

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6373365号
(P6373365)

(45) 発行日 平成30年8月15日(2018.8.15)

(24) 登録日 平成30年7月27日(2018.7.27)

| | | |
|--------------|-----------|-------------|
| (51) Int.Cl. | | F I |
| CO8L 95/00 | (2006.01) | CO8L 95/00 |
| CO8L 53/02 | (2006.01) | CO8L 53/02 |
| CO8F 297/04 | (2006.01) | CO8F 297/04 |
| EO1C 7/18 | (2006.01) | EO1C 7/18 |

請求項の数 10 (全 31 頁)

| | | | |
|---------------|------------------------------|-----------|--|
| (21) 出願番号 | 特願2016-517941 (P2016-517941) | (73) 特許権者 | 000000033 旭化成株式会社 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 |
| (86) (22) 出願日 | 平成27年5月8日(2015.5.8) | (74) 代理人 | 100079108 弁理士 稲葉 良幸 |
| (86) 国際出願番号 | PCT/JP2015/063299 | (74) 代理人 | 100109346 弁理士 大貫 敏史 |
| (87) 国際公開番号 | W02015/170739 | (74) 代理人 | 100117189 弁理士 江口 昭彦 |
| (87) 国際公開日 | 平成27年11月12日(2015.11.12) | (74) 代理人 | 100134120 弁理士 内藤 和彦 |
| 審査請求日 | 平成28年10月12日(2016.10.12) | (72) 発明者 | 中島 滋夫 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 |
| (31) 優先権主張番号 | 特願2014-96959 (P2014-96959) | | |
| (32) 優先日 | 平成26年5月8日(2014.5.8) | | |
| (33) 優先権主張国 | 日本国(JP) | | |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アスファルト組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

ブロック共重合体0.5質量部以上20質量部以下と、
アスファルト100質量部と、を含有し、
前記ブロック共重合体が、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック(A)、及び共役ジエン単量体単位とビニル芳香族単量体単位を含む共重合体ブロック(B)を有し、前記ブロック共重合体中の前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が、20質量%以上60質量%以下であり、
前記ブロック共重合体中の前記重合体ブロック(A)の含有量が、10質量%以上40質量%以下であり、
前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、40%以上95%以下であり、
前記アスファルトのコロイダルインデックス(飽和分含有量+アスファルテン分含有量)/(レジン分含有量+芳香族分含有量)が、0.36以上0.54以下であり、かつ飽和分の含有量が11質量%以下であり、
前記ブロック共重合体が、動的粘弾性のスペクトルにおいて、-70以上0以下の範囲に損失正接のピークトップを有し、前記ピークトップの値が、0.8以上1.6以下である、アスファルト組成物。

【請求項2】

前記ブロック共重合体が、動的粘弾性のスペクトルにおいて、-45以上-20以

下の範囲に損失正接のピークトップを有する、請求項 1 に記載のアスファルト組成物。

【請求項 3】

前記アスファルトのコロイダルインデックス (C i) と、前記ブロック共重合体の動的粘弾性のスペクトルにおける損失正接のピーク温度 (T g ()) と、が以下の関係を満たす、請求項 1 又は 2 に記載のアスファルト組成物。

$$C i = 0.0127 \times T g + 0.94$$

【請求項 4】

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、50%以上90%以下である、請求項 1 ~ 3 に記載のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【請求項 5】

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、60%以上90%以下である、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【請求項 6】

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位が、1, 2 - 結合及び / 又は 3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a) と、1, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (b) と、からなり、

前記共役ジエン単量体単位の総含有量を 100 質量%とした場合に、

前記共役ジエン単量体単位 (a) が水添されたアルケニル単量体単位 (a 1) の含有量が、10 質量%以上50 質量%以下であり、

前記共役ジエン単量体単位 (b) が水添されたアルケニル単量体単位 (b 1) の含有量が、0 質量%以上80 質量%以下であり、

水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (a 2) と水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (b 2) の含有量の和が、0 質量%以上90 質量%以下である、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【請求項 7】

前記ブロック共重合体の重量平均分子量が、50000 以上 300000 以下である、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【請求項 8】

前記ブロック共重合体が、水酸基、酸無水物基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、シラノール基、及びアルコキシシラン基からなる群から選択される少なくとも一つの官能基を有する、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【請求項 9】

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位の総含有量に対して、1, 2 - 結合及び / 又は 3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a) の含有量が、10 質量%以上50 質量%以下である、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載のアスファルト組成物。

【請求項 10】

前記アスファルトの針入度が、60 を超え、80 以下である、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、アスファルト組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、アスファルト組成物は、道路舗装、遮音シート、アスファルトルーフィング等の用途に広く利用されている。このようなアスファルト組成物には、用途に応じた性能を付加するために種々のポリマーが添加される。例えば、エチレン - 酢酸ビニル共重合体、エチレン - エチルアクリレート共重合体、ゴムラテックス、共役ジエンとビニル芳香族炭化水素とからなるブロック共重合体等が添加されている。

【0003】

10

20

30

40

50

近年、道路通行車両の増大、あるいは車両の高速化といった事情に伴って、優れた強度、耐流動性、耐摩耗性を有するアスファルト組成物の要求がますます高まっている。このため、軟化点がより高く、弾性率等の機械的強度が高いアスファルト組成物が必要とされてきており、上記各種共重合体の分子量を上げることにより改良を図る試みがなされている。

【0004】

しかしながら、高温貯蔵時の貯蔵安定性に関して十分な性能が得られず、また、熔融粘度が高くなり道路舗装時の施工性も劣化するという問題を生じている。

【0005】

このため、アロマ系オイルを添加したり、硫黄や過酸化物を添加し架橋を行ったりすることにより、貯蔵安定性の改良が図られている。

10

【0006】

例えば、硫黄の使用（例えば、特許文献1参照。）、また硫黄と加硫剤、さらには硫黄含有加硫促進剤の併用を行う技術が開示されている（例えば、特許文献2参照。）。

【0007】

また、特殊構造を有する共役ジエンとビニル芳香族炭化水素とからなる共重合体を用いたアスファルト組成物についての開示もなされている（例えば、特許文献3参照。）。

【0008】

また、ビニル芳香族炭化水素と共役ジエンとからなるブロック共重合体にフィラーを含有するルーフィングシングル用アスファルト組成物についての開示もなされている（例えば、特許文献4参照。）。

20

【0009】

さらに、ビニル芳香族炭化水素と共役ジエンとからなるブロック共重合体に、水素を添加した水添共重合体を用いたアスファルト組成物についても開示されている（例えば、特許文献5参照。）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0010】

【特許文献1】特公昭57-24385号公報

【特許文献2】特開平3-501035号公報

30

【特許文献3】米国特許出願公開第2003/0149140号明細書

【特許文献4】米国特許第6,120,913号明細書

【特許文献5】特開2003-238813号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

しかしながら、特許文献1、2に開示されている改良方法においても、未だ高温貯蔵時の貯蔵安定性について、満足できる結果が得られておらず、さらなる改良が望まれている。

【0012】

40

また、特許文献3に開示されている組成物は、軟化点、高温貯蔵安定性の特性バランスにおいて不十分であり、伸度にも劣るという問題を有している。

【0013】

また、特許文献4に開示されている組成物は、通常のビニル芳香族炭化水素と共役ジエンとからなるブロック共重合体を使用しているため、高温貯蔵安定性が不十分であることから、アスファルト防水シートのシングルとして用いることができないという問題を有している。

【0014】

さらに、特許文献5に開示されている組成物は、ビニル芳香族化合物の含有量が多いため、高温貯蔵安定性が優れるものの、軟化点、伸度において十分な特性が得られず、道路

50

舗装用として用いることができないという問題を有している。

【 0 0 1 5 】

一方、アスファルトは、原油の産地、精製所によって、A：飽和分、B：アスファルテン分、C：レジン分、D：芳香族分の4成分の比率が異なることが知られている。ポリマーの構造によって、これらの成分の違いがアスファルト組成物の物性に大きく影響を与え、軟化点が低く、高温貯蔵後の軟化点変化から判断できる高温貯蔵安定性が不十分であったり、耐わだち掘れ性や溶解性が劣ったりとするという問題がある。

【 0 0 1 6 】

本発明は、上記問題点に鑑みてなされたものであり、軟化点、伸度が高く、熔融粘度が低く、また、耐わだち掘れ性、高温貯蔵安定性に優れるアスファルト組成物を提供することを目的とする。

10

【課題を解決するための手段】

【 0 0 1 7 】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討を行った結果、特定の構造を有するブロック共重合体と特定の組成のアスファルトからなる組成物であれば、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成した。

【 0 0 1 8 】

すなわち、本発明は、以下の通りである。

〔 1 〕

ブロック共重合体 0.5 質量部以上 20 質量部以下と、

20

アスファルト 100 質量部と、を含有し、

前記ブロック共重合体が、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック (A)、及び共役ジエン単量体単位とビニル芳香族単量体単位を含む共重合体ブロック (B) を有し、前記ブロック共重合体中の前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が、20 質量%以上 60 質量%以下であり、

前記ブロック共重合体中の前記重合体ブロック (A) の含有量が、10 質量%以上 40 質量%以下であり、

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、40%以上 100%以下であり、

前記アスファルトのコロイダルインデックス ((飽和分含有量 + アスファルテン分含有量) / (レジン分含有量 + 芳香族分含有量)) が、0.30 以上 0.54 以下であり、かつ飽和分の含有量が 11 質量%以下である、

30

アスファルト組成物。

〔 2 〕

前記ブロック共重合体が、動的粘弾性のスペクトルにおいて、-70 以上 0 以下の範囲に損失正接のピークトップを有し、前記ピークトップの値が、0.7 以上 2.0 以下である、前項〔1〕に記載のアスファルト組成物。

〔 3 〕

前記ブロック共重合体が、動的粘弾性のスペクトルにおいて、-45 以上 -20 以下の範囲に損失正接のピークトップを有する、前項〔1〕又は〔2〕に記載のアスファルト組成物。

40

〔 4 〕

前記アスファルトのコロイダルインデックス (Ci) と、前記ブロック共重合体の動的粘弾性のスペクトルにおける損失正接のピーク温度 (Tg ()) と、が以下の関係を満たす、前項〔1〕～〔3〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

$$C_i = 0.0127 \times T_g + 0.94$$

〔 5 〕

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、50%以上 90%以下である、前項〔1〕～〔4〕に記載のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

50

〔 6 〕

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、60%以上90%以下である、前項〔 1 〕～〔 5 〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

〔 7 〕

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位が、1, 2 - 結合及び/又は3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a) と、1, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (b) と、からなり、

前記共役ジエン単量体単位の総含有量を100質量%とした場合に、

前記共役ジエン単量体単位 (a) が水添されたアルケニル単量体単位 (a 1) の含有量が、10質量%以上50質量%以下であり、

前記共役ジエン単量体単位 (b) が水添されたアルケニル単量体単位 (b 1) の含有量が、0質量%以上80質量%以下であり、

水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (a 2) と水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (b 2) の含有量の和が、0質量%以上90質量%以下である、前項〔 1 〕～〔 6 〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

〔 8 〕

前記ブロック共重合体の重量平均分子量が、50000以上300000以下である、前項〔 1 〕～〔 7 〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

〔 9 〕

前記ブロック共重合体が、水酸基、酸無水物基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、シラノール基、及びアルコキシシラン基からなる群から選択される少なくとも一つの官能基を有する、前項〔 1 〕～〔 8 〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

〔 10 〕

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位の総含有量に対して、1, 2 - 結合及び/又は3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a) の含有量が、10質量%以上50質量%以下である、前項〔 1 〕～〔 9 〕のいずれかに記載のアスファルト組成物。

