

Análisis morfológico de la oxidación del betún asfáltico y su relación con los cambios en sus propiedades químicas y termorreológicas

Rafael Ernesto Villegas-Villegas

rafael.villegas@ucr.ac.cr

Paula Calderón-Mesén

paula.calderonmesen@ucr.ac.cr

José P Aguiar-Moya

jose.aguiar@ucr.ac.cr / jaguiar@ufidelitas.ac.cr

Roberto Quirós Vargas

roberto.quirós_v@ucr.ac.cr

La formación de estructuras aromáticas y la insaturación (dobles enlaces carbono-carbono) aumenta la rigidez del betún asfáltico durante la oxidación. Esto se puede explicar por el hecho de que la presencia de oxígeno y dobles enlaces en la estructura molecular del material mejora su polaridad y, en consecuencia, el número y la magnitud de las interacciones intermoleculares. Se espera que un betún asfáltico rígido (oxidado) sea menos eficiente en la disipación de energía a través de la deformación y el flujo, ya que sus moléculas tienen una movilidad reducida en comparación con un betún asfáltico menos rígido (no oxidado). En otras palabras, los betunes asfálticos oxidados tienden a disipar energía a través de la fractura.

El desarrollo de metodologías para mejorar las propiedades del betún asfáltico ha estado evolucionando, especialmente en el análisis de propiedades reológicas. Sin embargo, se ha hecho poco en cuanto a la caracterización microestructural del betún asfáltico mediante microscopía electrónica de barrido, que permite estudiar variaciones en la morfología, formación de cristales, grietas u otras estructuras que expliquen el comportamiento del material a medida que se oxida.

El objetivo de este artículo es estudiar la microestructura y composición elemental de los betunes asfálticos sometidos a procesos de oxidación en condiciones ambientales en Costa Rica mediante microscopía electrónica de barrido (SEM). Los resultados obtenidos muestran hallazgos significativos en áreas estresadas aumentadas, rugosidad del material, cambios en propiedades químicas y mecánicas, y la evolución cíclica de su morfología. Esto proporciona evidencia del mecanismo de generación de microgrietas en el betún asfáltico.

Palabras Clave: Microscopía electrónica de barrido, caracterización microestructural, oxidación, composición elemental.

The formation of aromatic structures and unsaturation (carbon-carbon double bonds) increases the stiffness of asphalt bitumen during oxidation. This can be explained by the fact that the presence of oxygen and double bonds in the molecular structure of the material improves its polarity and, consequently, the number and magnitude of intermolecular interactions. A rigid (oxidized) asphalt bitumen is expected to be less efficient in dissipating energy through deformation and flow, as its molecules have reduced mobility compared to a less rigid (non-oxidized) asphalt bitumen. In other words, oxidized asphalt bitumens tend to dissipate energy through fracture.

The development of methodologies to improve the properties of asphalt bitumen has been evolving, especially in the analysis of rheological properties. However, little has been done regarding the microstructural characterization of asphalt bitumen using scanning electron microscopy, which allows

Análisis morfológico de la oxidación del betún asfáltico y su relación con los cambios en sus propiedades químicas y termorreológicas.

studying variations in morphology, crystal formation, cracks or other structures that explain the behavior of the material as it oxidizes.

The objective of this article is to study the microstructure and elemental composition of asphalt bitumen subjected to oxidation processes under ambient conditions in Costa Rica using scanning electron microscopy (SEM). The results obtained show significant findings in increased stressed areas, material roughness, changes in chemical and mechanical properties, and the cyclic evolution of its morphology. This provides evidence of the mechanism of microcrack generation in asphalt bitumen.

Keywords: Scanning electron microscopy, microstructural characterization, oxidation, elemental composition.

