

## 表面自由エネルギーに基づくポリマー改質アスファルトの開発と評価

日大生産工(院) ○藤永 知弘 ワールド開発工業(株) 宮坂 大裕  
日大生産工 加納 陽輔 日大生産工 秋葉 正一

### 1. はじめに

近年, 舗装の早期劣化を招く一因としてアスファルト・骨材界面(以下, 骨材界面)に生じる剥離が指摘されており<sup>1)</sup>, 舗装の長寿命化を目指して剥離抵抗性のさらなる改善に向けたアスファルト混合物(以下, 混合物)の開発と評価が求められている。

特にODAなどの海外工事において混合物に用いる骨材は, 環境的・経済的制約や資源権利等制限の下, 素材の適否を適切に評価・判定し, 量的・質的な安定供給を確保する必要がある。加えて, 骨材は混合物全体の約95 wt.%を占め, 輸送コストの観点からもプロジェクトサイト近傍での調達が望まれる。しかし, 現地骨材に関する知見の不足や試験設備の不備から, 準備調査段階で材料の評価・選定が容易でないといった課題もある。実際, カンボジアの道路建設工事では図-1に示すように剥離に起因した早期破損が発生したが, 当初, コアー材料の修正ロットマン試験などの従来法による調査では, 材料不良の明確な原因を特定するには至らなかつたという事例もある。

これまで, 著者らは各種骨材の物理・化学的特性が混合物の剥離抵抗性に及ぼす影響を多角的に評価するとともに, 骨材・アスファルト界面の表面自由エネルギー(以下, SFE)に着目した剥離抵抗性の評価法および指標を検討した<sup>2)</sup>。この結果, 各種強度試験および供試体破断面の観察から, 特に砂岩を用いた混合物は剥離抵抗性に優れることを確認し, 同時に骨材・アスファルト間のSFEより求めた接着エネルギーおよび水分感受性指標と, 混合物の間接引張強度に一定の相関が認められた。

以上を踏まえ, 本研究では剥離抵抗性の改善による舗装の長寿命化を目指し, 海外工事における現地素材活用の観点から, 骨材界面のSFEに基づくポリマー改質アスファルト(以下, PMB)の開発と素材および混合物に対する剥



図-1 カンボジア工事での早期破損事例

離抵抗性の評価を試みた。この結果, 接着エネルギーに基づいて開発されたPMBは, 多様な岩種に対する剥離抵抗性が向上し, 混合物における剥離の発生および進行を抑制する可能性を確認した。

### 2. 実験概要

本研究では, SFEより得られる水分感受性指標MSIに基づき開発目標値を満足するようPMBを設計し, 開発されたPMBによる混合物の剥離抵抗性をHamburg Wheel Track Test<sup>3)</sup>(以下, HWTT)により評価した。以下に, 本研究における素材および供試体, 試験方法および評価に関して詳述する。

#### (1) 素材および供試体

従来, 剥離抵抗性向上にはSBSを用いた改質アスファルトや剥離防止剤が用いられている。しかし, SBSは分子構造が基本的に非極性であるため, 骨材表面の官能基との相互作用は限定的である。したがって, 本研究では, SBSに極性官能基を導入して, この弱点を補う界面設計としたSBSを複数開発した。SBSの改質手法は, ①官能基作用型: 無水マレイン酸などを用いたグラフト反応によるカルボキシル基などを導入する方法に加えて, ②部分水素添加型: SBSの二重結合部分に水素化処理を行い, 酸化反応抑制と疎水性向上を目的とした2つの系列を用いた。なお, 開発ではODAへの適

