

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2024年10月3日(03.10.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/202567 A1

- (51) 国際特許分類:  
C08G 59/50 (2006.01) E01C 7/30 (2006.01)  
C08L 63/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/004213
- (22) 国際出願日: 2024年2月7日(07.02.2024)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2023-049299 2023年3月27日(27.03.2023) JP
- (71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 川島 裕貴 (KAWASHIMA Yuki); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 花岡 拓磨 (HANAOKA Takuma); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 弁理士法人大谷特許事務所(OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門E Sビル7階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: PAVING MATERIAL COMPOSITION AND STRUCTURE

(54) 発明の名称: 舗装材用組成物及び構造物

(57) Abstract: A paving material composition comprising: an epoxy resin; an epoxy resin curing agent containing 50 mass% or more of a polyamine compound represented by general formula (1) or a modified product thereof (A); and an aggregate. Formula (1):  $H_2N-CH_2-X-CH_2-NH_2$  (In formula (1), X represents a cyclohexylene group.)

(57) 要約: エポキシ樹脂、下記一般式(1)で示されるポリアミン化合物又はその変性体(A)を50質量%以上含むエポキシ樹脂硬化剤、及び骨材を含有する舗装材用組成物である。 $H_2N-CH_2-X-CH_2-NH_2$  (1) (式(1)中、Xはシクロヘキシレン基である。)



WO 2024/202567 A1

## 明 細 書

発明の名称：舗装材用組成物及び構造物

### 技術分野

[0001] 本発明は、舗装材用組成物及び構造物に関する。

### 背景技術

[0002] 景観舗装用の舗装材には、骨材として自然石が使用されている。自然石を用いることで、アスファルト及びコンクリートよりも、公園、観光地等の景観との調和性が高い舗装材が得られる。

景観舗装用の舗装材には、得られる構造物の強度が要求されるほか、一般には透水性が高いことが望まれる。また、特に景観舗装材としては、耐候性が高いことが好ましい。

[0003] バインダー樹脂としてエポキシ樹脂が使用された、耐候性に優れた舗装材組成物が知られている。例えば特許文献1には、還元反応により芳香族ベンゼン環を置換した脂環族エポキシ系樹脂と、繊維径及び繊維長が所定値以下の繊維との混練物を主成分とする耐候性エポキシ系繊維化樹脂を骨材のバインダーとして混練した舗装材が、強固で透水性があり、耐候性に優れることが開示されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開2002-294616号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら特許文献1の開示技術は、バインダー樹脂であるエポキシ樹脂を繊維と混練して繊維化して用いる技術であり、構造物を得るまでの工程が煩雑である。さらに、景観舗装用の舗装材は通常屋外で用いられることから、初期強度だけでなく、雨などに曝された後にも強度が低下しないことが重要である。

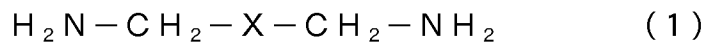
本発明の課題は、透水性、耐候性、及び強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れる構造物が得られる舗装材用組成物を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、エポキシ樹脂、所定のエポキシ樹脂硬化剤、及び骨材を含有する舗装材組成物により、上記課題を解決できることを見出した。

すなわち本発明は、下記に関する。

[1] エポキシ樹脂、下記一般式(1)で示されるポリアミン化合物又はその変性体(A)を50質量%以上含むエポキシ樹脂硬化剤、及び骨材を含有する舗装材用組成物。



(式(1)中、Xはシクロヘキシレン基である。)

[2] 前記ポリアミン化合物の変性体が、下記(I)～(IV)からなる群から選ばれる少なくとも1種である、上記[1]に記載の舗装材用組成物。

(I) 前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物のマンニッヒ反応生成物

(II) 前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物と、不飽和炭化水素化合物との反応生成物

(III) 前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物と、少なくとも1つのエポキシ基を有するエポキシ化合物との反応生成物

(IV) 前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物と、不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応生成物

[3] 前記骨材に対する、前記エポキシ樹脂の質量割合〔エポキシ樹脂／骨材〕が0.005～0.5の範囲である、上記[1]又は[2]に記載の舗装材用組成物。

[4] 前記骨材の粒径が0.002～50mmである、上記[1]～[3]のいずれか1項に記載の舗装材用組成物。

[5] 上記[1]～[4]のいずれか1項に記載の舗装材用組成物の硬化物を含む構造物。

## 発明の効果

[0007] 本発明によれば、透水性、耐候性、及び強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れる構造物が得られる舗装材用組成物を提供できる。

