıoğlu, S. (2014). International Journal of Civil & Structural Engineering, 5(2), 112-124.
[16] Durability of asphalt cements. Traxler, R. N. (1963). In AAPT Proceedings (Vol. 32, pp. 44-63).
[17] The steric hardening and structuring of paraffinic hydrocarbons in bitumen. Frolov, I. N., Bashkirceva, N. Y., Ziganshin, M. A., Okhotnikova, E. S., & Firsin, A. A. (2016).Petroleum science and technology, 34(20), 1675-1680.
[18] Steric hardening and the ordering of asphaltenes in bitumen. Masson, J. F., Collins, P., & Polomark, G. (2005). Energy & fuels, 19(1), 120-122.
[19] Increase in viscosity of asphalts with time. Traxler, R. N., & Schweyer, H. E. (1936). In Proc. ASTM (Vol. 36, pp. 544-551).
[20] Binder characterization and evaluation, volume 3: Physical characterization. Anderson, D. A., Christensen, D. W., Bahia, H. U., Dongre, R., Sharma, M. G., Antle, C. E., & Button, J. (1994).Strategic Highway Research Program, National Research Council, Report No. SHRP-A-369.
[21] Predicting low temperature physical hardening in asphalt binders. Tabatabaee, H. A., Velasquez, R., & Bahia, H. U. (2012). Construction and Building Materials, 34, 162-169.
[22] Frost Damage Research Wegen. Giezen, C., van Vliet, D., Valcke, S. L. A., Erkens, S. M. J. G., Voskuilen, J., Kuijper, P., Scarpas, A., Varveri, A., Avgerinopoulos, S. (2012). InfraQuest rapport IQ-2012-64.

[23] Effects of microbial degradation on morphology, chemical compositions and microstructures of bitumen. Zhang, H., Hu, Z., Hou, S. en Xu, T. (2020). Construction and Building Materials, 248, 118569
[24] Versneld representatief verouderen asfalt, van Lent, D., Roetert Steenbruggen, K.V., Nahar, S.N., Luiten, G.T. (2021), TNO rapport, TNO 2021 R11653
[25] PMC Infra wegen 2021 – Victoria, van Lent, D. (2021), TNO rapport
[26] Literatuurstudie verouderingsrelatie in blackspace-grafieken van bitumineuze mengsels. van Lent, D. (2014), TNO-rapport, TNO 2015 R10090, Delft, 2014
[27] De ontwikkeling van een methode voor versnelde representatieve veroudering van asfalt voor open deklagen: Validatie met recente praktijkmengsels, van Lent, D., Roetert Steenbruggen, K., Luiten, B., Suitela, W., CROW Infradagen 2020