1. INTRODUCCIÓN

Las modificaciones químicas que ocurren en el betún asfáltico debido a la oxidación aumentan la polaridad y rigidez del material, y consecuentemente, mejoran la respuesta elástica y alteran su reología. Estas transformaciones son importantes para predecir el rendimiento de los pavimentos en servicio [1]. La forma en que el betún asfáltico se oxida es información fundamental para el ingeniero de pavimentos, ya que influye en las propiedades fisicoquímicas del material, generalmente resultando en una mayor susceptibilidad a la fisuración. En la ciencia de polímeros, está bien establecido que la flexibilidad de los polímeros amorfos puede asociarse con reducciones en el estado vítreo [2]. Además, esta reducción puede estar relacionada con estructuras básicas como: Primero, es necesario considerar el modelo Christensen–Anderson–Marasteanu (CAM) (Ecuación 1), que se expresa de la siguiente manera:

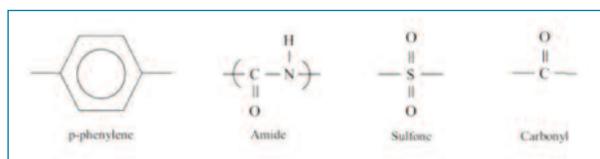


Figura 1. Grupos funcionales que rigidizan la estructura de materiales poliméricos.

Los tres principales factores que inducen al endurecimiento del betún asfáltico son: la pérdida de volátiles, cambios en la composición química debido a la reacción con el oxígeno y la forma en que las moléculas están estructuradas, lo que lleva a efectos tixotrópicos mediante endurecimiento estérico [3].

La oxidación del betún asfáltico ocurre en dos eta-

pas: 1) durante la extracción, la producción y colocación de la mezcla asfáltica, y 2) durante la vida útil del pavimento [4]. Las reacciones que ocurren durante estas etapas dependen de la composición química del betún asfáltico [5]. Sin embargo, se espera un aumento en la cantidad de grupos funcionales oxigenados, dobles enlaces y aromaticidad [6]. Estos cambios químicos pueden ser monitoreados mediante espectroscopía de absorción infrarroja por transformada de Fourier (FTIR) [7-8].

Se ha observado que la superficie del betún asfáltico expuesto a condiciones ambientales durante un corto período experimenta una oxidación más severa que el betún asfáltico sometido a tratamiento térmico a presión (PAV). Al comparar la oxidación de muestras expuestas a condiciones climáticas con aquellas tratadas con PAV, los cambios generalmente se limitan a los grupos de carbonilo y sulfóxidos en estas últimas, mientras que en las muestras expuestas a condiciones ambientales se observó una diferencia significativa en hidroxilos, grupos de carbonilo, sulfóxidos, aromaticidad y dobles enlaces carbono-carbono. Esto se acompaña de una reducción correspondiente en los enlaces carbono-hidrógeno, siendo las muestras oxidadas ambientalmente las más afectadas [9].

En los últimos años, se han realizado varios estudios utilizando diferentes micro y nanotecnologías para investigar la microestructura del betún asfáltico. Aunque la morfología superficial puede proporcionar información sobre las propiedades químicas, físicas, reológicas y mecánicas del betún asfáltico, el conocimiento sobre la relación entre la microestructura superficial y la estructura general sigue siendo limitado [10]. Por esta razón, este estudio tiene como objetivo examinar el cambio en la microestructura del betún asfáltico junto con los cam-

bios en las propiedades químicas y termorreológicas del material en relación con la oxidación del material y su impacto en la fragilidad.

2. METODOLOGÍA

Como parte del proyecto, se utilizó un betún asfáltico clasificado según el Grado de Desempeño (Performance Grade, PG) como PG70-22, y también se clasificó según su viscosidad como betún asfáltico AC-30.

La oxidación del betún asfáltico se llevó a cabo en el campo: una cantidad específica de betunes asfálticos utilizados localmente se vertió en moldes de silicona antiadherente para crear una película de 1 mm de espesor. Estas películas se expusieron a las condiciones exteriores durante dos años, sometiendo al betún asfáltico a la oxidación ambiental. Las muestras de betún asfáltico fueron expuestas en San José Costa Rica, a una altitud de aproximadamente 1200 metros sobre el nivel del mar, expuestas a radiación solar directa, lluvia y demás condiciones climatológicas propias de la región como se muestra en la Figura 2.



Figura 2. Moldes utilizados para la exposición de muestras de betún asfáltico a intemperie.

