

アスファルトの紫外線劣化と カーボンブラック添加効果に関する研究

学位論文内容の要旨

アスファルトの耐久性を向上させるには、供用中の劣化現象を把握することが必要であり、特に劣化因子として光（紫外線）の影響に着目することが不可欠であるとの観点から、本研究では、これまで確立されていなかった紫外線に関わる新規の劣化試験方法を開発し、供用中のアスファルト被膜の劣化挙動を簡単、迅速に室内で再現できるようにするとともに、その劣化の程度を定量的に評価できるようにした。また、アスファルトの紫外線による劣化を抑制するための一手段としてカーボンブラック添加の可能性を検討し、これがアスファルトの耐候性を改善するだけでなく、補強性改善にも効果的であることを明らかにした。

以下に、本研究で明らかとなった知見を各章ごとに要約する。

第1章序論では、本研究の意義と目的、ならびに本論文の全体構成について述べた。光（紫外線）は、これまでもアスファルト舗装の供用時における劣化因子の一つとして認識されながら、それに関わる劣化試験方法が存在しないことを述べ、この光による劣化挙動を迅速、的確に把握できるような試験方法ならびに評価手法が必要であることを説いた。また、耐久性に優れるアスファルトを得るための手段として、ゴムや樹脂の充てん材として知られるカーボンブラックを取り上げ、これを添加することによるアスファルト材料の耐候性、さらには補強性改善の可能性について述べた。

第2章では、光によるアスファルトの劣化挙動を調べるために考案した“プレス成膜手法を用いた紫外線劣化試験”の開発経緯について述べ、同法を適用した際のアスファルトの物理的、化学的な劣化挙動を明らかにした。すなわち、光による劣化は、アスファルトの弾性率を増大させ粘性を失わせるとともに、組成の変化により高分子量成分の構成比率を増やし、さらには酸化により生成するカルボニル基を増大させることを確認した。また、その劣化の程度を、ほかの代表的な室内促進劣化試験と比較することにより、アスファルト層の表面近傍では光により短時間にいちじるしい劣化が生じることを明らかにし、劣化因子として光に目を向けることの必要性を提起した。

第3章では、光による劣化の程度を定量的に評価でき、かつ屋外暴露による劣化状態を室内試験で的確に再現できる試験方法として確立するために、プレス成膜手法を用いた紫外線劣化試験の試験条件に関する検討をおこなった。その結果、光による劣化は、アスファルト層の表面から深さ 200 μm までの範囲で影響が大きいこと、波長範囲 300～400 nm の紫外線による劣化がいちじるしいことを明らかにした。また、光の放射照度の影響は 33 W/m^2 ～78 W/m^2 までの範囲で小さく、供用時のアスファルトの劣化状態が、波長範囲 300～400 nm の紫外線積算照射量によって求められ

る可能性のあることを見出した。さらに、光による劣化挙動を評価するための標準的な試験条件(アスファルト膜厚 100mm, 放射照度 $<80\text{W/m}^2$, ブラックスタンダード温度 60°C)を提示した。

第4章では、第3章で提示した標準試験条件に基づいて、室内における紫外線促進劣化試験をおこない、紫外線照射量の増加につれてアスファルトの劣化が進行していくこと、紫外線積算照射量が 15MJ/m^2 未満の初期の段階において性状の変化が大きく、その後一定の劣化レベルに漸近していくことを確認した。また、この劣化挙動が国内三地区における屋外暴露試験のデータと良く一致することを示し、プレス成膜手法を用いた紫外線劣化試験が屋外で生じるアスファルト被膜の劣化状態を室内で再現する有効な試験方法であることを証した。さらに、劣化の程度が紫外線積算照射量で一義的に求められることより、供用中のアスファルト被膜の劣化は紫外線によるものが支配的であることを明らかにした。

第5章では、アスファルトを構成する成分ごとに紫外線劣化挙動を調査することにより、アスファルトの紫外線による劣化機構の解明を試みた。その結果、熱劣化や酸化劣化には比較的安定とされている飽和成分が、紫外線には敏感に反応してカルボニル基を生成し、レジン成分やアスファルテン成分へと変質することを明らかにした。一方、芳香族成分は、酸化反応とは異なる機構により劣化が進行し、レジン成分やアスファルテン成分へと変質する現象を確認した。

第6章では、アスファルトの耐候性を改善するための手段として、ゴムや樹脂など高分子工業の分野で耐候性改善用の充てん材として知られるカーボンブラックに着目し、これの添加がアスファルトの紫外線劣化挙動におよぼす影響について調査をおこなった。その結果、カーボンブラックがアスファルト材料に対しても紫外線劣化抑制機能を発揮することを見出した。また、その劣化抑制効果は、カーボンブラックがアスファルト被膜の表面近傍で、波長範囲 $300\sim 400\text{nm}$ の紫外線を遮り、アスファルト中の飽和成分のカルボニル基生成(酸化劣化)を抑える機構により発現することを明らかにした。さらに、カーボンブラック添加は紫外線劣化によるフラス脆化点の上昇を小幅に抑え、紫外線劣化後の破壊時のひずみは、カーボンブラック未添加のアスファルトよりも大きいことを確認した。

第7章では、アスファルトの機械的な補強を目的としたカーボンブラック添加の可能性について検討をおこなった。外割 $20\text{wt}\%$ までの範囲でカーボンブラックを添加した結果、常温域から高温側ではアスファルトの弾性率が増大して SHRP 試験規格の PG 判定に関わる最高供用温度が高温側に拡大するとともに、低温域では破壊時のひずみが大きくなることを明らかにした。すなわち、カーボンブラックの添加が、高温域における変形に対する抵抗性と低温域におけるひび割れに対する抵抗性を両立して改善する可能性のあることを見出した。さらに、カーボンブラックの添加が、アスファルトの線膨張係数を小さくすることも確認した。