〔 11 〕

前記アスファルトの針入度が、60を超え、80以下である、前項〔 1 〕～〔 10 〕のいずれか一項に記載のアスファルト組成物。

【発明の効果】

【 0 0 1 9 〕

本発明によれば、軟化点、伸度が高く、熔融粘度が低く、また、耐わだち掘れ性、高温貯蔵安定性に優れるアスファルト組成物を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 2 0 〕

以下、本発明を実施するための形態 (以下、「本実施形態」という) について、詳細に説明する。本発明は以下の本実施形態に限定されるものではなく、その要旨の範囲内で種々変形して実施できる。

【 0 0 2 1 〕

〔アスファルト組成物〕

本実施形態のアスファルト組成物は、

ブロック共重合体 0.5 質量部以上 20 質量部以下と、

アスファルト 100 質量部と、を含有し、

前記ブロック共重合体が、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック (A) 、及び共役ジエン単量体単位とビニル芳香族単量体単位を含む共重合体ブロック (B) を有し、

前記ブロック共重合体中の前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が、20質量%以上60質量%以下であり、

前記ブロック共重合体中の前記重合体ブロック (A) の含有量が、10質量%以上40

10

20

30

40

50

質量%以下であり、

前記ブロック共重合体の前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、40%以上100%以下であり、

前記アスファルトのコロイダルインデックス（（飽和分含有量+アスファルテン分含有量）/（レジン分含有量+芳香族分含有量））が、0.30以上0.54以下であり、かつ飽和分の含有量が11質量%以下である。

【0022】

〔ブロック共重合体〕

本実施形態のブロック共重合体は、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）、及び共役ジエン単量体単位とビニル芳香族単量体単位を含む共重合体ブロック（B）を有し、前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が、20質量%以上60質量%以下であり、前記重合体ブロック（A）の含有量が、10質量%以上40質量%以下であり、前記共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率が、40%以上100%以下である。

10

【0023】

本実施形態において、「共役ジエン単量体単位」とは、共役ジエン化合物が重合した結果生じる、共役ジエン化合物1個当たりの単位である。なお、本明細書中、共役ジエン単量体単位は、水添前後に係らず「共役ジエン単量体単位」と称する。

【0024】

共役ジエン化合物は一对の共役二重結合を有するジオレフィンである。共役ジエン化合物としては、特に限定されないが、例えば、1,3-ブタジエン、2-メチル-1,3-ブタジエン（イソプレン）、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、2-メチル-1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン等が挙げられる。中でも、好ましくは1,3-ブタジエン及びイソプレンである。共役ジエン化合物は一種のみならず二種以上を使用してもよい。

20

【0025】

本実施形態において、「ビニル芳香族単量体単位」とは、ビニル芳香族化合物が重合した結果生じる、ビニル芳香族化合物1個当たりの単位である。

【0026】

ビニル芳香族化合物としては、特に限定されないが、例えば、スチレン、*p*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、ジビニルベンゼン、1,1-ジフェニルエチレン、*N,N*-ジメチル-*p*-アミノエチルスチレン、*N,N*-ジエチル-*p*-アミノエチルスチレン等が挙げられる。ビニル芳香族化合物は一種のみならず二種以上を使用してもよい。

30

【0027】

〔重合体ブロック（A）〕

本実施形態において、重合体ブロック（A）とは、ビニル芳香族単量体単位を主体とするブロックである。ここで「主体とする」とは、重合体ブロック（A）中にビニル芳香族単量体単位を、95質量%を超えて、100質量%以下含むことをいい、好ましくは96質量%以上100質量%以下含むことをいい、より好ましくは97質量%以上100質量%以下含むことをいう。

【0028】

重合体ブロック（A）の含有量は、ブロック共重合体全体に対して、10質量%以上40質量%以下であり、好ましくは13質量%以上35質量%以下であり、より好ましくは20質量%以上30質量%以下であり、さらに好ましくは17質量%以上22質量%以下である。重合体中の重合体ブロック（A）の含有量が上記範囲内にあることにより、軟化点、及び高温貯蔵安定性がより向上する。

40

【0029】

本実施形態において、重合体ブロック（A）の含有量は、四酸化オスミウムを触媒として重合体をターシャリーブチルヒドロパーオキシドにより酸化分解する方法（I. M. KOLTHOFF, et al., J. Polym. Sci. 1, p. 429 (1946)）に記載の方法）で求めたビニル芳香族重合体ブロック成分の質量（但し、平均重合度が

50

約30以下のビニル芳香族重合体ブロック成分は除かれている)を用いて、次の式から求めることができる。

重合体ブロック(A)の含有量(質量%) = (ビニル芳香族重合体ブロック成分の質量 / 重合体の質量) × 100

【0030】

重合体の水添されている場合、重合体中の重合体ブロック(A)の含有量は水添前の重合体ブロック(A)の重合体に対する含有量とほぼ等しいので、本実施形態においては、重合体の水添されている場合の重合体中の重合体ブロック(A)の含有量は、水添前の重合体ブロック(A)の含有量として求めてもよい。

【0031】

〔重合体ブロック(B)〕

本実施形態において、共重合体ブロック(B)とは、共役ジエン単量体単位とビニル芳香族単量体単位を含むブロックであり、好ましくはビニル芳香族単量体単位の含有量が5質量%以上95質量%以下であるブロックである。

【0032】

本実施形態において、共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量は、アスファルト組成物の軟化点、耐わだち掘れ性(G^*/\sin)の観点から、好ましくは5質量%以上であり、より好ましくは20質量%以上であり、さらに好ましくは25質量%以上である。また、共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量は、アスファルト組成物の高温貯蔵安定性、伸度の観点から、好ましくは95質量%以下であり、より好ましくは50質量%以下であり、さらに好ましくは35質量%以下であり、よりさらに好ましくは30質量%以下である。

【0033】

なお、共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量(RS)は、ブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量(TS)から、上記重合体ブロック(A)の含有量(BS)を除いて求めることができる。

$$RS(\%) = (TS - BS) / (100 - BS) \times 100$$

【0034】

耐わだち掘れ性は、通常、実際の道路舗装と同様の骨材を含む配合物をホイールトラッキング試験で求める動的安定度(DS値)で判断されるが、本実施形態のアスファルト組成物の場合、後述する実施例記載の動的安定度の指標である G^*/\sin の値を測定し、耐わだち掘れ性を判断することができる。

【0035】

共重合体ブロック(B)はランダムブロックであることが好ましい。ここで「ランダム」とはブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の連続が10個以下である状態をいう。

【0036】

共重合体ブロック(B)の含有量は、ブロック共重合体に対して、好ましくは60質量%以上90質量%以下であり、より好ましくは65質量%以上85質量%以下であり、さらに好ましくは70質量%以上80質量%以下である。ブロック共重合体中の共重合体ブロック(B)の含有量が上記範囲内にあることにより、ブロック共重合体のアスファルト組成物における溶解性、及び軟化点がより向上する傾向にある。

【0037】

本実施形態における共重合体ブロック(B)中の短連鎖ビニル芳香族単量体重合部分の含有量は、重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量100質量%に対して、好ましくは50質量%以上であり、より好ましくは70質量%以上であり、さらに好ましくは80質量%以上であり、よりさらに好ましくは90質量%以上である。また、共重合体ブロック(B)中の短連鎖ビニル芳香族単量体重合部分の含有量の上限は、特に限定されないが、好ましくは100質量%以下であり、より好ましくは99質量%以下である。重合体ブロック(B)中の短連鎖ビニル芳香族単量体重合部分の含有量が上記範囲

10

20

30

40

50

内であることにより、ブロック共重合体とアスファルトとの相溶性、伸度、高温貯蔵安定性がより向上する傾向にある。

【0038】

ここで、「短連鎖ビニル芳香族単量体重合部分」とは、重合体ブロック(B)中の2～6個のビニル芳香族単量体単位からなる成分である。そして、短連鎖ビニル芳香族単量体重合部分の含有量は、重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量を100質量%とし、その中で2～6個繋がったビニル芳香族単量体単位の含有量として求められる。

【0039】

また、2個繋がったビニル芳香族単量体単位の含有量は、重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量100質量%に対して、好ましくは10質量%以上45質量%以下であり、より好ましくは13質量%以上42質量%以下であり、さらに好ましくは19質量%以上36質量%以下である。2個繋がったビニル芳香族単量体単位の含有量が上記範囲内であることにより、ブロック共重合体とアスファルトとの相溶性、伸度、高温貯蔵安定性がより向上する傾向にある。

10

【0040】

さらに、3個繋がったビニル芳香族単量体単位の含有量は、重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量100質量%に対して、好ましくは45質量%以上80質量%以下であり、より好ましくは45質量%以上75質量%以下であり、さらに好ましくは45質量%以上65質量%以下である。3個繋がったビニル芳香族単量体単位の含有量が上記範囲内であることにより、ブロック共重合体とアスファルトとの相溶性、伸度、高温貯蔵安定性がより向上する傾向にある。

20

【0041】

本実施形態において、ビニル芳香族単量体単位の含有量は、ブロック共重合体に対して、20質量%以上60質量%以下であり、好ましくは33質量%以上55質量%以下であり、より好ましくは37質量%以上48質量%以下であり、さらに好ましくは40質量%以上45質量%以下である。ブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量が上記範囲内であることにより、軟化点、伸度、アスファルト組成物の軟化点と伸度のバランスがより向上する。なお、ビニル芳香族単量体単位の含有量は、後述する実施例記載の方法で測定することができる。

30

【0042】

ブロック共重合体が水添されている場合の、ブロック共重合体に対するビニル芳香族単量体単位の含有量は、水添前のブロック共重合体に対するビニル芳香族単量体単位の含有量とほぼ等しいので、ブロック共重合体が水添されている場合のビニル芳香族単量体単位の含有量は、水添前のビニル芳香族単量体単位の含有量として求めてもよい。

【0043】

本実施形態において、共役ジエン単量体単位の総含有量中の水添されている共役ジエン単量体単位の含有量である水添率(モル%)、すなわち、共役ジエン単量体単位中の二重結合の水添率は、40%以上100%以下であり、好ましくは40%以上95%以下であり、より好ましくは50%以上90%以下であり、より好ましくは60%以上90%以下である。ブロック共重合体中の水添率が上記範囲であることにより、アスファルトとの相容性が優れ、軟化点、伸度及び高温貯蔵安定性の性能バランスが優れる。本実施形態において水添率は、後述する実施例記載の方法で求めることができる。

40

【0044】

ブロック共重合体は、動的粘弾性のスペクトルにおいて、 -70 以上 0 以下の範囲に損失正接のピークトップを有し、前記ピークトップの値が 0.7 以上 2.0 以下であることが好ましい。アスファルト組成物の軟化点、伸度、及び耐わだち掘れ性 (G^* / \sin) の性能バランスがより向上する傾向にある。

【0045】

アスファルト組成物の軟化点と伸度及び耐わだち掘れ性 (G^* / \sin) の性能バラ

50

ンスの観点から、損失正接のピークトップの範囲は、より好ましくは - 50 以上 - 10 以下であり、さらに好ましくは - 45 以上 - 20 以下である。

【0046】

また、アスファルト組成物の軟化点と伸度の観点から、ピークトップの値は、より好ましくは 0.8 以上 1.6 以下であり、さらに好ましくは 0.9 以上 1.4 以下であり、よりさらに好ましくは 1.0 以上 1.3 以下である。上記、tan δ ピーク高さや温度は、後述する実施例記載の方法により求めることができる。