Es importante destacar que se utilizaron betunes asfálticos pretratados con el horno de película delgada rotante (RTFO) en la preparación de las películas. Esto se hizo para simular el envejecimiento a corto plazo que experimentarían los betunes asfálticos antes de ser incorporados como parte de una capa de pavimento asfáltico, tal como se muestra en la Figura 3.



Figura 3. Superficie de betún asfáltico antes de ser sometido al proceso de oxidación a intemperie.

Los betunes asfálticos envejecidos ambientalmente fueron recopilados después de 6, 12 y 24 meses de exposición, como se muestra en la Figura 4. Los betunes asfálticos envejecidos recopilados fueron luego analizados mediante FTIR para la caracterización química y SEM para observar la composición elemental, la morfología del material y los patrones de fractura.



Figura 4. Superficie de betún asfáltico sometido al proceso de oxidación a intemperie.

3. RESULTADOS

3.1 Cambios inducidos químicamente debido a la oxidación utilizando Espectroscopía FTIR (Infrarrojo por Transformada de Fourier).

Las señales cuantificadas fueron las siguientes: compuestos oxigenados (3500 cm^{-1} , hidroxilo; 1700 cm^{-1} , carbonilo; y 1030 cm^{-1} , sulfóxidos), compuestos aromáticos y insaturados ($\text{C}=\text{C}$) (3050 cm^{-1} y 1600 cm^{-1} , respectivamente), y compuestos saturados ($\text{C}-\text{H}$) (2800 cm^{-1} , 2900 cm^{-1}). El área de una señal de una es-

Análisis morfológico de la oxidación del betún asfáltico y su relación con los cambios en sus propiedades químicas y termorreológicas.

pecie química en un espectro infrarrojo está directamente relacionada con la concentración de esa especie. Por lo tanto, esta técnica se utilizó para cuantificar la extensión de la oxidación en las muestras de betún asfáltico en análisis. Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 1.

3.2 Consecuencias reológicas de la oxidación del betún asfáltico.

Para estudiar la composición elemental, las muestras se montaron en soportes metálicos utilizando cinta adhesiva de carbono de doble cara y se analizaron utilizando el microscopio electrónico de barrido Hitachi S-3700N

Tabla 1. Área de las señales infrarrojas relacionadas con la oxidación del betún asfáltico.

Betún asfáltico Costa Rica	Longitud de ond (cm ⁻¹)						
	3500	3050	2900	2800	1700	1600	1030
Original	0.19±0.07	0.029±0.002	8.37±0.71	2.76±0.19	0.010±0.006	0.76±0.035	0.107±0.038
RTFO	0.16±0.04	0.028±0.003	8.61±0.15	2.83±0.04	0.019±0.005	0.75±0.01	0.194±0.004
Intemperie 6 meses	5.25±0.83	0.043±0.008	4.10±1.10	1.31±0.37	2.960±0.450	1.52±0.29	1.388±0.204
Intemperie 12 meses	4.89±1.16	0.027±0.004	3.89±0.74	1.23±0.25	1.006±0.289	2.10±0.42	1.446±0.217
Intemperie 24 meses	2.52±0.24	0.017±0.002	3.42±0.85	1.12±0.28	0.286±0.067	1.36±0.10	1.910±0.245

Nota: todos los resultados corresponden al promedio de 7 réplicas y el ± representa el intervalo de confianza del 95%.

Según la Tabla 1, la superficie expuesta de las películas de betún asfáltico está significativamente más oxidada que las muestras de betún asfáltico original y RTFO (que corresponde a la condición inicial de las películas). Los datos muestran un aumento en los grupos funcionales oxigenados, como hidroxilo, carbonilo y sulfóxidos (hasta un 2663%). Además, se observó un aumento en los dobles enlaces carbono-carbono y la aromaticidad (hasta un 176%), acompañado por la consiguiente reducción en los enlaces carbono-hidrógeno (hasta un 59%). Estos cambios podrían aumentar la rigidez del material, ya que los dobles enlaces y las moléculas aromáticas son estructuras con menos flexibilidad que aquellas compuestas por simples enlaces carbono-carbono. Visualmente, los betunes asfálticos oxidados muestran un color opaco en su superficie, perdiendo su brillo natural. Por otro lado, se observa el desprendimiento de estructuras en forma de escamas en los betunes asfálticos oxidados.

con análisis de energía dispersiva de rayos X, como se muestra en la Tabla 2.