## 発明を実施するための形態

[0008] [定義]

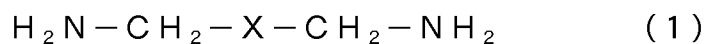
本明細書において「舗装材用組成物」とは、舗装材用骨材を含有する、舗装材の形成に用いられる組成物である。本発明の舗装材用組成物には、舗装材に用いるプライマー組成物等は含まれない。

[0009] 本明細書において、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の強度は、最大曲げ応力を指標とし、実施例に記載の方法により評価することができる。以下「構造物の強度」とは、特に断りのない限り、構造物の初期強度を意味し、構造物の初期強度が高いとは、構造物の浸水前の最大曲げ応力の値が大きいことを意味する。

また、構造物の湿潤環境下での強度保持率は、得られた構造物の初期（浸水前）の最大曲げ応力と、所定の期間浸水させた後の最大曲げ応力との比により求められる値であり、具体的には実施例に記載の方法で算出することができる。

[0010] [舗装材用組成物]

本発明の舗装材用組成物（以下、単に「（本発明の）組成物」ともいう。）は、エポキシ樹脂、下記一般式（1）で示されるポリアミン化合物又はその変性体（A）を50質量%以上含むエポキシ樹脂硬化剤、及び骨材を含有する。



（式（1）中、Xはシクロヘキシレン基である。）

本発明の組成物が上記構成を有することにより、透水性、耐候性、及び強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れる構造物を形成できる。

[0011] 本発明の組成物が上記効果を奏する理由については定かではないが、次のように考えられる。

前記一般式（１）で示されるポリアミン化合物は脂肪族環状ポリアミンであり、適度な親水性を有するが、脂肪族鎖状ポリアミンと比較すると疎水性が高い。また、前記一般式（１）で示されるポリアミン化合物をエポキシ樹脂硬化剤として用いると、ガラス転移温度（ $T_g$ ）の高い硬化物が得られる。以上のような性状により、該ポリアミン化合物又はその変性体を所定量以上含むエポキシ樹脂硬化剤を用いた本発明の組成物の硬化物は、高い透水性を有するとともに、強度が高く、湿潤環境下での強度保持率も高くなると考えられる。また前記一般式（１）で示されるポリアミン化合物は芳香環を含まず、さらに分子中の窒素原子の割合も低いため、本発明の組成物の硬化物は高い耐候性を示すと考えられる。

以下、本発明の組成物に用いる各成分について説明する。

#### [0012] <エポキシ樹脂>

エポキシ樹脂は、後述するエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素と反応し得るグリシジル基を２つ以上有する樹脂であれば特に制限されず、飽和又は不飽和の脂肪族化合物や脂環式化合物、芳香族化合物、複素環式化合物のいずれであってもよい。舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点からは、エポキシ樹脂は、芳香環又は脂環式構造を分子内に含むエポキシ樹脂が好ましい。

当該エポキシ樹脂の具体例としては、メタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、１，３－ビス（アミノメチル）シクロヘキサンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、１，４－ビス（アミノメチル）シクロヘキサンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラアミノフェノールから誘導されたグリシジルアミノ基及び／又はグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールＡから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールＦから誘導されたグリシジルオキシ基を

有するエポキシ樹脂、水添ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、水添ビスフェノールFから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、フェノールノボラックから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂及びレゾルシノールから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂から選ばれる少なくとも1種の樹脂が挙げられる。上記のエポキシ樹脂は、2種以上混合して用いることもできる。

[0013] 上記の中でも、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、エポキシ樹脂としてはメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールFから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、水添ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、及び水添ビスフェノールFから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂からなる群から選ばれる少なくとも1種を主成分とするものが好ましく、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率、入手性及び経済性の観点から、ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂を主成分とするものがより好ましい。

なお、ここでいう「主成分」とは、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で他の成分を含みうることを意味し、好ましくは全体の50～100質量%、より好ましくは70～100質量%、さらに好ましくは90～100質量%を意味する。

[0014] 上記エポキシ樹脂は、固体エポキシ樹脂、液状エポキシ樹脂のいずれでもよいが、得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点からは、液状エポキシ樹脂がより好ましい。本発明において「固体エポキシ樹脂」とは、室温（25℃）で固体のエポキシ樹脂を意味し、「液状エポキシ樹脂」とは、室温（25℃）で液体のエポキシ樹脂を意味し、「半固体エポキシ樹脂」とは、室温（25℃）で半固体のエポキシ樹脂を意味する。

