

アスファルトの物理的諸性状に及ぼす 固形パラフィン分の影響について

道路研究室長 技官 小山 道 義
 応用理化学研究室長 技官 村 木 義 男
 道路研究室副室長 技官 河 野 文 弘
 応用理化学研究室 技官 竹 村 健

I ま え が き

舗装材料としてのアスファルト中に、固形パラフィン分の含有されることは、アスファルトの結合材としての性質を低下させ、また低温における脆化を著しくさせる傾向があるなどの理由により、一般に嫌われるところであるが、その害がどの程度のものか、あるいはどのような害があるかについては人によつて意見が異なり、未だ定説がない。J.I.S. にパラフィン含有量の規格がないのもこのためである。しかしながらアスファルト中において固形パラフィン分が結晶構造をとつていることは、今までの実験において既に推定されており、この固形パラフィン分の結晶析出は、アスファルトの温度による粘度変化などに大きく影響することが考えられ、更にこの無極性なパラフィン分の含有は、アスファルトの付着力にも影響を与えることが考えられる。よつて、本実験では2種のナフテン基アスファルトと、一つのパラフィン基アスファルトに固形パラフィンを人工的にそれぞれ0~20%添加したものについて、針入度、軟化点、粘度、比容積試験を行ない、アスファルト中の固形パラフィン含有率がこれらの物理的性質にどのような影響を与えるかを調べ、ついでこれらの固形パラフィン添加アスファルトを用いたマーシャル安定度試験を行なつて、固形パラフィンの存在がアスファルト合材の性質におよぼす直接的影響を検討した。

アスファルト中に天然に含まれている固形パラフィン分の影響と人工的に添加していった場合とでは、その物理的性状において差ができることは十分に考えられるが人工的に添加したものの性質を解析することによつて、固形パラフィンが天然に含まれているアスファルトの基礎的性質の傾向を知る上に参考になると思われたので本実験を行なつた。また原油基の相異によつても含まれた固形パラフィンがアスファルトの物理的性質におよぼす影響には差があることが推察されたので、上述のよう

に異なつた3種のアスファルトについて実験を行なつた。

II 実験の方法

i) 使用材料

本実験に用いたアスファルトの性状は表-1に示したとおりである。

また添加に用いた固形パラフィンは市販の溶融点35°C~55°Cのものである。

表-1

	針入度 (25°C, 5 sec 100 g)	軟化点 (°C)	アスファ ルテン分 (%)	針入度 指 数
アスファルト A	56	43	—	— 2.9
“ B	95	40	11	— 2.6
“ C	81	43.7	17	— 1.9

但し、アスファルト A, B はナフテン基、アスファルト C はパラフィン基原油

ii) アスファルトの規格試験および安定度試験

針入度、軟化点 (R & B) 試験は J. I. S. K-2530-1956, K-2531-1956 に基づいて行なつた。

安定度試験は Engineering Manual によるマーシャル試験法に準じて行ない、その供試体は、0.297~0.59 mm 砂が7, 0.074 mm 以下石粉2, アスファルト1の配合比のシートアスファルトで混合温度は130°C前後で行なつた。

iii) 比容積の測定²⁾

比容積の測定は図-1

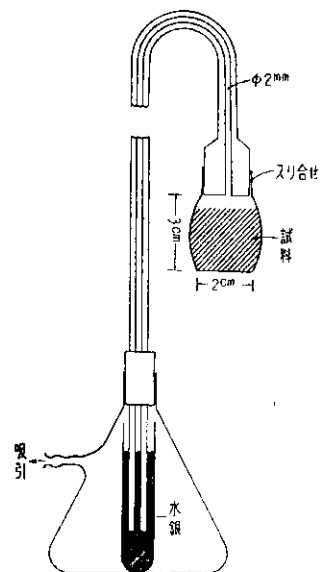


図-1

に見られるような装置を用いた。この装置は高さ3 cm、径2 cmの容器と径2 mmの毛管よりなっている。その操作の概略は次のとおりである。

最初に容器にアスファルトを精確に10 gr前後秤量し、その後毛管部とすり合せにより結合し、次に圧口瓶中で毛管部の他端を水銀中に図-1のようにひたし、真空ポンプにより 10^{-2} mmHg位まで吸引した後、吸引をやめ、徐々に空気を送りこんで水銀を容器および毛管に満たす。これを圧口瓶からはなした後、毛管中に細い針金を入れて余分の水銀を取り出し水銀柱の高さを調節する。容器中の水銀の量は、使用した水銀の減少量より求められる。これを恒温水槽中に入れ、 $1/5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 位の加熱速度で各温度における水銀柱の目盛を読み、次式により比容積の変化量を求めた。

$$\Delta S. V^{a_T} = \frac{l \cdot V_0(1 + 0.00001 t) - V_0^0 \cdot 0.00001 t - m^M \cdot 0.0000134 t}{m^a}$$

但し、

$\Delta S. V^{a_T}$: アスファルトの 0°C と $t^{\circ}\text{C}$ における比容積の差 cc/gr

l : 毛管の読み (水銀柱の高さの変化量) mm

V_0 : 0°C における毛管1 mmあたりの容積 cc/mm

V_0^0 : 0°C における水銀柱面までの容積

m^a, m^M : アスファルトおよび水銀の重量 gr

t : 温度 $^{\circ}\text{C}$

iv) 粘度の測定

粘度の測定は平行板微量粘度計³⁾により行なつた。平行板法の概略は次のとおりである。

よく磨いたガラス板 (2 cm \times 3 cm \times 0.8 cm) 上に約20~50 mgのアスファルト試料をのせ、これを 110°C 前後の空気槽中で約5分間あたためて2枚のガラス板を重ね合わせる。この際図-2(a)の装置を使用し、下から光を透して試料の厚さを一様にする。重ね合わせたガラス板は室温中で30分、測定水温槽中に30分装置した後図-2(b)に見られるような装置を用いて一方のガラス板を固