Es importante referenciar que níquel y el vanadio se encuentran en el petróleo crudo y el betún asfáltico principalmente en forma de complejos organometálicos clasificados como metaloporfirinas, las cuales pueden perderse durante el tratamiento térmico, lo cual provoca daños por contaminación ambiental, y, por otro lado, pudiendo actuar como catalizadores en la oxidación de algunas moléculas orgánicas presentes en el betún asfáltico [11] [12].

En la Tabla 2, se observa claramente que el elemento predominante analizado en el betún asfáltico es el azufre, que en el mes 6 representa casi el 80% en peso del total de los elementos analizados. Sin embargo, a medida que el betún asfáltico se somete a oxidación, en el mes 18, hay una reducción significativa en su concentración a menos del 50%, lo cual, en relación con los resultados de FTIR, confirma un alto nivel de oxidación del betún asfáltico debido a la exposición ambiental. En el caso del análisis elemental mediante espectroscopía de rayos X, se evidencia una reducción en Ni y V, confirmando un alto grado de oxidación del betún asfáltico.

Tabla 2. Porcentaje de peso del total de elementos analizados a los 6, 12 y 18 meses para los elementos químicos analizados.

Elementos	Meses		
	6M	12M	18M
Al	2.989	9.202	11.777
Si	8.025	16.247	25.188
S	76.579	65.798	470410
K	0.903	0.665	1.207
Ca	7.828	4.708	10.815
Ti	0.376	0.352	0.701
V	1.303	0.962	0.000
Fe	1.34	1.749	2.465
Ni	0.268	0.197	0.179
Cu	0.255	0.000	0.127
Zn	0.131	0.119	0.131

3.3 Consecuencias reológicas de la oxidación del betún asfáltico.

Como se observó anteriormente, la química del betún asfáltico evoluciona a medida que se forman compuestos más rígidos y quebradizos debido a la oxidación. Esta transformación química conduce a un endurecimiento del betún asfáltico y a la consiguiente fragilización de la capa superficial, volviéndolo más propenso a la formación de grietas, descamación y desprendimiento. La Tabla 3 presenta los valores del módulo del betún asfáltico a medida que experimenta la oxidación, los cuales

fueron medidos utilizando el Reómetro Dinámico de Corte (DSR) a 10°C y a 10 rad/s.

En relación con lo anterior, la respuesta mecánica del betún asfáltico también experimenta transformaciones significativas debido a la oxidación. Las imágenes SEM que se presentarán en la siguiente sección muestran que el cambio en las propiedades químico-mecánicas respalda la formación de estructuras morfológicas específicas, lo que conducirá a un mecanismo progresivo de deterioro.

3.4 Análisis morfológico mediante SEM.

La evolución de la oxidación del betún asfáltico en una superficie puede ser detalladamente observada a través de microscopía electrónica. Inicialmente, se pueden apreciar microestructuras uniformes en el asfalto no oxidado. Con el tiempo y la exposición al medio ambiente, la microscopía revela cambios morfológicos significativos. Surgen grietas y fisuras en la superficie producto de la oxidación, indicando la progresiva degradación del material. La formación de estructuras granulares y la separación de las capas superficiales del betún asfáltico son claramente visibles, evidenciando un proceso de desprendimiento capa por capa. La microscopía electrónica proporciona una visión detallada de la transformación estructural del asfalto a medida que experimenta la oxidación, permitiendo una comprensión más completa de los cambios que impactan en su rendimiento a lo largo del tiempo.

En la Figura 5 se muestra el cambio en la morfología de un betún asfáltico expuesto a la intemperie y la evolución en su microestructura.

Tabla 3. Cambio en el módulo del betún asfáltico (10°C) con la oxidación.

Betún asfáltico	Módulo (MPa)
Original	11
RTFO	17
Intemperie 6 meses	45
Intemperie 18 meses	81

Análisis morfológico de la oxidación del betún asfáltico y su relación con los cambios en sus propiedades químicas y termorreológicas.