脂」とは、室温（25℃）で液状のエポキシ樹脂を意味する。

[0015] エポキシ樹脂は、取り扱い性向上の観点から、主成分として含み得る上記エポキシ樹脂以外に、反応性希釈剤を含有していてもよい。該反応性希釈剤としては、少なくとも1つのエポキシ基を有する低分子化合物が挙げられ、例えばフェニルグリシジルエーテル、クレジルグリシジルエーテル等の芳香族モノグリシジルエーテル；ブチルグリシジルエーテル、ヘキシルグリシジルエーテル、オクチルグリシジルエーテル、デシルグリシジルエーテル、ラウリルグリシジルエーテル、テトラデシルグリシジルエーテル等のアルキルモノグリシジルエーテル；1, 3-プロパンジオールジグリシジルエーテル、1, 4-ブタンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル等の、脂肪族ジオールのジグリシジルエーテルが例示される。

上記反応性希釈剤は、1種を単独で、又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

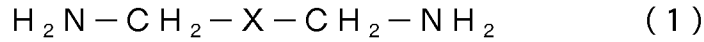
[0016] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは80g/当量以上、より好ましくは100g/当量以上、さらに好ましくは120g/当量以上、よりさらに好ましくは150g/当量以上であり、取り扱い性の観点から、好ましくは1,000g/当量以下、より好ましくは800g/当量以下、さらに好ましくは500g/当量以下、よりさらに好ましくは300g/当量以下、よりさらに好ましくは200g/当量以下である。

[0017] エポキシ樹脂として、市販品を用いることもできる。市販のエポキシ樹脂としては、三菱ケミカル（株）製の「jER825」、「jER827」、「jER828」、「jER801N」、「jER801PN」、「jER802」、「jER811」、「jER813」、「jER819」、「jER806」、「jER806H」、「jER807」等が挙げられる。

[0018] <エポキシ樹脂硬化剤>

エポキシ樹脂硬化剤は、下記一般式（1）で示されるポリアミン化合物又

はその変性体（A）を50質量%以上含む。成分（A）を50質量%以上含むエポキシ樹脂硬化剤を用いると、透水性、耐候性、及び強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れる構造物を形成できる。



（式（1）中、Xはシクロヘキシレン基である。）

[0019] 前記式（1）中、Xは1, 2-シクロヘキシレン基、1, 3-シクロヘキシレン基又は1, 4-シクロヘキシレン基であり、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、1, 3-シクロヘキシレン基又は1, 4-シクロヘキシレン基であることが好ましく、1, 3-シクロヘキシレン基であることがより好ましい。すなわち、前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物は、1, 2-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、1, 3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、及び1, 4-ビス（アミノメチル）シクロヘキサンからなる群から選ばれる1種以上のビス（アミノメチル）シクロヘキサンであり、1, 3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン及び1, 4-ビス（アミノメチル）シクロヘキサンからなる群から選ばれる1種以上が好ましく、1, 3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサンがより好ましい。

[0020] 前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物の変性体としては、好ましくは下記（I）～（IV）からなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

（I）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物のマンニッヒ反応生成物

（II）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、不飽和炭化水素化合物との反応生成物

（III）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、少なくとも1つのエポキシ基を有するエポキシ化合物との反応生成物

（IV）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応生成物

[0021] (I) 前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物のマンニッヒ反応生成物)

変性体(I)は、前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物のマンニッヒ反応生成物である。

変性体(I)に用いるフェノール化合物としては、フェノール、アルキルフェノール、アルケニルフェノール、テルペンフェノール、及び、カルダノール等の、天然に産出されるフェノール化合物が挙げられる。舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、アルキルフェノールにおけるアルキル基の炭素数は、好ましくは1~24、より好ましくは1~18であり、アルケニルフェノールにおけるアルケニル基の炭素数は、好ましくは2~24、より好ましくは2~18である。

フェノール化合物の具体例としては、フェノール、クレゾール、エチルフェノール(p-エチルフェノール等)、イソプロピルフェノール(o-イソプロピルフェノール、p-イソプロピルフェノール等)、ブチルフェノール(p-tert-ブチルフェノール、p-sec-ブチルフェノール、o-tert-ブチルフェノール、o-sec-ブチルフェノール等)、アミルフェノール(p-tert-アミルフェノール、o-tert-アミルフェノール等)、p-オクチルフェノール、ノニルフェノール、p-クミルフェノール、デシルフェノール、ウンデシルフェノール、p-ドデシルフェノール、トリデシルフェノール、テトラデシルフェノール、ペンタデシルフェノール、ペンタデセニルフェノール、ペンタデカジエニルフェノール、ペンタデカトリエニルフェノール、ヘキサデシルフェノール、ヘプタデシルフェノール、オクタデシルフェノール、オクタデセニルフェノール、テルペンフェノール、カルダノールが挙げられ、これらは1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ用いることができる。