定し、他方は一定荷重をかけて移動させ、その移動を顕微鏡で観察し、移動距離はマイクロスイッチとペンシログラフを組合わせた装置を用いて自記させた。記録の一例を示すと図-3のようである。これを時間-移動距離の直角座標に書き代えれば、その勾配は移動速度 v_0 を示す。これから試料の見かけ粘度は

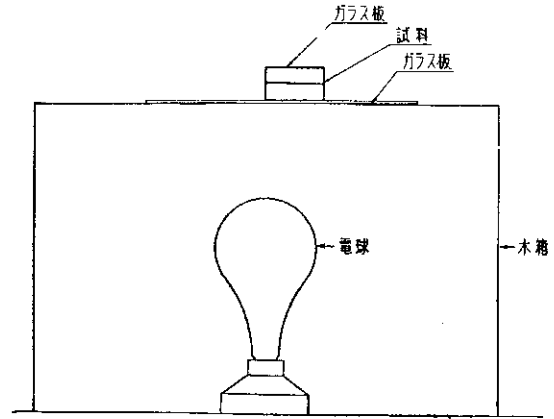


図-2(a) 平行板微量粘度計の試料調製装置

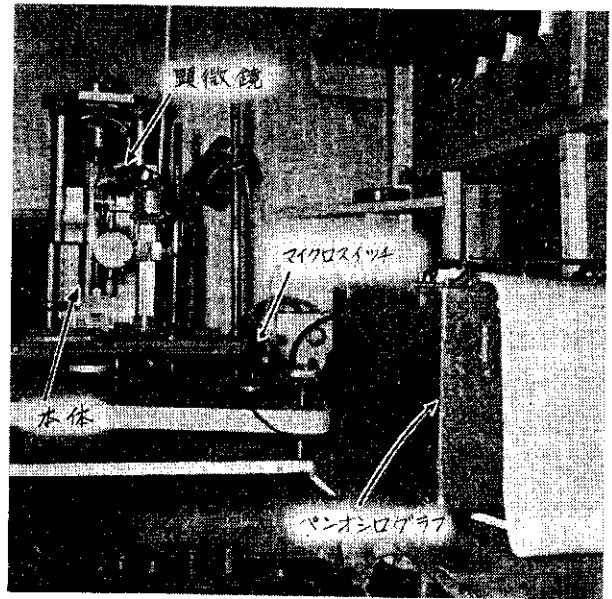


図-2(b) 平行板微量粘度計

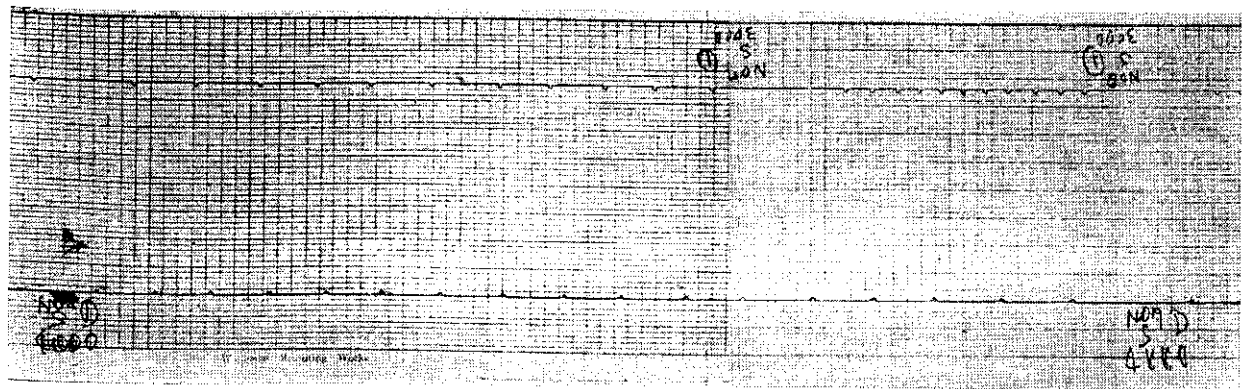


図-3 平行板微量粘度計による記録例

$$\eta = \frac{L \cdot r \cdot g}{o \cdot v_0} \quad (2)$$

から求められる。

- 但し、 η : 粘度 (poise)
 o : ガラス板の面積 (6 cm²)
 L : 荷重 (gr)
 g : 重力 (980 cm/sec²)
 r : 試料厚さ (cm)

III 実験結果とその考察

(1) 針入度、軟化点および針入度指数におよぼす固形パラフィンの影響

表-2 固形パラフィン添加による針入度、軟化点、針入度指数 (P. I.) の測定値

パラフィン量 (%)	asphalt A								asphalt B								asphalt C			
	0	1	3	5	7	10	15	20	0	1	3	5	7	10	15	20	0	3	7	20
針入度 (dmm)	56	75	106	—	120	130	133	95	95	97	100	—	125	—	—	200	81	84	95	112
軟化点 (°C)	43	41.7	39.5	—	37.7	37	38	39.5	40	39.7	39.5	39	39	38.7	38	35.4	43.7	43.3	42.5	41
P. I.	-2.9	-2.6	-2.5	—	-2.9	-3.0	-2.5	-2.9	-2.6	-2.7	-2.7	—	-2.3	—	—	-2.3	-1.9	-1.8	-1.8	1.8