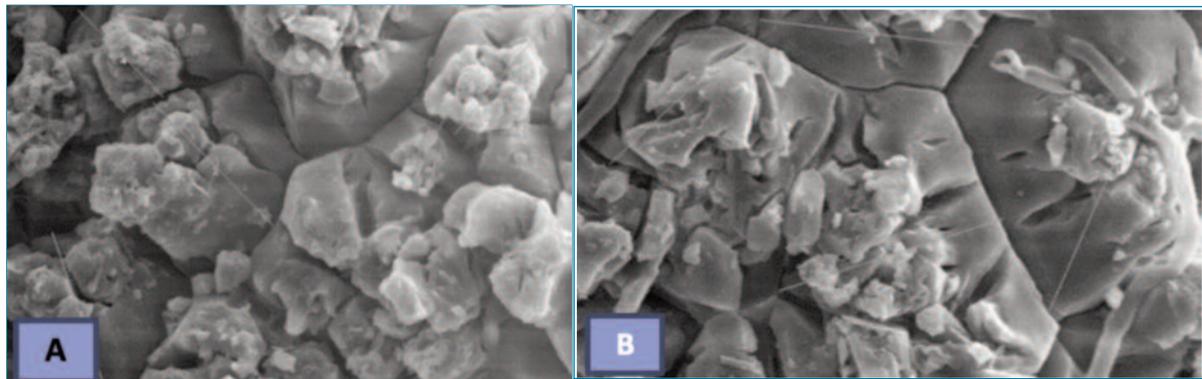


Figura 5. Superficie de betún asfáltico sometido al proceso de oxidación a intemperie, (A) seis meses a intemperie, (b) 12 meses a intemperie.

En la Figura 6 se presenta la evolución de la morfología del betún asfáltico a 36 meses de exposición a intemperie, lo que evidencia un alto grado de oxidación en el material, por lo que es importante revisar métodos de oxidación en el laboratorio como el PAV.

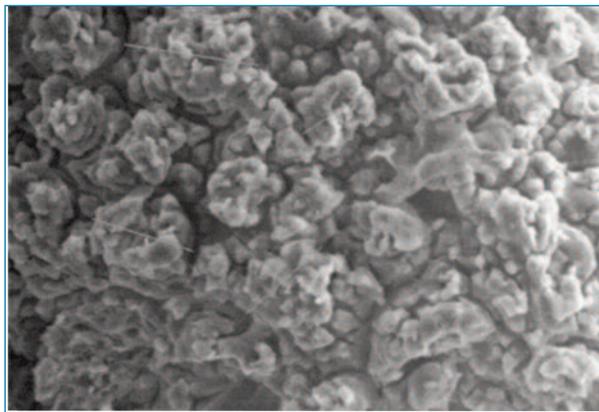


Figura 6. Superficie de betún asfáltico sometido al proceso de oxidación a intemperie durante 36 meses.

La evaluación de la evolución de la microestructura del betún asfáltico mediante la Microscopía Electrónica de Barrido (SEM) proporciona una comprensión detallada de la morfología del betún asfáltico oxidado y su evolución a lo largo del tiempo. La Figura 7 ilustra la morfología del betún asfáltico sometido a oxidación en condiciones ambientales, lo cual ha sido corroborado por FTIR.

En la Figura 7, se observa una grieta transversal en el betún asfáltico oxidado después de 18 meses de exposición a condiciones ambientales, destacando su susceptibilidad a la formación de grietas iniciadas en la superficie. La Figura 8 proporciona una vista más cercana de las

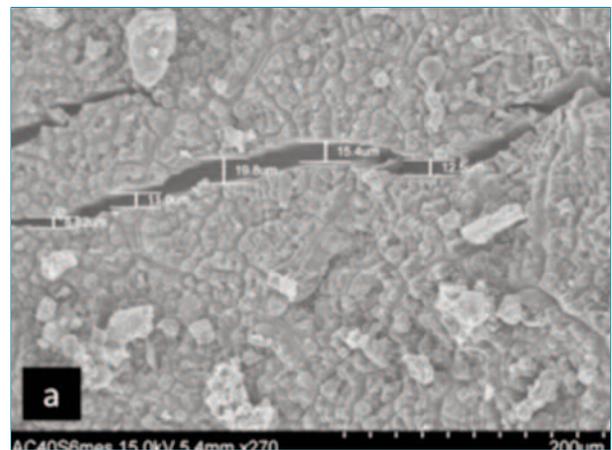


Figura 7. Imagen de SEM para el análisis morfológico del betún oxidado.