上記の中でも、前記一般式(1)で示されるポリアミン化合物との反応性の観点、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強

度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、変性体 (I) に用いるフェノール化合物としては、フェノール、クレゾール、p - t e r t - ブチルフェノール、ノニルフェノール、及びカルダノールからなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、フェノールがより好ましい。

[0022] 変性体 (I) に用いるアルデヒド化合物としては、ホルムアルデヒド；トリオキサン、パラホルムアルデヒド等のホルムアルデヒド放出性化合物；ベンズアルデヒド等のその他のアルデヒド類；が挙げられる。これらの中でも、ホルムアルデヒド及びホルムアルデヒド放出性化合物からなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましい。中でも、マンニヒ反応における作業性の観点からは、ホルムアルデヒド水溶液を用いることがより好ましい。

[0023] 変性体 (I) の製造方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、前記ポリアミン化合物とフェノール化合物との混合物に、アルデヒド化合物又はその溶液を、好ましくは80℃以下、より好ましくは60℃以下で滴下等により添加し、添加終了後、好ましくは80～180℃、より好ましくは90～150℃に昇温して、留出物を反応系から除去しながら1～10時間反応させる方法が挙げられる。

マンニヒ反応におけるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物の使用量は、得られる変性体 (I) が活性水素を有するアミノ基を含有するような比率であれば特に制限されないが、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物との反応性の観点、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは以下の範囲である。

アルデヒド化合物は、ポリアミン化合物1モルに対し、好ましくは0.3～2モル、より好ましくは0.5～1.5モルの範囲で使用される。またフェノール化合物は、ポリアミン化合物1モルに対し、好ましくは0.3～2モル、より好ましくは0.5～1.5モルの範囲で使用される。

[0024] ((II) 前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、不飽和炭化水素化合物との反応生成物)

変性体 (II) は、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、不飽和炭化水素化合物との反応生成物である。

変性体 (II) に用いられる不飽和炭化水素化合物としては、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物との反応性の観点、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、炭素数が 2 ~ 10 の不飽和炭化水素化合物が好ましい。

該不飽和炭化水素化合物としては、炭素数が 2 ~ 10 の不飽和脂肪族炭化水素化合物、及び、炭素数が 2 ~ 10 のエチレン性不飽和結合を有する芳香族炭化水素化合物が挙げられ、例えば、エチレン、プロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、ノネン、デセン、イソブチレン、2-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、2-メチル-2-ブテン、2,3-ジメチル-2-ブテン、シクロヘキセン、シクロヘキサジエン、スチレン、及びジビニルベンゼンからなる群から選ばれる少なくとも 1 種が挙げられる。

これらの中でも、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物との反応性の観点、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、スチレン、ジビニルベンゼン等の、エチレン性不飽和結合を有する芳香族炭化水素化合物が好ましく、スチレンがより好ましい。

[0025] 変性体 (II) の製造方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、前記ポリアミン化合物と不飽和炭化水素化合物とを加熱条件下で付加反応させることにより得られる。

付加反応における不飽和炭化水素化合物の使用量は、得られる変性体 (II) が活性水素を有するアミノ基を含有するような比率であれば特に制限されないが、前記ポリアミン化合物 1 モルに対し、好ましくは 0.1 ~ 5.0 モル、より好ましくは 0.4 ~ 3.0 モル、さらに好ましくは 0.5 ~ 1.5 モル、よりさらに好ましくは 0.8 ~ 1.2 モルの範囲である。

[0026] ((III) 前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、少なくとも 1 つ

のエポキシ基を有するエポキシ化合物との反応生成物)

変性体 (III) は、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、少なくとも1つのエポキシ基を有するエポキシ化合物との反応生成物である。