【0047】

tan δ ピーク温度は、例えば共重合体ブロック (B) 中のビニル芳香族単量体単位と共役ジエン単量体単位の含有量の比率、共役ジエン化合物のミクロ構造、水添率等を制御することにより、-70 以上 0 以下の範囲に tan δ のピークトップを有するように調整することができる。例えば共重合体ブロック (B) 中のビニル芳香族単量体単位の比率を上げると tan δ のピークトップは高温側に有する傾向にあり、ビニル芳香族単量体単位の比率を下げると tan δ のピークトップは低温側に有する傾向にある。

10

【0048】

また、共重合体ブロック (B) の重合において温度と各単量体の添加時間もしくは添加回数を制御することにより、ピークトップの値を 0.7 以上 2.0 以下に調整することができる。具体的には、反応器内温を 56 ~ 90 の範囲内で、反応器内圧を 0.1 MPa ~ 0.50 MPa の範囲内で、かつ一定速度で添加する共役ジエン単量体とビニル芳香族単量体の添加時間を 10 ~ 60 分の範囲内もしくは、添加回数を 3 回以上とする。また、別の方法として、水添反応時の温度にも依存する傾向があり、上記いずれかの方法に加えて水添反応時の温度を 80 以上 120 以下にするとピークトップの値が 0.7 以上 2.0 以下に近づく傾向がある。

20

【0049】

本実施形態において、共役ジエン単量体単位は 1, 2 - 結合及び / 又は 3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a) と 1, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (b) からなる。

【0050】

ここで「1, 2 - 結合及び / 又は 3, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (a)」とは、共役ジエン化合物が 1, 2 - 結合及び / 又は 3, 4 - 結合で重合した結果生じる、共役ジエン化合物 1 個当たりの単位である。また「1, 4 - 結合に由来する共役ジエン単量体単位 (b)」とは、共役ジエン化合物が 1, 4 - 結合で重合した結果生じる、共役ジエン化合物 1 個当たりの単位である。

30

【0051】

ブロック共重合体中の共役ジエン単量体単位の総含有量に対する、共役ジエン単量体単位 (a) の含有量 (以下、ビニル結合量ともいう) は、アスファルト組成物の軟化点と伸度の性能バランスの観点から、好ましくは 10 質量% 以上 50 質量% 以下であり、より好ましくは 15 質量% 以上 45 質量% 以下であり、さらに好ましくは 20 質量% 以上 40 質量% 以下である。

【0052】

本実施形態において、共役ジエン単量体単位の総含有量を 100 質量% とした場合に、共役ジエン単量体単位 (a) が水添されたアルケニル単量体単位 (a1) の含有量は、10 質量% 以上 50 質量% 以下であり、共役ジエン単量体単位 (b) が水添されたアルケニル単量体単位 (b1) の含有量は、0 質量% 以上 80 質量% 以下であり、水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (a2) と水添後に水添されていない共役ジエン単量体単位 (b2) の含有量の和が 0 質量% 以上 90 質量% 以下であることが好ましい。このようなブロック共重合体を用いることにより、アスファルト組成物の軟化点と伸度の性能バランスがより向上する傾向にある。

40

【0053】

アスファルト組成物の軟化点と伸度の性能バランスの観点から、アルケニル単量体単位

50

(a 1) の含有量は、好ましくは 1 5 質量 % 以上 4 5 質量 % 以下であり、より好ましくは 2 0 質量 % 以上 4 0 質量 % 以下である。

【 0 0 5 4 】

また、アスファルト組成物の軟化点と伸度の性能バランスの観点から、アルケニル単量体単位 (b 1) の含有量は、好ましくは 1 0 質量 % 以上 7 0 質量 % 以下であり、より好ましくは 1 5 質量 % 以上 6 5 質量 % 以下であり、さらに好ましくは 3 0 質量 % 以上 6 5 質量 % 以下である。

【 0 0 5 5 】

さらに、アスファルト組成物の軟化点と伸度の性能バランスの観点から、共役ジエン単量体単位 (a 2) と共役ジエン単量体単位 (b 2) の含有量の和は、好ましくは 0 質量 % 以上 8 0 質量 % 以下であり、より好ましくは 5 質量 % 以上 7 0 質量 % 以下であり、さらに好ましくは 1 0 質量 % 以上 6 0 質量 % 以下である。

10

【 0 0 5 6 】

共役ジエン単量体単位 (a) が水添されたアルケニル単量体単位 (a 1) の含有量、共役ジエン単量体単位 (b) が水添されたアルケニル単量体単位 (b 1) の含有量、水添されなかったアルケニル単量体単位 (a 2) の含有量、水添されなかったアルケニル単量体単位 (b 2) の含有量は、後述する実施例記載の方法で求めることができる。

【 0 0 5 7 】

ブロック共重合体における水添前の共役ジエン単量体単位 (a) の含有量及び共役ジエン単量体単位 (b) のマイクロ構造 (シス、トランスとビニルの比率) は、後述する極性化合物等の使用により調整することができる。

20

【 0 0 5 8 】

本実施形態に用いるブロック共重合体は、アスファルト組成物の高い伸度、高い伸長回復性および 5 等の低温での高い伸度の点で、水酸基、酸無水物基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、シラノール基、及びアルコキシシラン基からなる群から選択される少なくとも一つの官能基を有することが好ましい。この中でも、ブロック共重合体が、アミノ基、及びアミド基からなる群から選択される少なくとも一つの官能基を有することがより好ましく、アミノ基を有することがさらに好ましい。ブロック共重合体は、その分子 1 m o l に対して、アミノ基、及びアミド基からなる群から選択される少なくとも一つの官能基を 2 m o l 以上含有することがより好ましい。なお、上記官能基は、後述するブロック共重合体の製造方法により導入することができる。

30

【 0 0 5 9 】

本実施形態において、ブロック共重合体のメルトフローレート (M F R) は、好ましくは 0 . 0 5 以上 1 0 以下であり、より好ましくは 0 . 0 5 以上 8 以下であり、さらに好ましくは 0 . 0 5 以上 6 以下である。ブロック共重合体の M F R が上記範囲内であることにより、アスファルト組成物の加工性と軟化点のバランスに優れる傾向にある。M F R の測定は、水添ブロック共重合体を使用し、メルトインデクサー (L 2 4 7 ; T E C H N O L S E V E N C O . , L T D 製) を用い、J I S K 7 2 1 0 に準じた方法により算出することができる。試験温度が 2 3 0 、試験荷重が 2 . 1 6 k g f であり、測定値の単位は g / 1 0 分間の L 条件で測定することが好ましい。

40

【 0 0 6 0 】

本実施形態において、アスファルト組成物の軟化点と熔融粘度のバランスの観点から、ブロック共重合体の重量平均分子量 (M w) は、好ましくは 5 0 0 0 0 以上 3 0 0 0 0 0 以下であり、より好ましくは 6 0 0 0 0 以上 2 8 0 0 0 0 以下であり、さらに好ましくは 7 0 0 0 0 以上 2 6 0 0 0 0 以下であり、よりさらに好ましくは 7 0 0 0 0 以上 2 0 0 0 0 0 未満である。

【 0 0 6 1 】

本実施形態において、アスファルト組成物の軟化点と熔融粘度のバランスの観点から、ブロック共重合体の分子量分布 (M w / M n) (重量平均分子量 (M w) の数平均分子量 (M n) に対する比) は、好ましくは 2 . 0 以下であり、より好ましくは 1 . 8 以下であ

50

り、さらに好ましくは1.5以下である。

【0062】

重量平均分子量及び分子量分布は、後述する実施例記載の方法で求めることができる。ブロック共重合体が水添されている場合の、重量平均分子量および分子量分布は水添前のブロック共重合体の重量平均分子量及び分子量分布とほぼ等しいので、ブロック共重合体が水添されている場合の重量平均分子量及び分子量分布は、水添前のブロック共重合体の重量平均分子量及び分子量分布を求めてもよい。

【0063】

本実施形態において、ブロック共重合体の構造に関しては、いかなる構造のものでも使用できる。例えば、下記式で表されるような構造を有するものが挙げられる。

$(A - B)_{n+1}$ 、 $A - (B - A)_n$ 、 $B - (A - B)_{n+1}$ 、 $[(A - B)_n]_m - X$ 、 $[(B - A)_n - B]_m - X$ 、 $[(A - B)_n - A]_m - X$ 、 $[(B - A)_{n+1}]_m - X$

(上記式において、各Aはそれぞれ独立して重合体ブロック(A)を表す。各Bはそれぞれ独立して共重合体ブロック(B)を表す。各nはそれぞれ独立して1以上の整数であり、好ましくは1~5の整数である。各mはそれぞれ独立して2以上の整数であり、好ましくは2~11の整数である。各Xはそれぞれ独立してカップリング剤の残基又は多官能開始剤の残基を表す。)

【0064】

ブロック共重合体は、上記式で表される構造を有するものの任意の混合物であってもよい。これらの中でも、A-B-A構造がアスファルトバインダ性能のバランスの点から好ましい。

【0065】

本実施形態において、共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位は、均一に分布していてもよいし、テーパ状、階段状、凸状、あるいは凹状に分布していてもよい。ここで、「テーパ構造」とは、共重合体ブロック(B)中のポリマー鎖に沿って、ビニル芳香族単量体単位の含有量が漸増する構造を意味する。共重合体ブロック(B)の重合開始直後の共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量をS1、重合途中、例えば導入した単量体の1/2が重合した時点での共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量をS2、重合完了後の共重合体ブロック(B)中のビニル芳香族単量体単位の含有量をS3とした場合、 $S2/S1 > 1$ 且つ $S3/S2 > 1$ の関係が成り立つ構造である。

【0066】

共重合体ブロック(B)には、ビニル芳香族単量体単位が均一に分布している部分及び/又はテーパ状に分布している部分がそれぞれ複数個存在していてもよい。また共重合体ブロック(B)には、ビニル芳香族単量体単位の含有量が異なるセグメントが複数個存在していてもよい。

【0067】

〔ブロック共重合体の製造方法〕

本実施形態のブロック共重合体は、例えば、炭化水素溶媒中で有機アルカリ金属化合物等の重合開始剤を用いてアニオンリビング重合により製造することができる。

【0068】

炭化水素溶媒としては、特に限定されないが、例えば、n-ブタン、イソブタン、n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタンなどの脂肪族炭化水素類；シクロヘキサン、シクロヘプタン、メチルシクロヘプタンなどの脂環式炭化水素類；及びベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼンなどの芳香族炭化水素等が挙げられる。

【0069】

重合開始剤としては、特に限定されないが、例えば、共役ジエン及びビニル芳香族化合物に対してアニオン重合活性を有する脂肪族炭化水素アルカリ金属化合物、芳香族炭化水素アルカリ金属化合物、有機アミノアルカリ金属化合物等が挙げられる。アルカリ金属と

10

20

30

40

50

しては、特に限定されないが、例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム等が挙げられる。

【0070】

本実施形態において、有機アルカリ金属化合物を重合開始剤として共役ジエン化合物とビニル芳香族化合物とを重合する際に、ブロック共重合体に組み込まれる共役ジエン単量体単位に起因するビニル結合（1，2 - 結合または3，4 - 結合）の量の調整や共役ジエンとビニル芳香族化合物とのランダム重合性を調整するために、極性化合物である、第3級アミン化合物またはエーテル化合物を添加してもよい。

【0071】

第3級アミン化合物としては、特に限定されないが、例えば、式 $R^1 R^2 R^3 N$ （ただし、 R^1 、 R^2 、 R^3 はそれぞれ独立して炭素数1から20の炭化水素基または第3級アミノ基を有する炭化水素基である）で表される化合物が挙げられる。