表-2から、パラフィン含有率と針入度および軟化点との関係を図示すれば図-4および図-5のようである。すなわち、アスファルトAに固形パラフィン分を添加したものは、パラフィン分3%付近までは添加量の増加にともない針入度は急激に増加し、以後10%付近までは漸増し、それ以後は次第に減少する経過をたどる。軟化点はこれと対照的に、3%付近までは急激に、引き続いて10%までは漸次減少するが、それ以後は添加量の増加にしたがい上昇している。アスファルトBに固形パラフィンを添加したものは、その添加量の増加につれてほぼ直線的に針入度は増加し、軟化点は減少している。またアスファルトCはアスファルトBと同じ傾向を示すが、勾配は緩やかである。

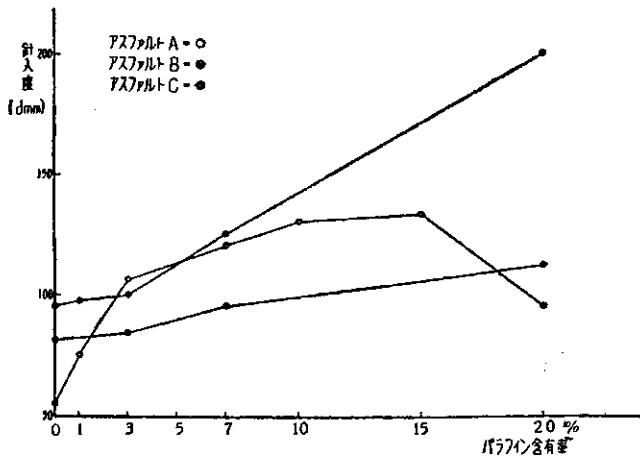


図-4 針入度—固形パラフィン含有率の関係

前述の3種のアスファルトに人工的に固形パラフィンを添加した各試料の針入度、軟化点および針入度指数 (P. I.) は表-2のとおりである。なお、針入度指数は次式から求めたもので、アスファルトの分類法の一つとして用いられているものである。

$$\text{針入度指数 (P. I.)} = \frac{30}{1+50(\text{P. T. S.})} - 10 \quad (3)$$

$$\text{P. T. S.} = \frac{\log 800 - \log P}{t - 25}$$

P : 針入度 (25°C 100 gr 5 sec)

t : 軟化点温度 (°C)

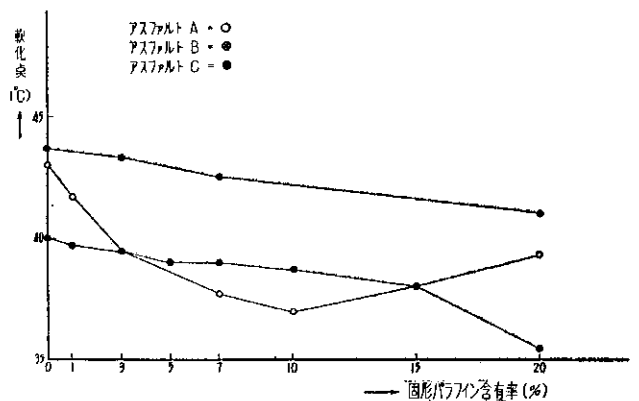


図-5 軟化点—固形パラフィン含有率の関係

以上のことから、一般にアスファルトは固形パラフィンの含有量の増加にともなつて針入度は増加し、軟化点は減少するが、なかには固形パラフィン分を多量に含有すれば、それより含有率の少ない時よりも針入度は減少し軟化点は上昇するものもあることが判る。

この固形パラフィン添加による針入度の増大は、固形パラフィンが単体の時と同じ状態 (結晶体) で、アスファルト中に存在しているとは考えられず、その大部分が流動性の形体すなわち、非結晶体で存在しているためであり、針入度の増大の度合の小さいものは固形パラフィンの結晶化のためと考えられる。

次にアスファルトの固形パラフィン含有率が、針入度指数にどのような影響を与えるかを、表-2および図-6から考察する。これらの図表から判るように、本実験範

イン
数(P.
式か
て用

(3)

圈内において固形パラフィンのいかなる含有率に対しても針入度指数にはほとんど変化がない。このことは針入度指数によつてアスファルト中に固形パラフィンが含有されているかどうかを判別することはできないことを示している。