Surface Free Energy-Based Development and Evaluation of Polymer Modified Bitumen

Tomohiro FUJINAGA, Tomohiro MIYASAKA, Yousuke KANOU and Syouichi AKIBA

表-1 アスファルトの種類および物性

サンプルID	StAs	CM1	CM2	PTM1	PTM2	PTM3	PTM4
種類	Neat	PMB		PMB <sub>FG</sub>		PMB <sub>HY</sub>	
	StAs60/80	改質II型	改質II型+剥離防止剤	官能基作用型		部分水素添加型	
軟化点 (°C)	48.0	61.0	60.7	81.1	81.7	66.2	65.1
タフネス (Nm)	4.2	13.8	27.4	27.7	36.8	24.2	12.6
テナシティ (Nm)	0.9	8.7	21.7	21.2	29.1	16.5	6.4
DSR 64°C	G*  (kPa)	1.56	5.19	3.91	4.36	6.15	9.48
	G* /Sin δ (kPa)	1.57	5.38	4.10	4.67	6.73	10.56
							14.36

表-2 粗骨材の物性

サンプルID	Gr	Sa	An
産地	岐阜県	茨城県	長野県
岩種	花崗岩	硬質砂岩	安山岩
かさ密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.603	2.641	2.634
吸水率 (%)	1.10	0.92	1.24
すり減り減量 (%)	14.2	20.3	14.1

表-3 混合物の配合比率

サンプルID	Gr	Sa	An
配合比率 (%)	6号碎石	37.0	33.0
	7号碎石	18.0	22.0
	碎砂	17.2	
	粗目砂	24.0	
	石灰岩石粉	3.8	
アスファルト	5.3	5.2	5.5

用も視野に、コストの上昇抑制 (StAs 比 150% 以内) を意識した。

PMB は StAs 60/80 に SBS を 5 wt.% 添加して、ハイシェアミキサーで製造した。開発品は、官能基作用型 (PMA<sub>FG</sub>) と部分水素添加型 (PMB<sub>HY</sub>) と称し、従来の剥離抑制技術を適用した PMB と区別する。対象としたアスファルトの種類と物性は表-1 に示すとおりである。

粗骨材については、既報研究<sup>2)</sup>で特徴的な性状が確認された 3 種 (花崗岩 (Gr), 砂岩 (Sa), 安山岩 (An)) を選定した。砂岩 (Sa) は接着エネルギーが高く、水分感受性指標が低いため剥離抵抗性に優れる一方、安山岩 (An) は水分感受性指標が高いため剥離抵抗性に劣り、試験後の供試体破断面に剥離が顕著に見られた。花崗岩 (Gr) は世界に広く分布し ODA 等海外工事では使用実績が多いが、一般的にシリカ含有量が多いため、接着性に劣るとされている。使用した粗骨材の物性値一覧を表-2 に示す。

混合物の配合は MS-2 Superpave 法に準拠し、配合比率は表-3 に示すとおりである。なお、骨材ごとにアスファルト量は同一定量とした。

## (2) 試験方法

接着エネルギーの評価にあたっては、自動接触角計を用いて各素材の表面自由エネルギー (SFE) を測定し、以下の式(1)、式(2)に基づいて骨材界面の接着エネルギーおよび水分感受性指標を算出した。

$$W_A^{AB} = 2\sqrt{\gamma_A^{LW}\gamma_B^{LW}} + 2\sqrt{\gamma_A^+\gamma_B^-} + 2\sqrt{\gamma_A^-\gamma_B^+} \quad (1)$$

$$MSI = \frac{W_A^{AW} - W_A^{AB}}{W_A^{AB}} \quad (2)$$

ここに、 $W_A^{AB}$  : 接着エネルギー (mJ/m<sup>2</sup>)、MSI : 水分感受性指標、 $\gamma^{LW}$  : Lifshitz-van der Waals 力成分、 $\gamma^+$  : 酸成分、 $\gamma^-$  : 塩基成分、添字 : 骨材 A、アスファルト B、水 W を表す。

ここで、接着エネルギーは水分が介在しない状態における骨材界面の接着力を示し、水分感受性指標は式(2)のとおり、接着エネルギーに対して水分が介在した状態の骨材界面における接着力の変化度合いを示す。すなわち、水分感受性指標が低いほど水分に対する耐性が高く、剥離抵抗性に優れる可能性を示す。