10

【0072】

具体的には、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、N，N - ジメチルアニリン、N - エチルピペリジン、N - メチルピロリジン、N，N，N'，N' - テトラメチルエチレンジアミン、N，N，N'，N' - テトラエチルエチレンジアミン、1，2 - ジピペリジノエタン、トリメチルアミノエチルピペラジン、N，N，N'，N''，N'' - ペンタメチルエチレントリアミン、N，N' - ジオクチル - p - フェニレンジアミン等が挙げられる。

【0073】

エーテル化合物としては、特に限定されないが、例えば、直鎖状エーテル化合物および環状エーテル化合物が挙げられる。

20

【0074】

直鎖状エーテル化合物としては、特に限定されないが、具体的には、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、ジフェニルエーテル； エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールジブチルエーテル等の、エチレングリコールのジアルキルエーテル化合物類； ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジブチルエーテル等の、ジエチレングリコールのジアルキルエーテル化合物類が挙げられる。

【0075】

環状エーテル化合物としては、特に限定されないが、具体的には、テトラヒドロフラン、ジオキサン、2，5 - ジメチルオキサラン、2，2，5，5 - テトラメチルオキサラン、2，2 - ビス（2 - オキサニル）プロパン、フルフリルアルコールのアルキルエーテル等が挙げられる。

30

【0076】

本実施形態において有機アルカリ金属化合物を重合開始剤として共役ジエン化合物とビニル芳香族化合物とを重合する方法は、バッチ重合であっても連続重合であってもよく、それらの組み合わせであってもよい。重合温度は、通常0 以上180 以下であり、好ましくは30 以上150 以下である。重合に要する時間は他の条件によって異なるが、通常は48時間以内であり、好ましくは0.1 ~ 10時間である。重合系の雰囲気は、窒素ガスなどの不活性ガス雰囲気にすることが好ましい。重合圧力は、上記重合温度範囲で単量体及び溶媒を液相に維持するのに十分な圧力の範囲であれば特に限定はない。重合系内は触媒及びリビング重合体を不活性化させるような不純物（水、酸素、炭酸ガスなど）が混入しないように留意する必要がある。

40

【0077】

本実施形態において、重合が終了した時点で2官能以上のカップリング剤を用いてカップリング反応を行うこともできる。2官能以上のカップリング剤には特に限定はなく、公知のものを用いることができる。

【0078】

2官能性のカップリング剤としては、特に限定されないが、例えば、ジメチルジクロロ

50

シラン、ジメチルジプロモシラン等のジハロゲン化合物；安息香酸メチル、安息香酸エチル、安息香酸フェニル、フタル酸エステル類等の酸エステル類等が挙げられる。

【0079】

3官能以上の多官能カップリング剤としては、特に限定されないが、例えば、3価以上のポリアルコール類；エポキシ化大豆油、ジグリシジルビスフェノールA等の多価エポキシ化合物；式 $R_4 - n Si X_n$ （ただし、各Rはそれぞれ独立して炭素数1から20の炭化水素基を表し、各Xはそれぞれ独立してハロゲン原子を表し、nは3または4を表す）で表されるハロゲン化珪素化合物、例えばメチルシリルトリクロリド、t-ブチルシリルトリクロリド、四塩化珪素、及びこれらの臭素化物；式 $R_4 - n Sn X_n$ （ただし、各Rはそれぞれ独立して炭素数1から20の炭化水素基を表し、各Xはそれぞれ独立してハロゲン原子を表し、nは3または4を表す）で表されるハロゲン化錫化合物、例えばメチル錫トリクロリド、t-ブチル錫トリクロリド、四塩化錫等の多価ハロゲン化合物が挙げられる。また、炭酸ジメチルや炭酸ジエチル等多官能カップリング剤として使用できる。

10

【0080】

なお、開始剤、単量体、カップリング剤、又は停止剤として、官能基を有する化合物を用いることにより、得られるブロック共重合体に官能基を付加することができる。

【0081】

官能基を含む開始剤としては、窒素含有基を含有する開始剤が好ましく、ジオクチルアミノリチウム、ジ-2-エチルヘキシルアミノリチウム、エチルベンジルアミノリチウム、(3-(ジブチルアミノ)-プロピル)リチウム、ピペリジノリチウム等が挙げられる。

20

【0082】

官能基を含む単量体としては、前述の重合に用いる単量体に、水酸基、酸無水物基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、シラノール基、アルコキシシラン基を含む化合物が挙げられる。この中でも窒素含有基を含有する単量体が好ましく、例えばN,N-ジメチルビニルベンジルアミン、N,N-ジエチルビニルベンジルアミン、N,N-ジプロピルビニルベンジルアミン、N,N-ジブチルビニルベンジルアミン、N,N-ジフェニルビニルベンジルアミン、2-ジメチルアミノエチルスチレン、2-ジエチルアミノエチルスチレン、2-ビス(トリメチルシリル)アミノエチルスチレン、1-(4-N,N-ジメチルアミノフェニル)-1-フェニルエチレン、N,N-ジメチル-2-(4-ビニルベンジロキシ)エチルアミン、4-(2-ピロリジノエチル)スチレン、4-(2-ピペリジノエチル)スチレン、4-(2-ヘキサメチレンイミノエチル)スチレン、4-(2-モルホリノエチル)スチレン、4-(2-チアジノエチル)スチレン、4-(2-N-メチルピペラジノエチル)スチレン、1-(4-ビニルフェノキシ)メチル)ピロリジン、及び1-(4-ビニルベンジロキシメチル)ピロリジン等が挙げられる。

30

【0083】

官能基を含むカップリング剤及び停止剤としては、前述のカップリング剤の内、水酸基、酸無水物基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、シラノール基、アルコキシシラン基を含む化合物が挙げられる。

【0084】

この中でも窒素含有基又は酸素含有基を含有するカップリング剤が好ましく、例えばテトラグリシジルメタキシレンジアミン、テトラグリシジル-1,3-ビスアミノメチルシクロヘキサン、テトラグリシジル-p-フェニレンジアミン、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、ジグリシジルアニリン、 ϵ -カプロラクトン、 ϵ -グリシドキシエチルトリメトキシシラン、 ϵ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 ϵ -グリシドキシプロピルトリフェノキシシラン、 ϵ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、 ϵ -グリシドキシプロピルジエチルエトキシシラン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、1,3-ジエチル-2-イミダゾリジノン、N,N'-ジメチルプロピレンウレア、及びN-メチルピロリドン等が挙げられる。

40

【0085】

50

〔水添方法〕

本実施形態において、ブロック共重合体を水添する場合の製造方法については特に限定はなく、公知の方法を用いることができる。

【0086】

ブロック共重合体を水添する際に使用する水添触媒としては、特に制限はされないが、従来から公知である、Ni、Pt、Pd、Ru等の金属をカーボン、シリカ、アルミナ、ケイソウ土等に担持させた担持型不均一系水添触媒；Ni、Co、Fe、Cr等の有機酸塩又はアセチルアセトン塩などの遷移金属塩と有機アルミニウム等の還元剤とを用いる、いわゆるチーグラ型水添触媒；Ti、Ru、Rh、Zr等の有機金属化合物等のいわゆる有機金属錯体等の均一系水添触媒が用いられる。

10

【0087】

水添触媒としては、例えば、特公昭63-4841号公報、特公平1-53851号公報、特公平2-9041号公報に記載された水添触媒を使用することができる。好ましい水添触媒としてはチタノセン化合物および/または還元性有機金属化合物との混合物が挙げられる。

【0088】

チタノセン化合物としては、特開平8-109219号公報に記載された化合物が使用できるが、具体的には、ビスシクロペンタジエニルチタンジクロライド、モノペンタメチルシクロペンタジエニルチタントリクロライド等の（置換）シクロペンタジエニル骨格、インデニル骨格あるいはフルオレニル骨格を有する配位子を少なくとも1つ以上もつ化合物が挙げられる。

20

【0089】

還元性有機金属化合物としては、有機リチウム等の有機アルカリ金属化合物、有機マグネシウム化合物、有機アルミニウム化合物、有機ホウ素化合物あるいは有機亜鉛化合物等が挙げられる。

【0090】

ブロック共重合体の水添反応は、通常0～200の温度範囲内、好ましくは30～150の温度範囲内で実施される。水添反応に使用される水素の圧力は、通常0.1MPa以上15MPa以下であり、好ましくは0.2MPa以上10MPa以下であり、より好ましくは0.3MPa以上5MPa以下である。水添反応時間は、通常3分～10時間であり、好ましくは10分～5時間である。水添反応は、バッチプロセス、連続プロセス、或いはそれらの組み合わせのいずれでも用いることができる。

30

【0091】

上記のようにして得られた水添されたブロック共重合体の溶液は、必要に応じて触媒残渣を除去し、水添されたブロック共重合体を溶液から分離することができる。溶媒の分離の方法としては、例えば水添後の反応液にアセトンまたはアルコール等の水添ブロック共重合体等に対する貧溶媒となる極性溶媒を加えてブロック共重合体を沈澱させて回収する方法、反応液を攪拌下熱湯中に投入し、スチームストリッピングにより溶媒を除去して回収する方法、または直接ブロック共重合体溶液を加熱して溶媒を留去する方法等を挙げることができる。本実施形態のブロック共重合体には、各種フェノール系安定剤、リン系安定剤、イオウ系安定剤、アミン系安定剤等の安定剤を添加することができる。

40

【0092】

〔アスファルト〕

本実施形態で用いることができるアスファルトとしては、特に限定されないが、例えば、石油精製の際の副産物（石油アスファルト）、または天然の産出物（天然アスファルト）として得られるもの、もしくはこれらと石油類を混合したもの等が挙げられる。その主成分は瀝青（ピチューメン）と呼ばれるものである。具体的には、ストレートアスファルト、セミブローンアスファルト、ブローンアスファルト、タール、ピッチ、オイルを添加したカットバックアスファルト、アスファルト乳剤等が挙げられる。これらは、1種単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

50

【 0 0 9 3 】

本実施形態のアスファルトは、アスファルト組成物の軟化点、耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）の観点から、アスファルトのコロイダルインデックス（（飽和分含有量（質量%）+アスファルテン分含有量（質量%））/（レジン分含有量（質量%）+芳香族分含有量（質量%））は、0.30以上0.54以下であり、かつ飽和分含有量が11質量%以下である。コロイダルインデックスは、好ましくは0.31以上であり、より好ましくは0.32以上であり、さらに好ましくは0.36以上であり、よりさらに好ましくは0.37以上であり、さらにより好ましくは0.38以上である。コロイダルインデックスが0.30以上であることにより、軟化点及び耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）がより向上する。また、コロイダルインデックスは、好ましくは0.53以下であり、より好ましくは0.52以下であり、さらに好ましくは0.51以下であり、さらにより好ましくは0.50以下である。コロイダルインデックスが0.54以下であることにより、施工性（低い溶融粘度）及び伸度がより向上する。

10

【 0 0 9 4 】

飽和分含有量は、好ましくは10.0質量%以下であり、より好ましくは9.5質量%以下であり、さらに好ましくは9.0質量%以下である。飽和分含有量が11.0質量%以下であることにより、軟化点及び耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）がより向上する傾向にある。また、飽和分含有量は、好ましくは4質量%以上であり、より好ましくは5質量%以上であり、さらに好ましくは5.5質量%以上である。飽和分含有量が6質量%以上であることにより、施工性（低い溶融粘度）及び伸度がより向上する傾向にある。