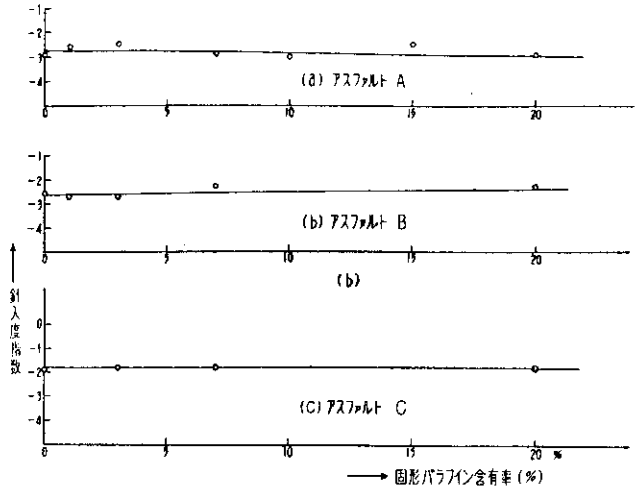
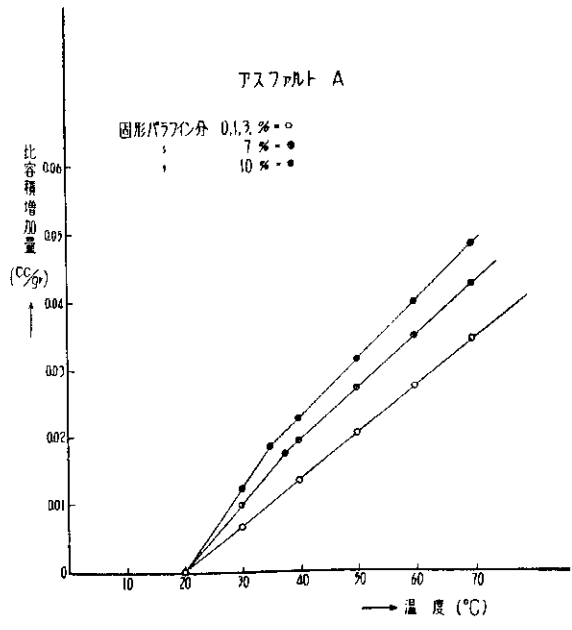


図-6 針入度指数—パラフィン含有率の関係

(2) 固形パラフィン添加アスファルトの温度に対する比容積変化

アスファルト中の固形パラフィンが、アスファルトの付着力を低下させ、低温脆化を助長するといわれるのは固形パラフィンがアスファルト中で結晶構造として存在するとき、このような傾向が大きいことが予想されるためである。

よつて前記の3種のアスファルトおよびこれらに固形パラフィンを、人工添加したアスファルトについて温度



変化に対する比容積変化量を調べ、これより各温度において固形パラフィンがどのような形でアスファルト中に存在しているかを検討した。図-7はその実験結果を示したものである。なお温度と比容積増加量との関係は温度に対する、内部構造の変化を調べる一手段として高分子物質の研究分野でよく用いられる方法である。

アスファルト A では 図-7(a) に見られるように固形パラフィン添加量 0, 1, 3% のものは温度と比容積増加量

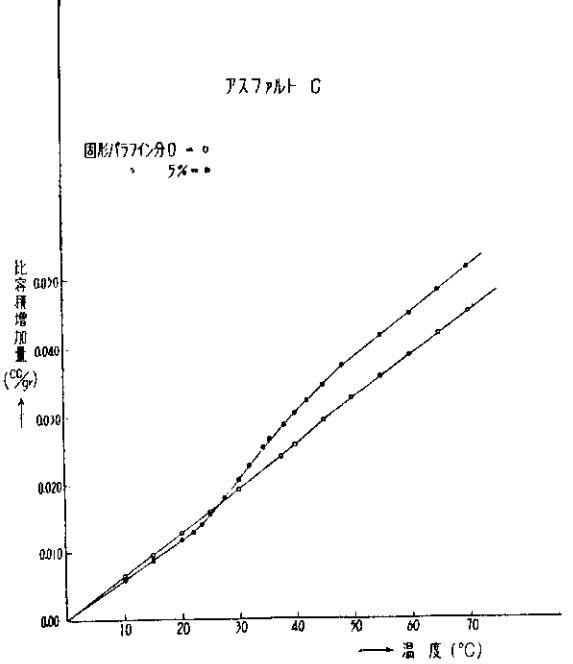
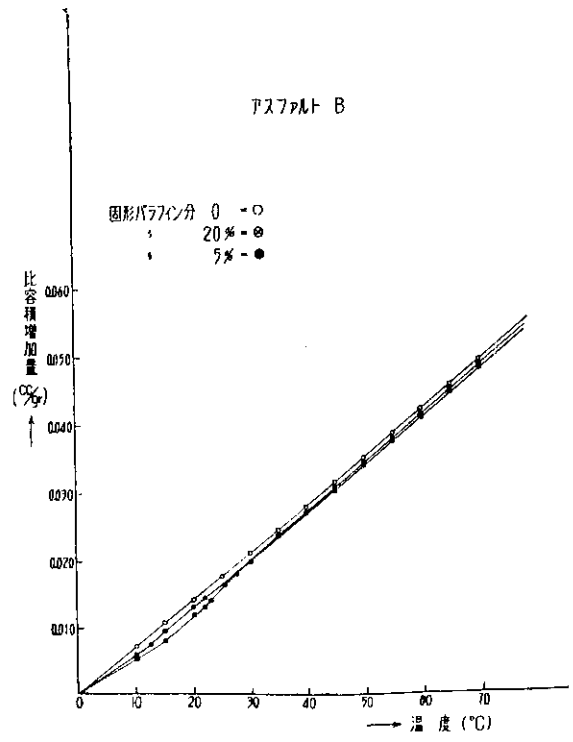