新規 PMB の開発および評価に際して、まずは既報研究で剥離抵抗性が比較的高かった砂岩- StAs 間の水分感受性指標 (=0.35) を目標値とし、これをすべての岩種で満足することを開発目標とした。つぎに、目標を達成したいいくつかの PMB を用い、HWTT (水温 60 °C) により混合物の剥離抵抗性を評価した。

ここで、HWTT の載荷回数とわだち深さの関係に関して、図-2 のように式(3)から式(5)に示す 3 種類の曲線モデルのフィッティングにより、剥離の起点 (以下、SN) および SN 後の剥離抵抗性、耐流動性を評価する手法が提案されており<sup>4)</sup>、これに基づき SN に至る載荷回数  $LC_{SN}$ 、わだち深さが 12.5 mm の剥離限界に達するまでの載荷回数  $LC_{ST}$  に区別して HWTT における剥離の進行をより多角的に評価している。なお、SN は式(3)の曲線モデルで 2 階導関数が 0 となる点、すなわち負から正の曲線に変

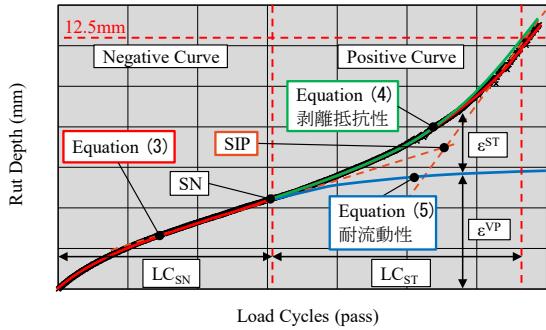


図-2 HWT における新しい評価法の概念

わる変化点として数値計算により求められる。

$$RD_{LC} = \rho \left[ \ln \left( \frac{LC_{ult}}{LC} \right) \right]^{-1/\beta} \quad (3)$$

$$\varepsilon^{ST} = \begin{cases} \varepsilon_0^{ST} \{ \exp[\theta(LC - LC_{SN})] - 1 \} & LC - LC_{SN} \geq 0 \\ 0 & LC - LC_{SN} \leq 0 \end{cases} \quad (4)$$

$$\varepsilon^{VP} = \varepsilon_{\infty}^{VP} \exp \left[ - \left( \frac{\alpha}{LC} \right)^{\lambda} \right] \quad (5)$$

ここに,  $RD_{LC}$  : わだち深さ (mm),  $LC$  : 載荷回数 (pass),  $SN$  : 剥離開始点 (pass),  $\varepsilon^{ST}$  : 剥離ひずみ,  $\varepsilon^{VP}$  : 粘塑性ひずみ,  $\varepsilon_{\infty}^{VP}$  : 飽和粘塑性ひずみ,  $LC_{ult}$ ,  $\rho$ ,  $\beta$ ,  $\alpha$ ,  $\lambda$ ,  $\varepsilon_0^{ST}$ ,  $\theta$  : モデル係数を表す。

本研究では, 開発した  $PMB_{FG}$  による混合物の剥離抵抗性評価に加え, アスファルト・骨材界面の接着エネルギーが剥離の各進行段階に及ぼす影響を確認するため, 剥離発生に至る  $LC_{SN}$  および剥離限界までの  $LC_{ST}$  の 2 指標に着目して, 接着エネルギーとの関係性を評価した。

### 3. 実験結果

#### (1) 接着エネルギーに基づく PMA の開発

接着エネルギーに基づいて開発した  $PMB_{FG}$  について, 接着エネルギーおよび水分感受性指標の計算結果を図-3, 図-4 に示す。これらは, 多くの組み合わせを一度に計算可能であることが本手法の利点の一つである。

図-3 に示す通り, 水分が介在しない状態で接着エネルギーは, すべての骨材で  $PMB_{FG,HY} > PMB > StAs$  の順となり,  $PMB_{FG}$  が骨材界面の接着性を向上させることが確認された。特に開発品  $PTM2$  は,  $Gr$  および  $Sa$  に対して  $StAs$  比