20

【 0 0 9 5 】

アスファルテン分含有量は、好ましくは2.5質量%以下であり、より好ましくは2.4質量%以下であり、さらに好ましくは2.3質量%以下である。アスファルテン分含有量が2.6質量%以下であることにより、施工性（低い溶融粘度）及び伸度がより向上する傾向にある。また、アスファルテン分含有量は、好ましくは1.8質量%以上であり、より好ましくは1.8.5質量%以上であり、さらに好ましくは1.9質量%以上である。アスファルテン分含有量が1.6質量%以上であることにより、軟化点及び耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）がより向上する傾向にある。

【 0 0 9 6 】

レジン分含有量は、好ましくは2.9質量%以下であり、より好ましくは2.8質量%以下であり、さらに好ましくは2.7.5質量%以下である。レジン分含有量が3.0質量%以下であることにより、伸度がより向上する傾向にある。また、レジン分含有量は、好ましくは1.9質量%以上であり、より好ましくは2.0質量%以上であり、さらに好ましくは2.0.5質量%以上である。レジン分含有量が1.8質量%以上であることにより、軟化点、耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）及び施工性（低い溶融粘度）がより向上する傾向にある。

30

【 0 0 9 7 】

芳香族分含有量は、好ましくは5.8質量%以下であり、より好ましくは5.6質量%以下であり、さらに好ましくは5.4質量%以下である。芳香族分含有量が6.0質量%以下であることにより、軟化点及び耐わだち掘れ性（ G^* / \sin ）がより向上する傾向にある。また、芳香族分含有量は、好ましくは3.8質量%以上であり、より好ましくは4.0質量%以上であり、さらに好ましくは4.2質量%以上である。芳香族分含有量が3.5質量%以上であることにより、施工性（低い溶融粘度）及び伸度がより向上する傾向にある。

40

【 0 0 9 8 】

アスファルトのコロイダルインデックス（ C_i ）と、ブロック共重合体の動的粘弾性のスペクトルにおける損失正接のピーク温度（ T_g （ $^{\circ}C$ ））と、が以下の関係を満たすことが好ましい。これにより、軟化点、耐わだち掘れ性がより向上する傾向にある。

$$C_i = 0.0127 \times T_g + 0.94$$

【 0 0 9 9 】

また、この時、損失正接のピークトップの範囲は、-70以上0以下の範囲である

50

ことが好ましく、より好ましくは - 50 以上 - 10 以下であり、さらに好ましくは - 45 以上 - 20 以下である。

【0100】

ここで「飽和分」とは、分子量が300～2,000のパラフィン、ナフテンの油分であり、「アスファルテン分」とは、分子量が1,000～100,000の層状構造の縮合多環芳香族であり、「レジン分」とは、分子量が500～50,000の縮合多環芳香族の樹脂であり、「芳香族分」とは、分子量が500～2,000の芳香族の油分である。なお、これら各成分は、石油学会の石油類試験関係規格のJPI-5S-70-10に準拠した測定法で分析することができる。

【0101】

コロイダルインデックス、飽和分は、後述する実施例記載の方法で求めることができる。

【0102】

アスファルトの針入度は、好ましくは40を超え120以下であり、好ましくは50以上100以下であり、より好ましくは60以上120以下である。アスファルトの針入度が40を超えることにより、熔融粘度が低下し、伸度がより向上する傾向にある。また、アスファルトの針入度が120以下であることにより、軟化点、耐わだち掘れ性がより向上する傾向にある。アスファルトの針入度は実施例に記載の方法により測定することができる。また、アスファルトの針入度は、石油の精製条件の温度、時間、減圧度等を制御することにより調整することができる。

【0103】

ブロック共重合体の含有量は、熔融粘度と軟化点及び耐わだち掘れ性 (G^* / \sin) の性能バランスの観点から、アスファルト100質量部に対して、0.5質量部以上20質量部以下であり、好ましくは1質量部以上18質量部以下であり、より好ましくは2質量部以上15質量部以下である。また、施工性の観点から低い熔融粘度が求められる道路舗装用の場合、アスファルト100質量部に対して、好ましくは0.5質量部以上15質量部以下、より高い軟化点、伸度を求められるアスファルト防水シートの場合、アスファルト100質量部に対して、好ましくは2質量部以上20質量部以下であることが好ましい。

【0104】

〔その他の成分〕

本実施形態のアスファルト組成物には、上述したブロック共重合体、アスファルトの他、後述する各成分を添加することができる。

【0105】

(上述したブロック共重合体以外の重合体)

高い軟化点、耐油性あるいは経済性の点で、上述したブロック共重合体以外の重合体を含んでいてもよい。その他の重合体としては、特に限定されないが、例えば、天然ゴム、ポリイソブレンゴム、ポリブタジエンゴム、スチレンブタジエンゴム、スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体(SBS)、スチレン-ブタジエン-ブチレン-スチレン共重合体(SBBS)、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体(SEBS)、エチレンプロピレン共重合体等のオレフィン系エラストマー；エチレン-エチルアクリレート共重合体、クロロプレンゴム、アクリルゴム、エチレン酢酸ビニル共重合体等が挙げられる。

【0106】

この中では、アスファルト組成物の低い粘度や低温での高い伸度の点で、スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体(SBS)が好ましい。さらに、SBSは、スチレン-ブタジエンジブロック体を含むことがより好ましい。SBSの例としては、Kraton社製のD1101やD1184が挙げられる。

【0107】

(粘着付与樹脂)

10

20

30

40

50

本実施形態のアスファルト組成物には、粘着付与剤樹脂を添加してもよい。粘着付与剤樹脂としては、特に限定されるものではなく、例えば、ロジン系樹脂、水添ロジン系樹脂、テルペン系樹脂、クマロン系樹脂、フェノール系樹脂、テルペン-フェノール系樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族炭化水素樹脂等の公知の粘着付与性樹脂が挙げられる。

【0108】

粘着付与剤樹脂は、単独で使用してもよく、2種類以上混合して使用してもよい。粘着付与剤樹脂の具体例としては、「ゴム・プラスチック配合薬品」(ラバーダイジェスト社編)に記載されたものが使用できる。

【0109】

粘着付与剤樹脂を用いることにより、本実施形態のアスファルト組成物において施工性及び弾性率の改良が図られる。本実施形態のアスファルト組成物における粘着付与剤樹脂の含有量は、上述したブロック共重合体を100質量部としたとき、好ましくは0~200質量部、より好ましくは10~100質量部の範囲で使用される。上記範囲の含有量とすることにより、施工性及び弾性率の改良効果が確実に得られる。

【0110】

(軟化剤)

本実施形態のアスファルト組成物には、軟化剤を添加してもよい。軟化剤としては、鉱物油系軟化剤又は合成樹脂系軟化剤のいずれも使用できる。鉱物油系軟化剤としては、一般に、パラフィン系オイル、ナフテン系オイル、芳香族系オイル等が挙げられる。

【0111】

なお、パラフィン系炭化水素の炭素原子数が全炭素原子中の50%以上を占めるものがパラフィン系オイルと呼ばれ、ナフテン系炭化水素の炭素原子数が30~45%のものがナフテン系オイルと呼ばれ、また、芳香族系炭化水素の炭素原子数が35%以上のものが芳香族系オイルと呼ばれている。

【0112】

また、合成樹脂系軟化剤としては、特に限定されないが、例えば、ポリブテン、低分子量ポリブタジエン等が好ましいものとして挙げられる。軟化剤としては、ゴム用軟化剤であるパラフィン系オイルが好ましい。軟化剤を含有させることにより、本実施形態のアスファルト組成物において、施工性の改良が図られる。

【0113】

本実施形態のアスファルト組成物中の軟化剤の含有量は、軟化剤のブリード抑制や、本実施形態のアスファルト組成物において実用上十分な機械強度を確保する観点から、上述したブロック共重合体を100質量部としたとき、0~100質量部であることが好ましく、0~50質量部の範囲がより好ましく、2~30質量部の範囲がさらに好ましい。

【0114】

(安定剤)

本実施形態のアスファルト組成物には、酸化防止剤、光安定剤等の各種安定剤を添加してもよい。

【0115】

酸化防止剤としては、特に限定されないが、例えば、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール、*n*-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-*t*-ブチルフェニル)プロピオネート、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,4-ビス[(オクチルチオ)メチル]-*o*-クレゾール、2-*t*-ブチル-6-(3-*t*-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート、2,4-ジ-*t*-アミル-6-[1-(3,5-ジ-*t*-アミル-2-ヒドロキシフェニル)エチル]フェニルアクリレート、2-[1-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-*tert*-ペンチルフェニル)]アクリレート等のヒンダードフェノール系酸化防止剤；ジラウリルチオジプロピオネート、ラウリルステアリルチオジプロピオネートペンタエリスリトール-テトラキス(-ラウリルチオプロピオネート)等のイオウ系酸化防止剤；トリ

10

20

30

40

50

ス（ノニルフェニル）ホスファイト、トリス（2，4 - ジ - t - ブチルフェニル）ホスファイト等のリン系酸化防止剤等が挙げられる。

【0116】

光安定剤としては、例えば、2 - （2' - ヒドロキシ - 5' - メチルフェニル）ベンゾトリアゾール、2 - （2' - ヒドロキシ - 3'，5' - t - ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール、2 - （2' - ヒドロキシ - 3'，5' - ジ - t - ブチルフェニル） - 5 - クロロベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤；2 - ヒドロキシ - 4 - メトキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系紫外線吸収剤；ヒンダードアミン系光安定剤等が挙げられる。

【0117】

本実施形態のアスファルト組成物中の安定剤の含有量は、ブロック共重合体100質量部に対して、0～10質量部であることが好ましく、0～5質量部の範囲がより好ましく、0～3質量部の範囲がさらに好ましく、0.2～2質量部の範囲がよりさらに好ましい。

【0118】

（添加剤）

本実施形態のアスファルト組成物には、その他、必要に応じて、従来、アスファルト組成物に慣用されている各種添加剤を添加することができる。

【0119】

例えば、シリカ、タルク、炭酸カルシウム、鉱物質粉末、ガラス繊維等の充填剤や補強剤、鉱物質の骨材、ベンガラ、二酸化チタン等の顔料、パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス、低分子量ポリエチレンワックス等のワックス類、あるいは、アゾジカルボンアミド等の発泡剤、アタクチックポリプロピレン、エチレン - エチルアクリレート共重合体等のポリオレフィン系又は低分子量のビニル芳香族系熱可塑性樹脂、天然ゴム、ポリイソプレンゴム、ポリブタジエンゴム、スチレン - ブタジエンゴム、エチレン - プロピレンゴム、クロロプレンゴム、アクリルゴム、イソプレン - イソブチレンゴム、ポリペンタマーゴム、及び本発明以外のスチレン - ブタジエン系ブロック共重合体、スチレン - イソプレン系ブロック共重合体、水素化スチレン - ブタジエン系ブロック共重合体、水素化スチレン - イソプレン系ブロック共重合体等の合成ゴムが挙げられる。

【0120】

本実施形態のアスファルト組成物中の上記添加剤の含有量は、ブロック共重合体100質量部に対して、0～100質量部であることが好ましく、0～50質量部の範囲がより好ましく、0～30質量部の範囲がさらに好ましく、1～20質量部の範囲がよりさらに好ましい。