図-7 固形パラフィン添加による比容積—温度曲線

フィ
化点
含有
減少
固形
ファ
が流
であ
イン
入度
3-6
験範

との関係は直線で表わされ、7, 10% のものは 40°C 付近で折点を有する折線となつている。このことは固形パラフィンを含 7, 10% 含有するアスファルトはこの折点温度で内部構造が変化したためと推定され、しかも 0, 1, 3% のように比較的固形パラフィン含有量の少ないものには折点が見られないことから、この転移は固形パラフィンの結晶化のためと想像される。しかしながら固形パラフィン含有量の少ないものに転移点が見られなかつたのは測定温度範囲がせまかつたことと、測定精度がやや落ちていたためとも考えられ、また同じ理由から転移点の認められたものも転移温度範囲が確認できなかつた。よつてアスファルト B, アスファルト C については 0°~70°C の温度範囲で精度も 1 桁上げて測定した。その結果アスファルト B については 図-7 (b) に見られるように、固形パラフィン 5% 添加では 15°C 付近において微かに折点を確認され、20% では 15°C 付近から比容積の増加割合が大きくなり、30°~35°C でこれらは再び小さくなつている。これからアスファルト B 中における固形パラフィンは 15°C 以下ではその一部が結晶構造をとり、15°~35°C ではそれが漸次非結晶体に進み、更に 35°C 以上ではそのほとんどが非結晶体になるであろうことが推定される。アスファルト C では固形パラフィンを添加しない場合でも、37°~45°C 付近に折点が見られ、5% 添加のものは 20°~50°C の間で、比容積増加割合が著しく大きくなつてい

る。このように 3 つのアスファルトを比較してみると、同濃度の固形パラフィン量でもアスファルトの種類により比容積におよぼす影響には差が生じている。このことはアスファルトの種類がその中に含まれる固形パラフィンの結晶化の割合に大きな影響を与えているためと考えられ、上述 3 種のアスファルトでは含まれた固形パラフィンの結晶化のしやすさはアスファルト C>A>B の順であることが推定される。

(3) 温度に対する粘度変化におよぼす固形パラフィンの影響

アスファルト合材は、アスファルトの感温性があまり大きいと低温時に脆く、高温時に流動を起し易い。また小さすぎるとたわみ性舗装の特質である柔軟性を失う傾向がある。したがつてアスファルトの感温性は合材の性質に極めて重要な役割をもつ要素である。感温性とは温度変化に対する粘度変化の大小であり、一般には針入度軟化点によつてそれらを推定している。固形パラフィン添加によるアスファルトの針入度、軟化点の影響については、前述のような結果を得たが、ここでは固形パラフィン添加によつて直接的に感温性、すなわち温度に対する粘度変化が、どのようになるかについて検討した。また本項では先に行なつた針入度、軟化点、および温度変化による比容積増加量などの実験に現われた固形パラフ

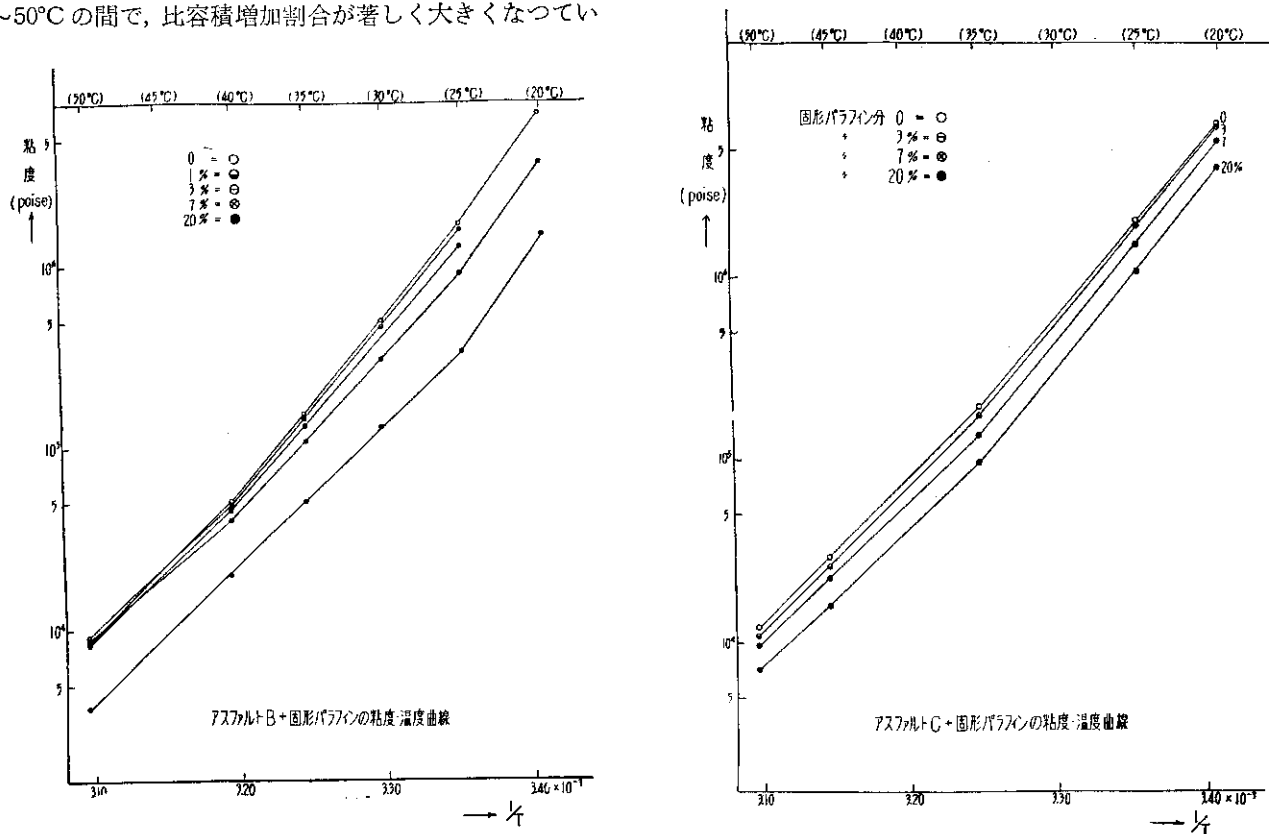


図-8 固形パラフィン添加によるアスファルトの粘度-温度曲線

イン添加による影響と本実験結果とを対比して考察を加えた。

アスファルトA系列については、試料の都合で実験できなかつたが、アスファルトBおよびCの実験結果は、図-8のとおりである。この図は粘度と温度との関係を表わすアンドレードの式