estructuras adyacentes a la grieta:

- 1- La estructura granular tensionada se representa en negro, repitiéndose a lo largo de la morfología superficial del betún asfáltico oxidado. Estas estructuras son mecánicamente frágiles y se vuelven susceptibles al desprendimiento a medida que aumenta su nivel de oxidación.
- 2- La propagación de microgrietas entre los gránulos del betún asfáltico oxidado se muestra en rojo, llevando a una separación entre ellos y eventualmente al desprendimiento de los gránulos superficiales.
- 3- Se destaca una estructura granular desprendida de la superficie del betún asfáltico oxidado en amarillo.

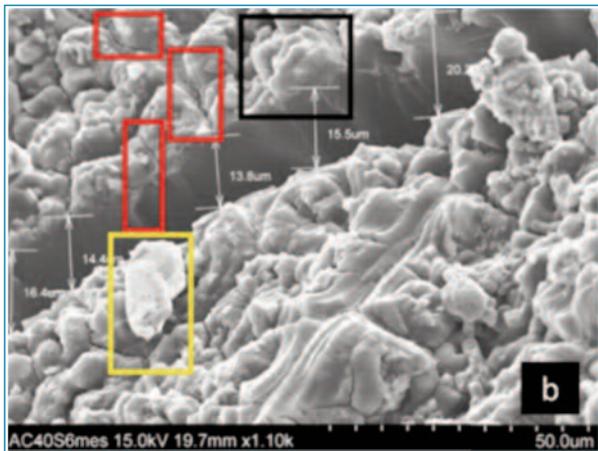


Figura 8. Imagen de SEM de estructuras morfológicas del betún oxidado.

La oxidación del betún asfáltico conduce a la formación de compuestos más rígidos y quebradizos, lo cual afecta directamente a la mayor susceptibilidad de las capas superficiales a la formación de grietas y su desprendimiento. Los efectos de exponer este material a condiciones ambientales como la radiación ultravioleta, cambios de temperatura y humedad contribuyen a la degradación de las capas superficiales del betún asfáltico oxidado.

Este comportamiento de descamado y desprendimiento granular de la superficie del betún asfáltico oxidado es común en todas las muestras evaluadas. Al analizar la morfología y cuantificarla mediante el software Gywddion (software libre para visualización y análisis de datos de microscopía de sonda de barrido) [15], en particular al examinar la evolución del tamaño promedio del grano en relación con el tiempo de exposición del betún

asfáltico al aire libre, se observa un aumento en el tamaño del grano hasta cierto punto, seguido por una disminución repentina y luego otro aumento con el tiempo. Esto sugiere un mecanismo de desprendimiento capa por capa en la superficie del betún asfáltico oxidado, como se muestra en la Tabla 4.

El mecanismo propuesto de descamación capa por capa del betún asfáltico en esta investigación consta de una secuencia cíclica de cuatro etapas, las cuales se presentan a continuación:

- 1- El betún asfáltico expuesto a 3 meses de oxidación a intemperie muestra una estructura tensionada con granos bien definidos, junto con ciertas microgrietas observadas entre los gránulos, como se muestra en la Figura 9.



Figura 9. Imagen de SEM de estructuras morfológicas betún asfáltico expuesto a 3 meses de oxidación a intemperie.

Tabla 4. Análisis de la morfología y cuantificación de los betunes asfálticos oxidados mediante el software Gywddion.

Tiempo de Exposición (Meses)	Ancho promedio del grano $\bar{\delta}_g/\mu\text{m}$	Separación promedio del grano $\bar{\delta}_s/\mu\text{m}$	Rugosidad promedio $\epsilon/\mu\text{m}$	Área de muestra $\text{am}/\mu\text{m}^2$	Área total muestreada $\text{am}/\mu\text{m}^2$	Porcentaje del área muestreada	Aumento
1	4,705	0,822	34,135	7000	3499,45	49,99214	500
3	4,862	0,616	42,750	7000	3499,94	49,99914	500
6	10,890	0,700	34,140	7000	1610,59	23,00843	500
12	4,050	0,338	33,940	7000	4047,88	57,82686	500
18	7,625	0,250	41,980	7000	4036,81	57,66871	500

Análisis morfológico de la oxidación del betún asfáltico y su relación con los cambios en sus propiedades químicas y termorreológicas.