【0121】

（その他）

上記の他に以下のような物質を添加することができる。

【0122】

ゴム加硫剤、架橋剤：例えば硫黄、硫黄化合物、硫黄以外の無機加硫剤、オキシム類、ニトロソ化合物、ポリアミン、有機過酸化物、樹脂加硫剤が挙げられる。

【0123】

可塑剤：例えばフタル酸誘導体、テトラヒドロフタル酸誘導体、アジピン酸誘導体、アゼライン酸誘導体、セバシン酸誘導体、ドデカン - 2 - 酸誘導体、マレイン酸誘導体、フマル酸誘導体、トリメリット酸誘導体、ピロメリット酸誘導体、くえん酸誘導体、オレイン酸誘導体、リシノール酸誘導体、スルホン酸誘導体、リン酸誘導体、グルタル酸誘導体、グリコール誘導体、グセリン誘導体、パラフィン誘導体、エポキシ誘導体が挙げられる。

【0124】

造核剤：脂肪酸金属塩系、ソルビトール系、リン酸エステル金属塩型が挙げられる。
本実施形態のアスファルト組成物中の上記その他成分の含有量は、本実施形態のアスファ

10

20

30

40

50

ルト組成物において、上述したブロック共重合体を100質量部としたとき、0～10質量部であることが好ましく、0～5質量部の範囲がより好ましく、0～3質量部の範囲がさらに好ましく、0.2～2質量部の範囲がよりさらに好ましい。

【0125】

アスファルト組成物を用いる舗装形態としては、特に限定されないが、例えば、密粒度舗装、排水性舗装、透水性舗装、密粒度ギャップアスファルト舗装、砕石マスチックアスファルト舗装、カラー舗装、半たわみ性舗装、保水性舗装、薄層舗装が挙げられる。

【0126】

密粒度舗装においては、耐流動、滑り抵抗性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは3～5.5質量%である。また、密粒度舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、粗骨材40～55質量%、細骨材40～50質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト5～7質量%である。

10

【0127】

排水性舗装においては、排水性、視認性、騒音性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは5～10質量%である。また、排水性舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、粗骨材60～85質量%、細骨材5～20質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト4～6質量%である。

20

【0128】

透水性舗装においては、透水性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは0.5～6質量%である。また、透水性舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、粗骨材60～85質量%、細骨材5～20質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト4～6質量%である。

【0129】

密粒度ギャップ舗装においては、摩耗性、耐流動、耐久性、滑り抵抗性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは5～12質量%である。また、密粒度ギャップ舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、粗骨材50～60質量%、細骨材30～40質量%、フィラー3～6質量%、アスファルト4.5～6質量%である。

30

【0130】

砕石マスチックアスファルト舗装においては、摩耗性、不透水性、応力緩和性、耐流動、騒音性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは4～10質量%である。また、砕石マスチックアスファルト舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、粗骨材55～70質量%、細骨材15～30質量%、フィラー5～10質量%、アスファルト5.5～8質量%である。

40

【0131】

半たわみ性舗装においては、視認性、耐油性、耐流動の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは4～10質量%である。また、半たわみ性舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、粗骨材60～85質量%、細骨材5～20質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト4～6質量%であり、また、空隙率15～20%程度で空

50

隙にセメント系モルタルを充填することが好ましい。

【0132】

保水性舗装においては、舗装温度上昇の抑制、保水性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは4～10質量%である。また、保水性舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、粗骨材60～85質量%、細骨材5～20質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト4～6質量%であり、また、空隙率15～20%程度で空隙にセメント系や石膏系などの保水材を充填することが好ましい。

【0133】

薄層舗装においては、経済性、工期短縮、施工性の改善が主に求められる。この場合、アスファルト組成物中のブロック共重合体の含有量は、アスファルト100質量%に対して、好ましくは4～8質量%である。また、薄層舗装に用いられ得るアスファルト組成物の組成としては、各骨材とフィラーの合計量100質量%（アスファルトを除く）に対して、好ましくは、骨材（5～2.5mm）60～85質量%、細骨材（2.5mm以下）5～20質量%、フィラー3～5質量%、アスファルト4～6.5質量%である。

【0134】

〔アスファルト組成物の製造方法〕

本実施形態のアスファルト組成物の製造方法は、特に限定されるものではなく、公知の混合機、熱溶融釜、ニーダー等により各成分を加熱溶融混練し、均一混合する方法で製造できる。

【0135】

例えば、160～200（通常は180前後）の熱溶融釜に、アスファルトを浸漬し、完全に溶融させ、ホモミキサー等の攪拌機で攪拌しながら、ブロック共重合体、その他の所定の添加剤を添加し、その後、攪拌速度を上げ、混練することによりアスファルト組成物を製造できる。なお、通常の攪拌速度は、用いる装置により適時選択すればよいが、通常、100rpm以上8,000rpm以下であり、攪拌時間は好ましくは30分～6時間、より好ましくは1時間～3時間である。

【実施例】

【0136】

以下、具体的な実施例と比較例を挙げて本発明について詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。先ず、実施例及び比較例に適用した、評価方法及び物性の測定方法について下記に示す。

【0137】

〔I. ブロック共重合体の組成及び構造の評価〕

〔I-1〕ブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量（スチレン含有量）

一定量の重合体をクロロホルムに溶解し、紫外分光光度計（島津製作所製、UV-2450）を用いて、ビニル芳香族化合物（スチレン）に起因する吸収波長（262nm）のピーク強度から検量線を用いてビニル芳香族単量体単位（スチレン）の含有量を算出した。

【0138】

〔I-2〕ブロック共重合体中の重合体ブロック（A）の含有量

水添前の重合体を使用し、I. M. Kolthoff, et al., J. Polym. Sci., 1, p. 429 (1946)に記載の四酸化オスミウム酸法で測定した。重合体の分解にはオスミウム酸0.1g/125mL第3級ブタノール溶液を用いた。

【0139】

〔I-3〕ブロック共重合体の組成分析と水素添加率

部分水添ブロック共重合体中のビニル含有量及び共役ジエン中の不飽和基の水素添加率を、核磁気共鳴スペクトル解析（NMR）により、下記の条件で測定した。水添反応後のブロック共重合体を、大量のメタノール中に沈澱させることで、部分水添ブロック共重合

10

20

30

40

50

体を沈殿させて回収した。次いで、部分水添ブロック共重合体をアセトンで抽出し、抽出液を真空乾燥し、 $^1\text{H-NMR}$ 測定サンプルとして用いた。 $^1\text{H-NMR}$ 測定の条件を以下に記す。

(測定条件)

測定機器 : JNM-LA400 (JEOL製)
 溶媒 : 重水素化クロロホルム
 測定サンプル : ブロック共重合体を水素添加する前後の抜き取り品
 サンプル濃度 : 50 mg/mL
 観測周波数 : 400 MHz
 化学シフト基準 : TMS (テトラメチルシラン)
 パルスディレイ : 2.904 秒
 スキャン回数 : 64 回
 パルス幅 : 45°
 測定温度 : 26

10

【0140】

また、上記で得られた $^1\text{H-NMR}$ スペクトルに基づいて、共役ジエン単量体単位(a)が水添されたアルケニル単量体単位(a1)の含有量、共役ジエン単量体単位(b)が水添されたアルケニル単量体単位(b1)の含有量、水添されなかったアルケニル単量体単位(a2)の含有量、水添されなかったアルケニル単量体単位(b2)の含有量を算出した。

20

【0141】

(I-4) 重量平均分子量、分子量分布

GPC〔装置は、ウォーターズ製〕で測定し、溶媒にはテトラヒドロフランを用い、温度35でクロマトグラムを測定した。市販の標準ポリスチレンの測定から求めた検量線(標準ポリスチレンのピーク分子量を使用して作成)を使用して、得られたクロマトグラムから重量平均分子量(ポリスチレン換算分子量)と数平均分子量を求め、これらの比から分子量分布を求めた。

【0142】

(I-5) 動的粘弾性のスペクトル

\tan (損失正接)ピーク高さ、温度は、粘弾性測定解析装置ARES (ティー・エイ・インスルメント・ジャパン株式会社製、商品名)を用い、粘弾性スペクトルを測定することにより求めた。捻じりタイプのジオメトリーに、測定用資料をセットし、ひずみ0.5%、測定周波数は1 Hzで測定した。

30

【0143】

[II. アスファルトの組成分析]

(II-1) コロイダルインデックス(Ci)

薄層クロマトグラフィー自動検出装置(イアトロスキャンMK-6:三菱化学メディエンス株式会社製、商品名)を用いて、石油学会の石油類試験関係規格のJPI-5S-70-10に準拠した測定法で、各アスファルトの飽和分、アスファルテン分、レジ分、芳香族分を求めた。コロイダルインデックス(Ci)は以下の式により求めた。

40

$$C_i = (\text{飽和分含有量} + \text{アスファルテン分含有量}) / (\text{レジ分含有量} + \text{芳香族分含有量})$$

なお、コロイダルインデックスは、アスファルト道路舗装体からアスファルト成分を抽出し、抽出成分を分析することによっても測定可能である。

【0144】

(II-2) アスファルトの針入度

JIS-K 2207に準じ、恒温水浴槽で25に保った試料に規定の針が5秒間に進入する長さを測定することにより、アスファルトの針入度を求めた。なお、実施例で用いたアスファルトは、上記測定において針入度が60以上100以下であった。

【0145】

50

[I I I . アスファルト組成物の特性]

(I I I - 1) 熔融粘度

160 及び180 でブルックフィールド型粘度計 (D V - I I I 型) により熔融粘度を測定した。熔融粘度の測定値 (m P a ・ s) が、道路舗装用の場合、160 で500以下、アスファルト防水シートの場合、180 で500以下であれば実用上優れた性能、各々の温度条件で450以下であれば実用上十分な性能であると判断した。

【 0 1 4 6 】

(I I I - 2) 軟化点

J I S - K 2 2 0 7 に準じて、アスファルト組成物の軟化点を測定した。規定の環に試料を充填し、グリセリン液中に水平に支え、試料の中央に3.5gの球を置き、液温を5 / m i n の速度で上昇させたとき、球の重さで試料が環台の底板に触れた時の温度を測定した。軟化点の測定値 () が、75以上であれば実用上優れた性能、82以上であれば実用上十分な性能であり、さらに120以上であればアスファルト防水シート用途としても実用上優れた性能、130以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

【 0 1 4 7 】

(I I I - 3) 伸度

J I S - K 2 2 0 7 に準じ、試料を形枠に流し込み、規定の形状にした後、恒温水浴内で15 に保ち、次に試料を5 c m / m i n の速度で引っ張ったとき、試料が切れるまでに伸びた距離を測定した。伸度力の測定値 (c m) が、55以上であれば実用上優れた性能、60以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

【 0 1 4 8 】

(I I I - 4) 高温貯蔵安定性 (軟化点の変化差)

アスファルト組成物製造直後、180 のオープン中で、3日間加熱した。その後、金属缶を取り出し軟化点を測定した。製造直後の軟化点と3日間加熱後の軟化点差を高温貯蔵安定性の尺度とした。軟化点差が小さいほど、高温貯蔵安定性は良好である。高温貯蔵前後の軟化点差の値 () が、10以下であれば実用上優れた性能、5以下であれば実用上十分な性能であると判断した。

【 0 1 4 9 】

(I I I - 5) わだち掘れ性

わだち掘れ性の指標として G^* / \sin を用いて評価した。 G^* / \sin は、粘弾性測定解析装置 A R E S (ティー・エイ・インスルメント・ジャパン株式会社製、商品名) を用い、粘弾性スペクトルを測定することにより求めた。捻じりタイプのジオメトリーに、測定用資料をセットし、ひずみ0.5%、測定周波数は1 H z、パラレルプレート直径7.9 m m で G^* (複素弾性率) と \sin を測定した。 G^* / \sin の測定値 (P a) が、750以上であれば実用上優れた性能、900以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