$$\eta = Ae^{B/T} \quad (4)$$

η : 粘度
 A, B : 定数
 T : 絶対温度

の対数をとつて、各温度の実測値から $\log \eta - 1/T$ 図を描いたものである。

アスファルトBは、固形パラフィン分の増加にしたがつて粘度-温度曲線は下方に位置し、おのおのの勾配はほとんど差がない。ただ多量に固形パラフィンを添加した場合は、20°C以下の温度でややその勾配が急になる傾向が見られるが、この測定温度においては明確な変移は確認できなかつた

アスファルトCは、35°C以上の温度ではその勾配がほとんど等しいが、35°C以下の温度では、固形パラフィン分の多いものほど急勾配になる傾向が見られた。これは先にも述べたように、アスファルトBでは固形パラフィンの結晶化の度が少ないため、その差が明確に現われないが、アスファルトCにおいては比容積-温度曲線に見られた結晶折出温度とその結晶化の度合と、この粘度

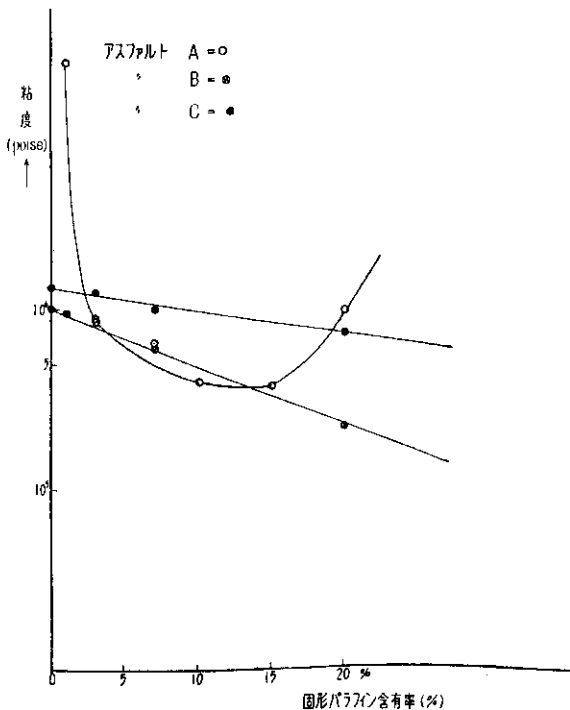


図-9 25°Cにおける粘度-固形パラフィン含有率の関係

一温度曲線における勾配ならびに折点における温度との間により一致を示している。

また実験的に求めた粘度- $\frac{\text{時間}}{\text{針入度}}$ 曲線のグラフを用いて、表-2の針入度の値から粘度を求め、25°Cにおける粘度-固形パラフィン含有率との関係を図示すると図-9のようになる。これからみて推定されることは、アスファルト中の固形パラフィン分の結晶化の度合は、同一濃度ではアスファルトC中において最大であり、アスファルトAとBとではその度合が $B > A$ のように考えられるが、比容積-温度曲線の結果からみてその順位は $C > A > B$ であろう。

(4) マーシャル安定度におよぼす固形パラフィン分の影響

今まで述べた実験結果から、アスファルトの結合材としての機能を支配すると考えられる諸要素は、固形パラフィンの含有率によつて大きく左右されることが判つた。そこで固形パラフィンの添加によつて、結合材としての機能を変えられたアスファルトが、アスファルト合材にどのような直接的影響を与えるかを検討するために固形パラフィン添加アスファルトを用いたアスファルト合材のマーシャル安定度試験を行なつた。

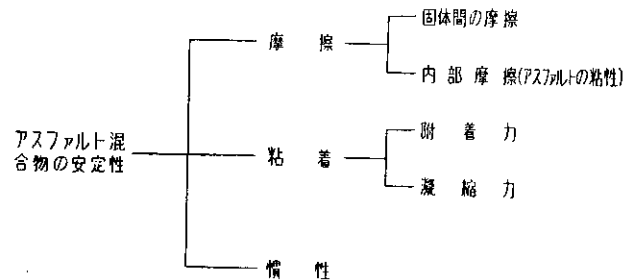


図-10 アスファルト合材を支配する要素

アスファルト合材の安定性に関係する要素は大別すると図-10に示されるように考えられている⁵⁾。骨材を一定とした場合のマーシャル安定度は図からも判るようにアスファルトの粘性抵抗およびアスファルト自身の凝縮力、ならびに骨材とアスファルトの付着力によつて大きく支配されるものと考えられる。ここでは固形パラフィン添加によつてアスファルト合材の安定度に与える上記の諸性質の影響の程度を検討することとした。

アスファルトAに固形パラフィンを種々の割合で添加したものに対するマーシャル安定度試験結果は図-11,12に示したとおりである。図-11は60°Cにおける安定度試験、図-12は25°Cにおける安定度試験であるが、図から判るように、前者は固形パラフィン分の増加にしたがつて安定度は直線的に急激に低下し、後者は二次曲線的に低下している。