2- La morfología del betún asfáltico expuesto a 6 meses de oxidación a intemperie presenta características de una estructura con potencial para el desprendimiento de los granos, como se muestra en la Figura 10.

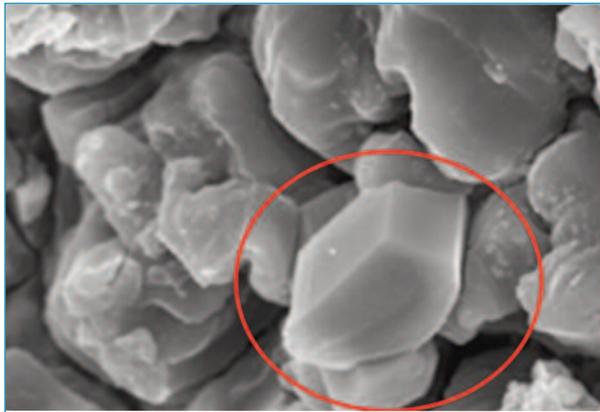


Figura 10. Imagen de SEM de estructuras morfológicas betún asfáltico expuesto a 6 meses de oxidación a intemperie.

3- La estructura del betún asfáltico expuesto durante 12 meses muestra muchas estructuras de grano desprendido, sugiriendo el desprendimiento de la capa superficial del betún asfáltico, como se muestra en la Figura 11.

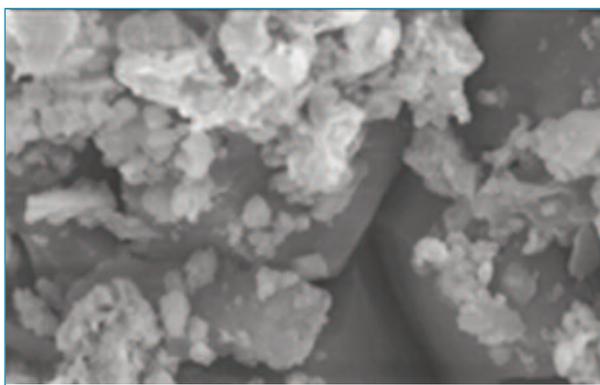


Figura 11. Imagen de SEM de estructuras morfológicas betún asfáltico expuesto a 12 meses de oxidación a intemperie.

4- Morfológicamente, el betún asfáltico expuesto durante 18 meses a condiciones a intemperie presenta una estructura más uniforme, con las estruc-

turas de grano tensionado empezando a tomar forma, como se muestra en la Figura 12.

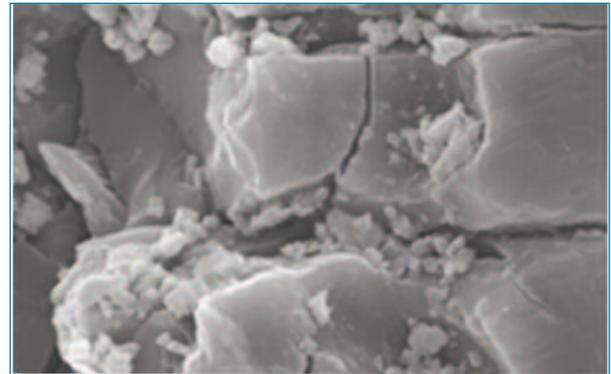


Figura 12. Imagen de SEM de estructuras morfológicas betún asfáltico expuesto a 18 meses de oxidación a intemperie.

4. CONCLUSIONES

Basándose en los resultados obtenidos, se puede concluir lo siguiente:

La exposición del betún asfáltico a las condiciones climáticas lleva a un proceso en el cual las capas superiores sufren desgaste, erosión o desprendimiento debido a factores como la oxidación, la intemperie y el tráfico vehicular. A medida que el betún asfáltico se oxida y envejece, su composición química y propiedades físicas cambian, lo que puede llevar al fragilizado y debilitamiento de las capas superficiales.