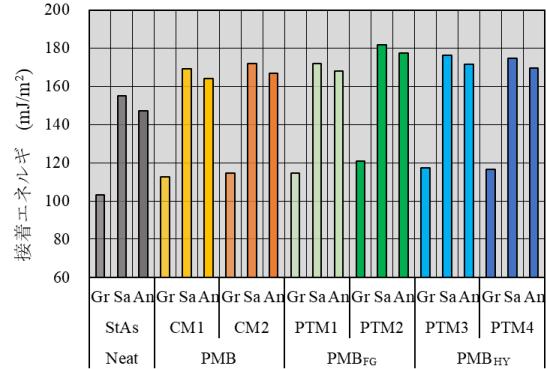


図-3 骨材界面の接着エネルギー

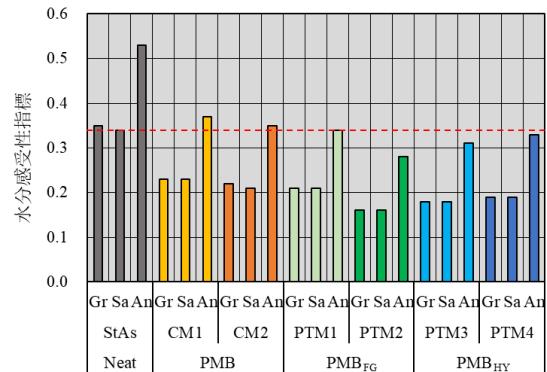


図-4 骨材界面の水分感受性指標

で 17.2 %,  $An$  に対して 20.8 % の向上を示した。

また, 図-4 からは, 水分感受性指標において  $PMB_{FG,HY}$  はすべての骨材で開発目標値 0.35 を下回る性能を示したのに対し,  $PMB$  は  $An$  において目標を満たさなかった。中でも  $PTM2$  は,  $StAs$  比において  $Gr$  で 45.7 %,  $Sa$  で 47.1 %,  $An$  で 52.8 % の水分感受性指標低減を達成し, 水分影響に対する耐性の高さが示された。

これらの結果から,  $PMB_{FG,HY}$  は SFE の構成成分, 特に水・アスファルト相のエネルギー成分を制御することで, 親水性を抑制し剥離抵抗性を高める設計が可能であることが示唆された。

#### (2) HWTT による剥離抵抗性評価

図-5 に示すとおり, HWTT による  $LC_{SN}$  (剥離開始点までの載荷回数) の結果は, 全骨材において  $PMB_{FG,HY}$  の使用により  $StAs$  に比べて大きく增加了。特に  $PTM2$ ,  $PTM3$ ,  $PTM4$  はいずれも顕著な向上を示し, 既報研究で剥離抵抗性が良好であった砂岩・ $StAs$  混合物との比較では,  $An$  との組み合わせでも  $LC_{SN}$  が 2 倍以上に達した。

これは,  $PTM2$  が骨材官能基との共有結合による界面強化,  $PTM3$ ,  $PTM4$  が極性成分の制御により剥離発生の抑制に寄与したためと推

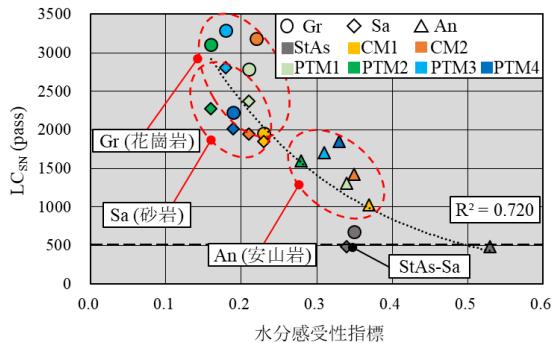


図-5 水分感受性指標と  $LC_{SN}$  の関係

察される。

図-6 に示す  $LC_{ST}$  についても、 $LC_{SN}$  と概ね同様の傾向を示した。これは、本研究で用いたすべての PMB は、5 wt.% の SBS 系改質材を共通条件としていることから、剥離開始点以後の急激な剥離進行においては、骨材界面の接着性状以外に凝集破壊などが影響するものと推察される。