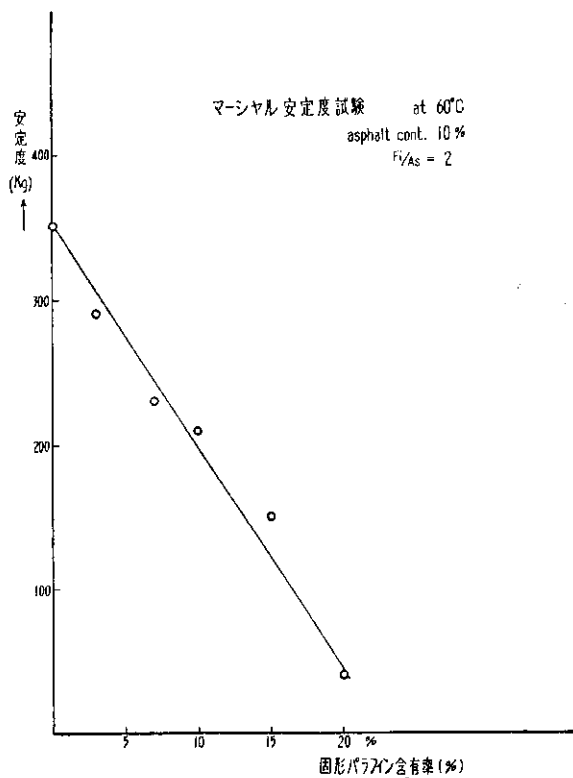


図-11 60°Cにおけるマーシャル安定度と固形パラフィン含有率との関係

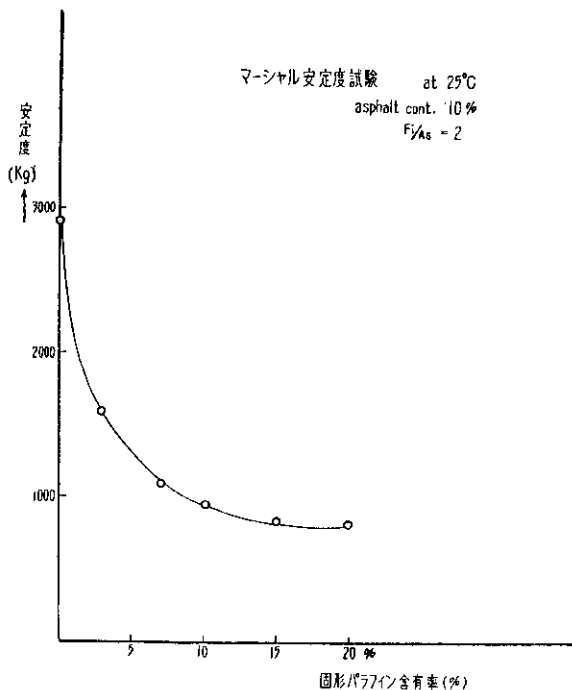


図-12 25°Cにおけるマーシャル安定度と固形パラフィン含有率との関係

このように、固形パラフィン分の添加につれて安定度が低下するのは、アスファルト中の固形パラフィンが上述の安定度を支配する要素の機能を低下させるためと推

定される。そこで上記の要素のうち粘度を代表させるものとして針入度を採りあげ、これと安定度との間にどのような関係があるかを吟味するため図-13のような針入度—安定度図を描いた。図-13(a)は60°Cにおける安定度と25°Cにおける針入度との関係であるが、固形パラフィン分3%までは針入度の増加に伴って安定度は低下している。しかし、更に固形パラフィン分が増加した場合は針入度が減少しているにもかかわらず安定度は低下している。このことは一般にいわれている“針入度の大きなものほど安定度は小さい”という概念から遠くはなれている。

上述の一般概念はアスファルトの付着力および凝縮力が同程度であり、更に25°Cにおける針入度とマーシャル試験時の供試体温度(一般には60°C)における針入度とが平行関係にある場合には一応うなづけることである。しかしながら25°Cの針入度と60°Cにおける針入度とはかならずしも平行関係にあるとはいえない。図-13に現われた一般概念に反する現象は、このことが原因となつていているということも考えられるので、念のために、25°Cにおける安定度について針入度との関係を求めたところ図-13(b)のように、図-13(a)と同様な結果を示した。このことは固形パラフィン分増加にともなう安定度の低下は針入度の増加によるためばかりではなく、結合力の低下も影響していると推定される。

そこでまず、安定度に針入度はどの程度の影響を与えるかを調べる目的で付着力および凝縮力が同程度である

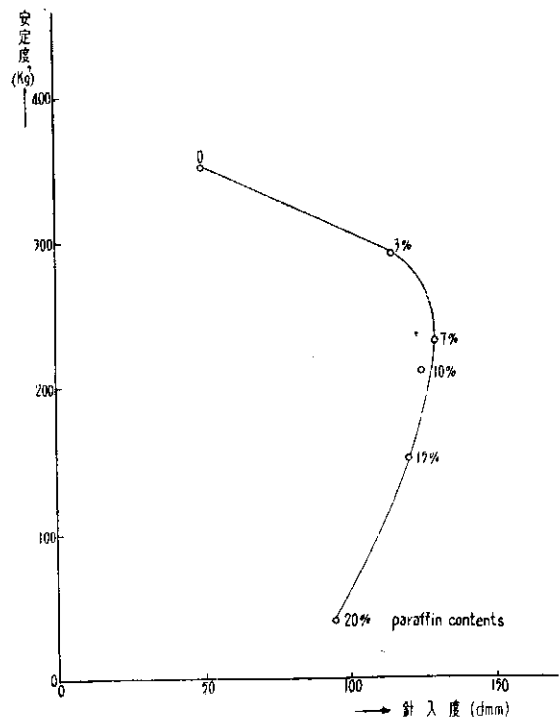


図-13(a)

