

V-91 ホットストレージによるアスファルトの老化の研究 ——主として化学組成の変化について——

東亜道路工業技術研究所 正員 ○笠原 靖
正員 植村 正
稲垣健三

1. 緒言

ホットストレージによるアスファルトの老化については、多くの研究がなされているが、それは針入度及び粘度等の物理的変化について議論が多く、組成面との関係についての報告は見られないようである。最近ではホットストレージによるアスファルトの硬化速度は、アスファルトへのシリコンオイルの添加及び不活性ガスの利用によりかなり制御しうることが証明され、この原因は主に酸化によるとされている。これらの問題は、供用後の舗装体の被劣とも関係し、極めて興味ある現象といえる。そこで我々は、このアスファルトの硬化の原因を、アスファルト中の酸素含有量の変化、組成（オイル、レジン、アスファルテン成分）の変化及び平均分子量の変化に大別し、いずれに多く依存するかを検討するため、若干の実験を行ってみた。

2. 試料及び実験方法

2-1 試料；用いた試料アスファルトは表-1に示すウェート原油のシェル、ワフラ^{80/100}である。尚試料は日本大学の三浦裕二先生に提供いただいたものであり、配合、貯蔵条件及び抽出方法等は、本予稿集の三浦、権代氏による“加熱合材の貯蔵について”に詳細に述べられているので省略する。

表-1 針入度と貯蔵時間

貯蔵時間 針入度	オリジナル	0 Rr	6 Rr	24 Rr
ワフラ	87	50	22	9
シェル	85	59	35	12

2-2 実験方法；表-1の試料を各々シヤーレに採取し、真空ポンプ（ 10^{-3} mmHg）により室温で約3昼夜、脱水脱溶媒を行い、各々の測定用試料とした。

2-3 アスファルトの元素分析；表-1の試料を島津製作所のマイクロアナライザーを用いて水素（H）、窒素（N）、硫黄（S）、酸素（O）元素について元素分析で定量した。酸素元素については、直接測定を行わず、全体を100とし、その差から求めたものである。尚分析は2回に分けて行い、その相加平均を測定値とした。

2-4 アスファルトの赤外吸収スペクトル（IR）の測定；試料を20%の溶液となるように、完全脱水した四塩化炭素（市販の試薬特級）に溶解せしめ、これをKBrの液体組立セルに注入し、各々についてIRの測定を行った。IRは日本分光のmodel-IR-Gで、 $400\text{ cm}^{-1} \sim 4,000\text{ cm}^{-1}$ まで測定しうるものである。

2-5 アスファルトの分別；これは最も一般的な方法によりアスファルテン、レジン、芳香成分、パラフィンの4種に分別した。詳しくは、“アスファルト（金崎健児著）”に述べられている。

2-6 アスファルトの平均分子量の測定；アスファルトの平均分子量の測定は正確には求められない故、ここでは便宜上通常の稀釈粘度法により分子量を算出した。これは試料をベンゼンに溶解せしめ、この粘度測定により分子量を求めたものであるが、その値は相対的な一つの尺度となりえる。

ものである。

3. 実験結果及び考察

次の表-1は各試料の元素分析結果を示した。貯蔵後の試料はいずれもA_{ad}を含有しているが、これは抽出の際にフィラーが混入したものと考えられる。このフィラーの存在は実験精度に多少影響すると思われるが、酸素元素に注目するとワフラ、シェルのいずれも貯蔵時間の増加により明らかにこの含有量の増加が見られる。M.A. Abu-Elgheit等が指摘するように酸素含有量は抽出溶媒等により多少増減するが、この量はオーダーが異なり極度な酸化によると解釈される。そこでこの酸素がいかなる状態で存在するかを確認するためのIRの結果を図-1、図-2に示した。図から明かなようにワフラ、シェル共に、1700cm⁻¹の吸収が貯蔵時間と共に大きくなっている故、酸素は殆んどカルボニル基($\text{C}=\text{O}$)の形で増加して行くことがわかる。このこ

表-2 元素分析値

元素名 試料		H	C	N	S	Ash	O
ワ フ ラ	オリジナル	10.19	83.76	0.52	6.33	—	0.80
	0 Rr	9.76	82.29	0.71	3.66	0.57	1.19
	6 Rr	9.83	81.80	0.53	3.72	0.60	1.86
	24 Rr	9.55	81.58	0.43	4.67	2.97	1.83
シ ェ ル	オリジナル	10.35	84.18	0.46	4.70	—	0.31
	0 Rr	9.84	82.60	0.57	5.51	2.39	0.91
	6 Rr	9.98	82.39	0.57	4.95	2.71	1.51
	24 Rr	9.47	80.90	0.68	3.83	1.94	2.15

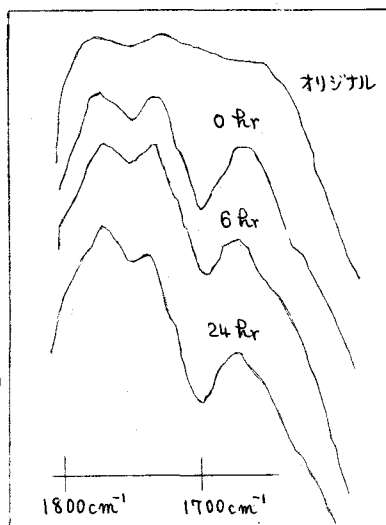


図-1 ワフラの赤外線吸収

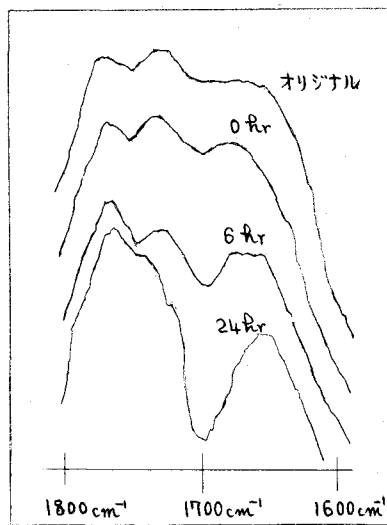


図-2 シェルの赤外線吸収

とはタイムスケールの長いウェザリングによる老化の現象とよく一致している。表-3は組成分別の結果であるが、貯蔵時間の増加と共に低分子量成分が減少し高分子成分のレジン、アスファルテンの増大が見られる。表-4の平均分子量はこれに対応し、貯蔵時間と共に顕著に増加の傾向を示した。

表-3 ワフラの組成分別値

組成 貯蔵時間	パラフィン	芳香成分	レジン	アスファルテン
オリジナル	25.9	39.7	22.7	11.7
0 Rr	27.2	24.6	28.2	20.0
6 Rr	21.7	15.3	33.1	29.9
24 Rr	19.0	16.2	33.3	31.5

以上の結果よりホットストレージによるアスファルトの硬化は酸化及び平均分子量の増大とを考慮する必要があるといえる。分子量の増大の原因は低分子量の蒸発と重合によるものとを分けて検討すべきである。又W.H.King, Jr.²⁾によるとアスファルテン及びレジンは薄膜加熱では酸化により増量すると報告している。従って薄膜加熱試験の減量から複雑なアスファルトの老化機構を議論することは極めて危険と思われる。

表-4 平均分子量の変化

ワフラ			シェル		
オリジナル	0 Rr	24 Rr	オリジナル	0 Rr	24 Rr
627	718	985	582	888	984

引用文献 1). Anal. Chem., 41, 823 (1969) 2). Anal. Chem., 41, 580 (1969)