La interacción entre la química y la mecánica en el proceso de oxidación del betún asfáltico bajo condiciones ambientales es un fenómeno fundamental confirmado por este estudio. A medida que el betún asfáltico se somete a la exposición ambiental, tanto su composición química como sus propiedades mecánicas experimentan cambios significativos que reflejan una evolución en su comportamiento.

El betún asfáltico oxidado exhibe estructuras granulares que experimentan una alta tensión estructural, lo que conduce a su desprendimiento de la matriz asfáltica. La evidencia del estudio sugiere que la evolución del material bajo condiciones climáticas resulta en un mecanismo de desprendimiento capa por capa en la superficie del betún asfáltico oxidado.

Para prevenir o mitigar la pérdida de capas superficiales en el betún asfáltico oxidado, se pueden aplicar estrategias adecuadas de mantenimiento y rehabilitación, como el uso de selladores, recubrimientos y técnicas adecuadas de pavimentación. Además, es esencial monitorear y analizar regularmente la condición del pavimento para detectar y abordar cualquier problema de pérdida de capas superficiales de manera oportuna.

5. REFERENCIAS

- [1] Villegas-Villegas, R. E., Baldi, A., Aguiar-Moya, J. P., Loria-Salazar, L., & Miranda Arguello, F. (2023). Relationship between crossover modulus and asphalt chemistry to oxidation process based on the RHEO+ method. *Road Materials and Pavement Design*, 1-12.
- [2] Raimond B. Seymour, Charles E (1988). *Carraher. Introduction to Polymer Chemistry*, College of Science Florida Atlantic University.
- [3] Petersen, J. C., & Glaser, R. (2011). Asphalt oxidation mechanisms and the role of oxidation products on age hardening revisited. *Road Materials and Pavement Design*, 12(4), 795-819.
- [4] Huang, S., & Grimes, W. "Influence of Aging Temperature on Rheological and Chemical Properties of Asphalt Binders", *Transportation Research Record: Journal of the Transportation Research Board*, Vol. 2179, pp. 39-48. 2010.
- [5] Lu, X. & Isacson, U. "Effect of ageing on bitumen chemistry and rheology", *Construction and Building Materials*, Vol. 16, pp. 15-22. 2002.
- [6] Mouillet, V., Lamontagne, J., Durrieu, F., Planche, J. P., & Lapalu, L. "Infrared microscopy investigation of oxidation and phase evolution in bitumen modified with polymers", *Fuel*, Vol. 87, pp. 1270-1280. 2008.
- [7] Yang, X., You, Z., & Mills-Beale, J. "Asphalt Binders Blended with a High Percentage of Biobinders: Aging Mechanism Using FTIR and Rheology", *Journal of Materials in Civil*, Vol. 27, pp. 04014157. 2015.
- [8] Liu, M., Lunsford, K. M., Davidson, R. R., Glover C. J., & Bullin, J. A. "The kinetics of carbonyl formation in asphalt". *American Institute of Chemical Engineers Journal*, Vol. 42, pp. 1069-1076. 1996.
- [9] Lui, M., Ferry, M. A., Davidson, R. R., Glover, C. J., & Bullin, J. A. "Oxygen Uptake As Correlated to Carbonyl Growth in Aged Asphalts and Asphalt Corbett Fractions", *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol. 37, pp. 4669-4674. 1998.
- [10] Villegas-Villegas, R. E., Baldi-Sevilla, A., Aguiar-Moya, J. P., & Loria-Salazar, L. (2018). Analysis of asphalt oxidation by means of accelerated testing and environmental conditions. *Transportation Research Record*, 2672(28), 244-255.
- [11] Mazumder, M., Ahmed, R., Ali, A. W., & Lee, S. J. (2018). SEM and ESEM techniques used for analysis of asphalt binder and mixture: A state of the art review. *Construction and Building Materials*, 186, 313-329.
- [12] Walas, S. M. (2013) "Reaction Kinetics for Chemical Engineers: Butterworths Series in Chemical Engineering", Butterworth-Heinemann.