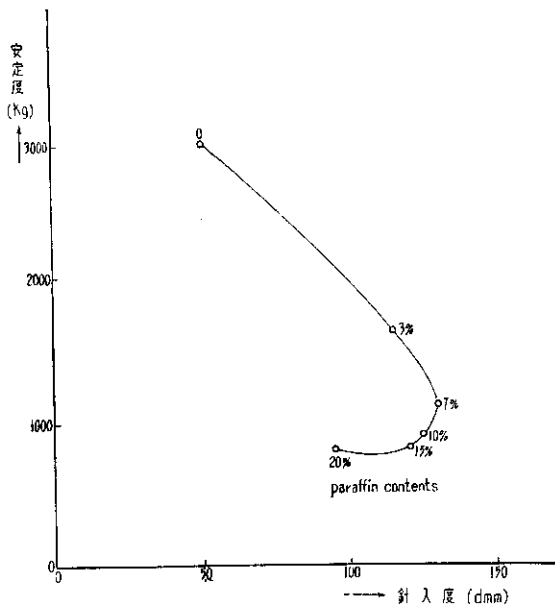


図-13 (b)

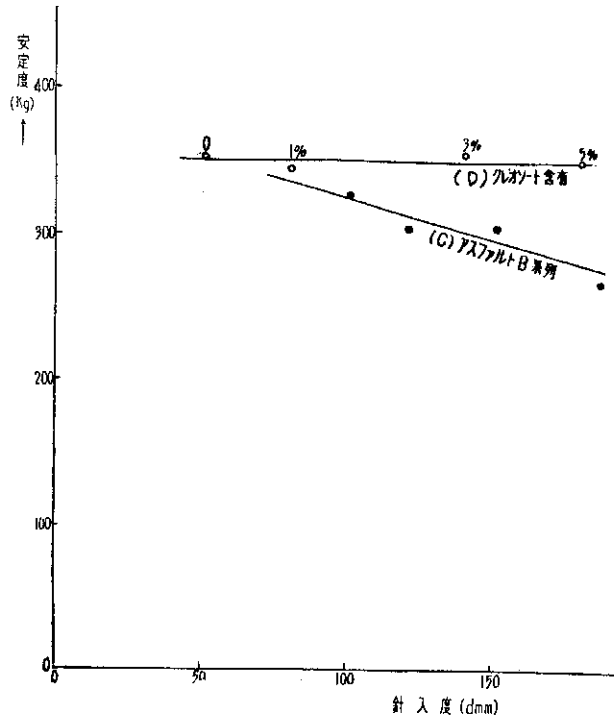


図-13 (c, d)

マーシャル安定度と針入度との関係

うと思われる、アスファルトB系列の針入度級 80~100, 100~120, 120~150, 150~200 のアスファルトを用いた合材について安定度試験を行なった。その結果 図-13 (c) のように針入度の増加にしたがってゆるい勾配で安定度は低下した。このことから、針入度すなわち粘度は安定度に影響を与えることが判った。次に、付着力の影響を調べるために、アスファルトAに付着力を増すクレオソートを混入したものをを用いたところ (d) に見られるように、針入度が大きくなつても安定度はほとんど変らなかつた。これと、(a) とを比較して見ると、同一針入度でも固形パラフィン添加の場合とクレオソート添加の場合では安定度に大きな差が見られる。この差は、固形パラフィン添加は骨材に対するアスファルトの付着力を低下させ一方クレオソート混入はその付着力を増加させていることに起因していると思われる。

このようにアスファルト合材の安定性は粘度ばかりでなく、その結合力によつて著しく影響され、固形パラフィンの多量の含有はこの点から有害であると想像される。

IV む す び

以上、舗装材料としてこのアスファルトの物理的諸性状に、その中に含まれる固形パラフィンがおよぼす影響について、2, 3 の実験および考察を加えたものであるがそれを総括していえることは、アスファルト中に固形パラフィンの含有は、舗装材料としてのアスファルトの性

質により結果をもたらさず、その判定は、従来行なわれてきた針入度、および軟化点試験からは判定されず、比容積-温度曲線、などによらなければならない。

またその他の判定方法として考えられる方法は、化学分析、X-線回析、などがあり、これらの詳細な分析方法については目下検討中であり追つて発表の予定である。またアスファルトの付着力、凝縮力、粘性とアスファルト合材の安定性との関連についても目下検討中である。

参 考 文 献

- 1) 小山・村木・河野・竹村：アスファルトの化学組成が物理的諸性状におよぼす影響について、土木試験所月報。第85号 (1960)。
- 2) 実験化学講座, 8, 高分子化学 (下) p. 88.
- 3) 板倉・菅原・中島・新田。マイクロビスコメーターおよびフラスコ破壊試験器の試作について、第5回道路会議発表 (1959)。
- 4) 竹村：針入度、軟化点と粘度の関係 (未発表)。
- 5) 竹下春見：アスファルトとアスファルト混合物の性質、土木技術資料, Vol. 1, No. 3 (1959)。