骨材別の傾向は、 $LC_{SN}$  および  $LC_{ST}$  について  $Gr > Sa > An$  の順で高い値を示し、骨材の物理・化学的性質が剥離開始点に強く影響していることが改めて確認された。

また、図-5 および図-6 の結果で、SFE に基づく水分感受性指標と、HWTT で得られた  $LC_{SN}$  および  $LC_{ST}$  との間に比較的良好な相関関係が認められた。このことから、混合物による評価試験を行う前段階で、骨材およびアスファルトの SFE 測定によって、剥離抵抗性をある程度予測・評価できる可能性が示唆される。これは、ODA などの準備調査段階で現地資材選定におけるスクリーニング手法として、SFE による評価の有効性を裏付ける。

#### 4. まとめ

本研究では、骨材界面の接着エネルギーに基づいて設計したポリマー改質アスファルト

( $PMB_{FG, HY}$ ) を開発し、その剥離抵抗性を HWTT により評価した。得られた主な知見は以下のとおりである。

- 1) 接着エネルギーに基づいて設計された  $PMB_{FG, HY}$  は、水分感受性指標の目標値 (=0.35) をすべての骨材で満足し、特に PTM2 は水分感受性指標が StAs 比で最大約 50 % 低減した。
- 2)  $PMB_{FG, HY}$  を用いた混合物は、すべての骨材において  $LC_{SN}$  および  $LC_{ST}$  が増加

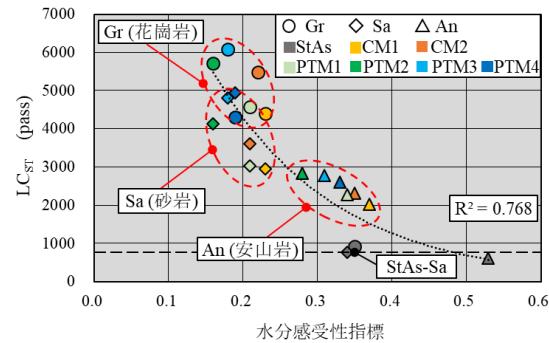


図-6 水分感受性指標と  $LC_{ST}$  の関係

し、特に安山岩 (An) との組み合わせでも StAs 比で 2 倍以上の向上が確認された。これは、 $PMB_{FG, HY}$  が剥離抵抗性に乏しい骨材の適用範囲拡大に資することを示唆する。

- 3)  $LC_{SN}$  および  $LC_{ST}$  は骨材の影響を反映しており、混合物に使用する骨材の選定が、剥離抑制において重要であることが再確認された。
- 4) 水分感受性指標と剥離発生に至る  $LC_{SN}$ 、剥離進行末期までの  $LC_{ST}$  には、いずれも強い相関が認められ、接着エネルギーは素材の開発および適否安定のみならず、混合物としての剥離の進行にも関与し、材料の剥離抵抗性評価においても有用な指標となり得る。

今後は、HWTT で得られる耐流動性指標の評価や、改質アスファルトが混合物の耐久性に及ぼす影響を検討し、より実践的な剥離抵抗性評価法の構築と低品質骨材の有効利用に向けた技術開発を進めていく。

#### REFERENCES

- 1) 高橋茂樹、小野義道、佐藤正和：高速道路におけるアスファルト舗装の「解体新書」プロジェクト、土木学会論文集 E1 (舗装工学), Vol.71, No.3, I\_93-I\_101, 2015.
- 2) 藤永知弘、宮坂大裕、加納陽輔、秋葉正一：骨材の物理・化学的性状がアスファルト混合物の剥離抵抗性に及ぼす影響、土木学会論文集 E1 (舗装工学), Vol.79, No.21, 23-21006, 2023.
- 3) AASHTO : Standard Method of Test for Hamburg Wheel-Track Testing of Compacted Asphalt Mixtures, AASHTO Designation T324-17, 2017.
- 4) Fan Yin et al. : Novel Method for Moisture Susceptibility and Rutting Evaluation Using Hamburg Wheel Tracking Test, Transportation Research Record, vol. 2446, 2014.