【 0 1 5 0 】

[I V . 水添触媒の調製]

窒素置換した反応容器に乾燥、精製したシクロヘキサン2リットルを仕込み、ビス (5 - シクロペンタジエニル) チタニウムジ - (p - トリル) 40ミリモルと分子量が約1,000の1,2 - ポリブタジエン (1,2 - ビニル結合量約85%) 150グラムを溶解した後、n - ブチルリチウム60ミリモルを含むシクロヘキサン溶液を添加して室温で5分反応させ、直ちにn - ブタノール40ミリモルを添加攪拌して室温で保存した。

【 0 1 5 1 】

[V . ブロック共重合体の調整]

< ポリマー 1 >

内容積が10Lの攪拌装置及びジャケット付き槽型反応器を用いて、重合を以下の方法で行った。

【 0 1 5 2 】

(1 段目)

10

20

30

40

50

シクロヘキサン 10 質量部を反応器に仕込んで温度 70 に調整した後、n-ブチルリチウムを全モノマー（反応器に投入したブタジエンモノマー及びスチレンモノマーの総量）の質量に対して 0.058 質量%、N, N, N', N' - テトラメチルエチレンジアミン（以下 T M E D A と称する）を n-ブチルリチウム 1 モルに対して 0.4 モル添加し、その後モノマーとしてスチレン 10.5 質量部を含有するシクロヘキサン溶液（モノマー濃度 22 質量%）を約 3 分間かけて添加し、反応器内温を約 70、反応器内圧を 0.30 MPa になる様に調整しながら 30 分間反応させた。

【0153】

（2 段目）

次に、ブタジエン 56 質量部を含有するシクロヘキサン溶液（モノマー濃度 22 質量%）とスチレン 23 質量部を含有するシクロヘキサン溶液（モノマー濃度 22 質量%）をそれぞれ 30 分間と 10 分間かけて一定速度で連続的に反応器に供給し、その後、30 分間反応させた。この間、反応器内温は約 70、反応器内圧を 0.30 MPa になるように調整した。

【0154】

（3 段目）

その後、更にモノマーとしてスチレン 10.5 質量部を含有するシクロヘキサン溶液（モノマー濃度 22 質量%）を約 3 分間かけて添加し、反応器内温を約 70、反応器内圧を 0.30 MPa に調整しながら 30 分間反応させ、ブロック共重合体を得た。

【0155】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 95 ppm 添加し、水素圧 0.7 MPa、温度 65 で水添反応を行った。反応終了後にメタノールを添加し、次に安定剤としてオクタデシル-3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネートをブロック共重合体の質量に対して 0.3 質量% 添加し、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 1 と称する）を得た。水添率は 87% であった。

【0156】

<ポリマー 2>

n-ブチルリチウムの供給量を 0.037 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 10 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 70 質量部、スチレンを 10 質量部、ブタジエンの添加時間を 15 分間、3 段目に供給するスチレンを 10 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0157】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 93 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 2 と称する）を得た。水添率は 84% であった。

【0158】

<ポリマー 3>

n-ブチルリチウムの供給量を 0.063 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 17.5 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 50 質量部、スチレンを 15 質量部、3 段目に供給するスチレンを 17.5 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0159】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 90 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 3 と称する）を得た。水添率は 80% であった。

【0160】

<ポリマー 4>

n-ブチルリチウムの供給量を 0.045 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 7.5 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 62 質量部、ブタジエンの添加時間を 2

10

20

30

40

50

0 分間、3 段目に供給するスチレンを 7.5 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0161】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 80 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 4 と称する）を得た。水添率は 62% であった。

【0162】

<ポリマー 5>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.077 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 12.5 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 4.5 質量部、スチレンを 3.0 質量部、ブタジエンの添加時間を 4.5 分間、3 段目に供給するスチレンを 12.5 質量部に変え、反応器内温は 85℃、反応器内圧を 0.42 MPa になる様に調整すること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0163】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 68 ppm 添加、反応器内温は 85℃ にする以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 5 と称する）を得た。水添率は 45% であった。

【0164】

<ポリマー 6>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.056 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 1.0 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 5.7 質量部、ブタジエンの添加時間を 2.5 分間、3 段目に供給するスチレンを 1.0 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0165】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 75 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 6 と称する）を得た。水添率は 50% であった。

【0166】

<ポリマー 7>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.070 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 15.5 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 3.0 質量部、スチレンを 3.9 質量部、ブタジエンの添加時間を 5.5 分間、3 段目に供給するスチレンを 15.5 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0167】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 67 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 7 と称する）を得た。水添率は 43% であった。

【0168】

<ポリマー 8>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.042 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 6 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 8.5 質量部、スチレンを 3 質量部、ブタジエンの添加時間を 1.0 分間、3 段目に供給するスチレンを 6 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0169】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 94 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 8 と称する）を得た。水添率は 85% であった。

【0170】

<ポリマー 9>

10

20

30

40

50

n - ブチルリチウムの供給量を 0.048 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 4 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 7.8 質量部、スチレンを 1.4 質量部、ブタジエンの添加時間を 10 分間、3 段目に供給するスチレンを 4 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0171】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 96 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 9 と称する）を得た。水添率は 87% であった。

【0172】

<ポリマー 10>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.062 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 2.3 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 5.0 質量部、スチレンを 5 質量部、3 段目に供給するスチレンを 2.2 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0173】

次に、得られたブロック共重合体に、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 10 と称する）を得た。水添率は 84% であった。

【0174】

<ポリマー 11>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.057 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 1.5 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 5.1 質量部、スチレンを 1.9 質量部、ブタジエンの添加時間を 3.5 分間、反応器内温は 75 になる様に調整し、3 段目に供給するスチレンを 1.5 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0175】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 65 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 11 と称する）を得た。水添率は 34% であった。

【0176】

<ポリマー 12>

1 段目に供給するスチレンを 1.0 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 5.7 質量部、ブタジエンの添加時間を 2.5 分間、3 段目に供給するスチレンを 1.0 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0177】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 35 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 12 と称する）を得た。水添率は 9% であった。

【0178】

<ポリマー 13>

1 段目に供給するスチレンを 9 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 6.0 質量部、スチレンを 2.2 質量部、ブタジエンの添加時間を 8 分間、3 段目に供給するスチレンを 9 質量部に変えること以外は、ポリマー 1 と同様の方法により重合を行った。

【0179】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして 85 ppm 添加する以外は、ポリマー 1 と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー 13 と称する）を得た。水添率は 75% であった。

【0180】

<ポリマー 14>

n - ブチルリチウムの供給量を 0.065 質量% 添加とし、1 段目に供給するスチレンを 1.0 質量部、2 段目に供給するブタジエンを 5.0 質量部、スチレンを 3.0 質量部、ブタ

10

20

30

40

50

ジエンの添加時間を40分間、3段目に供給するスチレンを10質量部に変え、反応器内温は95℃、反応器内圧を0.52MPaになる様に調整すること以外は、ポリマー1と同様の方法により重合を行った。

【0181】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして85ppm添加する以外は、ポリマー1と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー14と称する）を得た。水添率は70%であった。

【0182】

<ポリマー15>

n-ブチルリチウムの供給量を0.062質量%添加とし、1段目に供給するスチレンを20質量部、2段目に供給するブタジエンを61質量部、スチレンを添加せず、3段目に供給するスチレンを19質量部に変えること以外は、ポリマー1と同様の方法により重合を行った。

10

【0183】

水添反応は行わず、ポリマー15を得た。水添率は0%であった。

【0184】

<ポリマー16>

1段目に供給するスチレンを7.5質量部、2段目に供給するブタジエンを30質量部、スチレンを55質量部、ブタジエンの添加時間を70分間、3段目に供給するスチレンを7.5質量部に変えること以外は、ポリマー1と同様の方法により重合を行った。

20

【0185】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして99ppm添加する以外は、ポリマー1と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー16と称する）を得た。水添率は98%であった。得られた各ブロック共重合体の性状を、表1に示した。

【0186】

<ポリマー17>

n-ブチルリチウムの供給量を0.057質量%添加とし、1段目に供給するスチレンを10質量部、2段目に供給するブタジエンを57質量部、ブタジエンの添加時間を25分間、3段目に供給するスチレンを10質量部添加した後に、第1ステップの前に添加したn-ブチルリチウム1molに対して、N,N'-ジメチルプロピレンウレア0.9molを添加した以外は、ポリマー1と同様の方法により重合を行った。

30

【0187】

次に、得られたブロック共重合体に、上記水添触媒をブロック共重合体の質量に対してチタンとして80ppm添加する以外は、ポリマー1と同様に水添反応を行い、水添ブロック共重合体（以下、ポリマー17と称する）を得た。水添率は50%であった。

【0188】

<ポリマー18>

TMEDAをn-ブチルリチウム1molに対して0.05mol添加し、n-ブチルリチウムの供給量を0.105質量部添加とし、1段目に供給するスチレンを15質量部、2段目に供給するブタジエンを70質量部、スチレンを添加せず、3段目に供給するスチレンを15質量部加えた後に、ジメチルジクロロシランを添加した以外は、ポリマー1と同様の方法により重合を行った。水添反応は行わず、ポリマー18を得た。水添率は0%であった。

40

【0189】

<ポリマー：EVA>

エチレン/酢酸ビニル共重合体（EVA）：EV460（三井・デュポンポリケミカル株式会社、商品名、VA含有量19%）

【0190】

【 表 1 】

| | スチレン含有量 (質量%) | 重合体ブロック (A)の含有量 (質量%) | 水素添加率 (%) | ビニル結合量 (質量%) | 共役ジエン単量体単位(a) (質量%) | | 共役ジエン単量体単位(b) (質量%) | | Mw (万) | tan δ ピーク | | 0.0127 × Tg+0.94 |
|---------|---------------|-----------------------|-----------|--------------|---------------------|----------|---------------------|----------|--------|-----------|------|------------------|
| | | | | | 水添 (a1) | 非水添 (a2) | 水添 (b1) | 非水添 (b2) | | 温度 (°C) | 高さ | |
| ポリマー-1 | 44 | 21 | 87 | 30 | 28 | 2 | 59 | 11 | 18 | -32 | 1.1 | 0.534 |
| ポリマー-2 | 30 | 20 | 84 | 45 | 42 | 3 | 42 | 13 | 28 | -45 | 0.9 | 0.309 |
| ポリマー-3 | 50 | 35 | 80 | 20 | 18 | 2 | 62 | 18 | 17 | -39 | 1.1 | 0.445 |
| ポリマー-4 | 38 | 15 | 62 | 26 | 21 | 5 | 41 | 33 | 25 | -38 | 1.3 | 0.457 |
| ポリマー-5 | 55 | 25 | 45 | 18 | 14 | 4 | 31 | 51 | 13 | -27 | 1.4 | 0.597 |
| ポリマー-6 | 43 | 20 | 50 | 37 | 32 | 5 | 18 | 45 | 19 | -41 | 1.2 | 0.419 |
| ポリマー-7 | 70 | 31 | 43 | 39 | 37 | 2 | 6 | 55 | 15 | -18 | 1.6 | 0.711 |
| ポリマー-8 | 15 | 12 | 85 | 21 | 19 | 2 | 2 | 77 | 27 | -65 | 0.6 | 0.115 |
| ポリマー-9 | 22 | 8 | 87 | 18 | 17 | 1 | 69 | 13 | 23 | -43 | 1 | 0.394 |
| ポリマー-10 | 50 | 45 | 84 | 33 | 30 | 3 | 54 | 13 | 17 | -43 | 0.7 | 0.394 |
| ポリマー-11 | 49 | 30 | 34 | 33 | 26 | 7 | 8 | 59 | 19 | -40 | 1.3 | 0.432 |
| ポリマー-12 | 43 | 20 | 9 | 27 | 27 | 0 | 72 | 1 | 18 | -45 | 1.2 | 0.369 |
| ポリマー-13 | 40 | 18 | 75 | 20 | 17 | 3 | 58 | 22 | 18 | -36 | 0.5 | 0.483 |
| ポリマー-14 | 50 | 20 | 70 | 37 | 33 | 4 | 37 | 26 | 16 | -30 | 2.1 | 0.559 |
| ポリマー-15 | 39 | 39 | 0 | 21 | 0 | 21 | 0 | 79 | 17 | -80 | 0.3 | -0.076 |
| ポリマー-16 | 70 | 15 | 98 | 15 | 15 | 0 | 83 | 2 | 18 | 5 | 1.5 | 1.004 |
| ポリマー-17 | 42 | 20 | 50 | 37 | 32 | 5 | 18 | 45 | 19 | -41 | 1.2 | 0.419 |
| ポリマー-18 | 30 | 30 | 0 | 12 | 0 | 12 | 0 | 88 | 15 | -80 | 0.65 | -0.076 |