第8章では、アスファルト混合物まで調査対象を拡げて、カーボンブラック添加の影響について検討をおこなった。その結果、混合物においてもアスファルト単体の性状が反映され、カーボンブラックの添加が高温域における耐流動性を改善し、線膨張係数も小さくすることを確認した。一方、カーボンブラック添加アスファルトを用いて混合物を作製する際には、低温性状(耐ひび割れ性)とのバランスを考慮して、アスファルト量を設定する必要があることを提言した。

第9章の結論は、本論文の総括として本研究で得られた成果、知見をとりまとめたものである。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 森 吉 昭 博

副 査 教 授 千 歩 修

副 査 教 授 船 水 尚 行

学 位 論 文 題 名

アスファルトの紫外線劣化と カーボンブラック添加効果に関する研究

近年アスファルト舗装の耐久性を向上させる研究が盛んに行われている。その多くは力学的な手法を用いて亀裂やわだち掘れを抑えることを目的としており、劣化面から舗装の耐久性を評価するのは未開発の分野で、今後の発展がまたれている状態にある。

本論文は、このような状況にあるアスファルト舗装中のアスファルトの劣化について、化学および力学の両面から研究し、アスファルト舗装上の有益な知見を得ることを目的として、有機物であるアスファルトの紫外線劣化とその対策方法について述べている。

本研究では、これまで確立されていなかった紫外線に関わる新規の劣化試験方法を開発し、供用中のアスファルト被膜の劣化挙動を簡単、迅速に室内で再現できるようにするとともに、その劣化の程度を定量的に評価できるようにした。また、アスファルトの紫外線による劣化を抑制するための一手段としてカーボンブラック添加の可能性を検討し、これがアスファルトの耐候性を改善するだけでなく、補強性改善にも効果的であることを明らかにした。

以下に、本研究で明らかとなった知見を各章ごとに要約する。

第1章序論では、本研究の意義と目的、ならびに本論文の全体構成について述べ、ここではこの光(紫外線)による劣化挙動を迅速、的確に把握できるような試験方法ならびに評価手法が必要であることを述べている。

第2章では、光によるアスファルトの劣化挙動を調べるために考案した“プレス成膜手法を用いた紫外線劣化試験”の開発経緯について述べ、同法を適用した際のアスファルトの物理的、化学的な劣化挙動を明らかにした。すなわち、光による劣化は、アスファルトの弾性率を増大させ粘性を失わせるとともに、組成の変化により高分子量成分の構成比率を増やし、さらには酸化により生成するカルボニル基を増大させることを確認した。

第3章では、プレス成膜手法を用い試料で屋外および屋内で紫外線劣化試験の試験条件に関

する検討をおこなった。その結果、光による劣化は、アスファルト層の表面から深さ 200 μm までの範囲で影響が大きいこと、波長範囲 300~400 nm の紫外線による劣化がいちじるしいことを明らかにした。また、光の放射照度の影響は 33 W/m^2 ~78 W/m^2 までの範囲で小さく、供用時のアスファルトの劣化状態が、波長範囲 300~400 nm の紫外線積算照射量によって求められる可能性のあることを見出した。

第4章では、紫外線照射量の増加につれてアスファルトの劣化が進行していくこと、紫外線積算照射量が 15 MJ/m^2 未満の初期の段階において性状の変化が大きく、その後一定の劣化レベルに漸近していくことを確認した。また、この劣化挙動が国内三地区における屋外暴露試験のデータと良く一致することを示し、プレス成膜手法を用いた紫外線劣化試験が屋外で生じるアスファルト被膜の劣化状態を室内で再現する有効な試験方法であることを証した。

第5章では、アスファルトを構成する成分ごとに紫外線劣化挙動を調査し、熱劣化や酸化劣化には比較的安定とされている飽和成分が、紫外線には敏感に反応してカルボニル基を生成し、レジン成分やアスファルテン成分へと変質することを明らかにした。一方、芳香族成分は、酸化反応とは異なる機構により劣化が進行し、レジン成分やアスファルテン成分へと変質する現象を確認した。

第6章では、アスファルトの耐候性を改善するための手段として、カーボンブラックに着目し、これの添加がアスファルトの紫外線劣化挙動におよぼす影響について調査をおこなった。その結果、カーボンブラックがアスファルト材料に対しても紫外線劣化抑制機能を発揮することを見出した。また、その劣化抑制効果は、カーボンブラックがアスファルト被膜の表面近傍で、波長範囲 300~400nm の紫外線を遮り、アスファルト中の飽和成分のカルボニル基生成(酸化劣化)を抑える機構により発現することを明らかにした。

第7章では、アスファルトの強度増強を目的としたカーボンブラック添加の可能性について検討をおこなった結果、常温域から高温側ではアスファルトの弾性率が増大して SHRP 試験規格の PG 判定に関わる最高供用温度が高温側に拡大するとともに、低温域では破壊時のひずみが大きくなることを明らかにした。すなわち、カーボンブラックの添加が、高温域における変形に対する抵抗性と低温域におけるひび割れに対する抵抗性を両立して改善する可能性のあることを見出した。

第8章では、アスファルト混合物に、カーボンブラック添加をすると、この添加が高温域における混合物の耐流動性を改善し、線膨張係数も小さくすることを確認した。

第9章の結論は、本論文の総括として本研究で得られた成果、知見をとりまとめたものである。

これを要するに、著者は、アスファルトの劣化について新知見を得たものであり、アスファルト舗装を用いた道路工学に貢献するところ大なるものがある。よって、著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。