【 0 1 9 1 】

〔 実施例 1 〕

10

20

30

40

50

400gのコロイダルインデックス(Ci値)が0.36、飽和分が5.4質量%、芳香族分が52.78質量%、レジン分が20.69質量%、アスファルテン分が21.13質量%)のストレートアスファルト(歴世礦油製(韓国))を750ccの容器に入れ、容器を180のオイルバスに浸漬し、ストレートアスファルトを完全溶解させた。

【0192】

次に、回転速度3000rpmでストレートアスファルトをホモミキサーで攪拌しながら、上述のようにして得られたブロック共重合体(ポリマー1)14gを、少しずつストレートアスファルト中に添加した。添加が終了したら、攪拌速度を6000rpmに上げ、30分間混練してアスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

10

【0193】

[実施例2~6及び9、比較例1~8、並びに参考例7及び8]

下記表2に示すように、所定のポリマーを用い、それぞれのブロック共重合体とアスファルトとの比率を実施例1と同等にし、実施例1と同様の混練方法により、アスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。なお、コロイダルインデックス(Ci値)が0.36のアスファルトとしては、韓国の歴世礦油製、ストアス60-80を用いた。

【0194】

[実施例10]

下記表2に示すように、ポリマー6を8g、ポリマー18を8g添加する以外は、実施例1と同様の混練方法により、アスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

20

【0195】

[実施例11]

下記表2に示すように、ポリマー17を12g、EVAポリマーを4g添加する以外は、実施例1と同様の混練方法により、アスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

【0196】

[実施例12]

下記表2に示すように、ポリマー6を14g添加後に、硫黄をアスファルト組成物中に0.1質量%添加し、添加後に120分間攪拌して、16012時間養生し、アスファルト組成物を得た以外は実施例1と同様にアスファルト組成物を作製した。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

30

【0197】

[実施例13]

下記表2に示すように、ポリマー6を8g、ポリマー18を8g添加後に、ポリリン酸(キシダ化学社製)をアスファルト組成物中に0.2質量%添加した以外は実施例12と同様にアスファルト組成物を作製した。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

【0198】

40

【表 2】

| | 成分 | | 物性 | | | | |
|-------|----------------------------|--|-------------|-----------------------------|-----------------------|---------------------|------------------|
| | ブロック共重合体 | アスファルト | 軟化点 (°C) | 熔融粘度 (mPa·s) at.160°C | 伸度 (cm) at.15°C | 高温貯蔵 安定性 (°C) | G*/sin δ (Pa) |
| 実施例1 | ポリマー1 | コロイダルインデックス =0.36 飽和分 =5.4質量% | 85.9 | 443 | 68 | 2 | 1,176 |
| 実施例2 | ポリマー2 | | 87.5 | 487 | 58 | 3 | 1,224 |
| 実施例3 | ポリマー3 | | 86.7 | 438 | 57 | 4 | 1,191 |
| 実施例4 | ポリマー4 | | 83.5 | 465 | 64 | 6 | 890 |
| 実施例5 | ポリマー5 | | 81.5 | 395 | 61 | 8 | 874 |
| 実施例6 | ポリマー6 | | 87.3 | 449 | 63 | 7 | 1,163 |
| 比較例1 | ポリマー7 | | 80.5 | 435 | 47 | 13 | 870 |
| 比較例2 | ポリマー8 | | 71.3 | 451 | 61 | 5 | 515 |
| 比較例3 | ポリマー9 | | 69.2 | 437 | 64 | 4 | 473 |
| 比較例4 | ポリマー10 | | 88.4 | 518 | 37 | 3 | 1,093 |
| 比較例5 | ポリマー11 | | 82.2 | 405 | 47 | 14 | 1,137 |
| 比較例6 | ポリマー12 | | 81.8 | 438 | 46 | 21 | 1,075 |
| 参考例7 | ポリマー13 | | 81.0 | 413 | 56 | 9 | 817 |
| 参考例8 | ポリマー14 | 76.1 | 495 | 60 | 3 | 764 | |
| 比較例7 | ポリマー15 | 66.2 | 484 | 58 | 5 | 525 | |
| 比較例8 | ポリマー16 | 66.8 | 533 | 85 | 11 | 531 | |
| 実施例9 | ポリマー17 | 89.5 | 463 | 70 | 2 | 1,956 | |
| 実施例10 | ポリマー6/ ポリマー18 | 90.5 | 480 | 78 | 5 | 1,285 | |
| 実施例11 | ポリマー17 /EVA | 90.8 | 475 | 75 | 4 | 1,987 | |
| 実施例12 | ポリマー6 の加硫 | 90.5 | 467 | 59 | 1 | 1,635 | |
| 実施例13 | ポリマー6/ ポリマー18 のPPA架橋 | 92.8 | 490 | 56 | 1 | 2,080 | |

10

20

30

【 0 1 9 9 】

〔実施例 1 4 ~ 1 6、比較例 9 ~ 1 1〕

下記表 3 に示すように、所定のポリマーを用い、それぞれのブロック共重合体とアスファルトとの比率に従い、実施例 1 と同様の混練方法により、アスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表 3 に示した。なお、コロイダルインデックス (Ci 値) が 0.5 (飽和分: 10.6 質量%、芳香族分: 43.1 質量%、レジン分: 23.6 質量%、アスファルテン分: 22.6 質量%) のアスファルトとしては、Caladium Middle East FZE 製、ストアス 60 - 70 を用い、コロイダルインデックス (Ci 値) が 0.28 (飽和分: 4.52 質量%、芳香族分: 59.16 質量%、レジン分: 19.06 質量%、アスファルテン分: 17.27 質量%) のアスファルトとしては、JX 日鋼日石エネルギー株式会社根岸製油所製、ストアス 60 - 80 を用い、コロイダルインデックス (Ci 値) が 0.55 のアスファルトとしては、Petro Chem 製、ストアス 70 - 80 を用いた。なお、コロイダルインデックス (Ci 値) が 0.36 のアスファルトとしては、上記同様のものを用いた。

40

【 0 2 0 0 】

〔実施例 1 7 ~ 2 0〕

下記表 3 に示すように、実施例 1 7 と実施例 2 0 のアスファルトには、コロイダルイン

50

デックス(Ci値)が0.41(飽和分:7.4質量%、芳香族分:47.8質量%、レジン分:23.3質量%、アスファルテン分:21.5質量%)のアスファルトとしては、韓国製ストアス60-80、実施例18と実施例19のアスファルトには、コロイダルインデックス(Ci値)が0.44(飽和分:5.8質量%、芳香族分:42.4質量%、レジン分:27.2質量%、アスファルテン分:24.6質量%)のアスファルトとしては、インド産ストアス80-100を用い、実施例17と実施例19にはポリマー6、実施例18にはポリマー4、実施例20にはポリマー2を用いる以外は、実施例1と同様の混練方法により、アスファルト組成物を得た。得られた各アスファルト組成物の物性を、表2に示した。

【0201】

【表3】

| | 成分 | | | | | 物性 | | | | |
|-------|----------|--------------|-----------------|--------------|--------------|-------------|-----------------------------|-----------------------|-----------------|------------------|
| | ブロック共重合体 | | アスファルト | | | 軟化点 (°C) | 溶融粘度 (mPa·s) at.160°C | 伸度 (cm) at.15°C | 高温貯蔵 安定性(°C) | G*/sin δ (Pa) |
| | ポリマー | 配合量 (質量部) | コロイダル インデックス | 飽和分 (質量%) | 配合量 (質量部) | | | | | |
| 実施例14 | ポリマー1 | 5 | 0.36 | 5.4 | 100 | 91.8 | 496 | 66 | 4 | 1,517 |
| 実施例15 | ポリマー1 | 15 | 0.36 | 5.4 | 100 | 132.7 | 489*1 | 58 | 6 | 2,324 |
| 実施例16 | ポリマー1 | 3.5 | 0.5 | 10.6 | 100 | 80.5 | 453 | 77 | 5 | 923 |
| 比較例9 | ポリマー1 | 3.5 | 0.28 | 4.5 | 100 | 68.4 | 358 | 78 | 11 | 746 |
| 比較例10 | ポリマー1 | 25 | 0.36 | 5.4 | 100 | 150以上 | *2 | 38 | 18 | 3,625 |
| 比較例11 | ポリマー1 | 3.5 | 0.55 | 16.6 | 100 | 85.3 | 451 | 47 | 15 | 1,034 |
| 実施例17 | ポリマー6 | 3.5 | 0.41 | 7.4 | 100 | 85 | 430 | 68 | 5 | 912 |
| 実施例18 | ポリマー4 | 3.5 | 0.44 | 5.8 | 100 | 92 | 450 | 66 | 5 | 933 |
| 実施例19 | ポリマー6 | 3.5 | 0.44 | 5.8 | 100 | 77 | 480 | 55 | 8 | 770 |
| 実施例20 | ポリマー2 | 3.5 | 0.41 | 7.4 | 100 | 78 | 490 | 56 | 8 | 780 |

*1 温度180°Cで測定

*2 粘度が高すぎるため、測定不可

【0202】

以上のとおり、本発明のアスファルト組成物は、軟化点、伸度が高く、溶融粘度が低く、また、耐わだち掘れ性、高温貯蔵安定性に優れることが示された。また、実施例1~13のアスファルト組成物は道路舗装用として、実施例14~16のアスファルト組成物はアスファルト防水シート用として良好であり、それぞれ優れた加工性を有していることが分かった。

【0203】

本出願は、2014年5月8日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願(特願2014-096959)に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

【産業上の利用可能性】

【0204】

本発明のアスファルト組成物は、道路舗装用アスファルト、アスファルト防水シート等として、産業上の利用可能性があり、特に道路舗装用の分野で好適に利用できる。

10

20

30

40

フロントページの続き

- (72)発明者 城本 隆行
東京都千代田区神田神保町一丁目105番地
(72)発明者 堀 有加里
東京都千代田区神田神保町一丁目105番地

審査官 安田 周史

- (56)参考文献 特開2006-160886(JP,A)
特開2012-246378(JP,A)
特開2003-238813(JP,A)
特開2005-126485(JP,A)
佐野 昌洋 et al., 新規に開発した再生用アスファルトの特性, 北陸道路舗装会議技術報文集,
2012年, p.D-6

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C08L 95/00
C08L 53/02
E01C 7/18