変性体 (III) に用いられるエポキシ化合物としては、エピクロロヒドリン、ブチルグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1, 3-プロパンジオールジグリシジルエーテル、1, 4-ブタンジオールジグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル、ビスフェノールジグリシジルエーテル、ジヒドロキシナフタレンジグリシジルエーテル、ジヒドロキシアントラセンジグリシジルエーテル、トリグリシジルイソシアヌレート、テトラグリシジルグリコールウリル、メタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有する多官能エポキシ樹脂、1, 3-ビス (アミノメチル) シクロヘキサンから誘導されたグリシジルアミノ基を有する多官能エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタンから誘導されたグリシジルアミノ基を有する多官能エポキシ樹脂、パラアミノフェノールから誘導されたグリシジルアミノ基及びグリシジルオキシ基を有する多官能エポキシ樹脂、ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有する多官能エポキシ樹脂、ビスフェノールFから誘導されたグリシジルオキシ基を有する多官能エポキシ樹脂、フェノールノボラックから誘導されたグリシジルオキシ基を有する多官能エポキシ樹脂、及びレゾルシノールから誘導されたグリシジルオキシ基を有する多官能エポキシ樹脂等が挙げられ、これらのうち1種又は2種以上を用いることができる。

[0027] 変性体 (III) の製造方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、前記ポリアミン化合物とエポキシ化合物とを加熱条件下で付加反応させることにより得られる。

付加反応における前記ポリアミン化合物とエポキシ化合物の使用量は、得られる変性体 (III) が活性水素を有するアミノ基を含有するような比率であれば特に制限されないが、エポキシ化合物のエポキシ当量に対して過剰量のポリアミン化合物を用いることが好ましい。具体的には、ポリアミン化合物

の活性水素数／エポキシ化合物のエポキシ基数が、好ましくは4～50、より好ましくは8～20となる比率でポリアミン化合物とエポキシ化合物とを反応させる。

[0028] ( (IV) 前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応生成物)

変性体 (IV) は、前記一般式 (1) で示されるポリアミン化合物と、不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応生成物である。

変性体 (IV) に用いられる不飽和カルボン酸又はその誘導体としては、アクリル酸、メタクリル酸、 $\alpha$ -エチルアクリル酸、 $\alpha$ -プロピルアクリル酸、 $\alpha$ -イソプロピルアクリル酸、 $\alpha$ -n-ブチルアクリル酸、 $\alpha$ -t-ブチルアクリル酸、 $\alpha$ -ペンチルアクリル酸、 $\alpha$ -フェニルアクリル酸、 $\alpha$ -ベンジルアクリル酸、クロトン酸、2-ペンテン酸、2-ヘキセン酸、4-メチル-2-ペンテン酸、2-ヘプテン酸、4-メチル-2-ヘキセン酸、5-メチル-2-ヘキセン酸、4,4-ジメチル-2-ペンテン酸、4-フェニル-2-ブテン酸、桂皮酸、o-メチル桂皮酸、m-メチル桂皮酸、p-メチル桂皮酸、2-オクテン酸等の不飽和カルボン酸、及びこれらのエステル、アミド、酸無水物、酸塩化物等が挙げられる。

上記の中でも、不飽和カルボン酸又はその誘導体としては、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸及びこれらの誘導体からなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸及びこれらのアルキルエステルからなる群から選ばれる少なくとも1種がより好ましく、アクリル酸、メタクリル酸、及びこれらのアルキルエステルからなる群から選ばれる少なくとも1種がさらに好ましく、アクリル酸のアルキルエステルがよりさらに好ましく、アクリル酸メチルがよりさらに好ましい。

[0029] 変性体 (IV) の製造方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、前記ポリアミン化合物と不飽和カルボン酸又はその誘導体とを加熱条件下で反応させることにより得られる。

前記ポリアミン化合物と不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応モル比

(ポリアミン化合物／不飽和カルボン酸又はその誘導体)は、得られる変性体(IV)が活性水素を有するアミノ基を含有するような比率であれば特に制限されないが、好ましくは0.3～1.0の範囲であり、より好ましくは0.6～1.0の範囲である。

[0030] 前記ポリアミン化合物、及びその変性体は、1種又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

上記の中でも、成分(A)としては、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン及び1,4-ビス(アミノメチル)シクロヘキサンからなる群から選ばれる少なくとも1種であり、より好ましくは1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサンである。

[0031] 成分(A)の活性水素当量(AHEW)は、好ましくは130以下であり、より好ましくは120以下、さらに好ましくは110以下である。成分(A)のAHEWが130以下であると、舗装材用組成物への配合量が少なくても良好な硬化性能を発現する。また成分(A)のAHEWは、ビス(アミノメチル)シクロヘキサンのAHEW以上の値であることから、35.6以上である。

成分(A)のAHEWは、例えば滴定法により求めることができる。

[0032] エポキシ樹脂硬化剤中の成分(A)の含有量は、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、50質量%以上であり、好ましくは70質量%以上、より好ましくは85質量%以上、さらに好ましくは90質量%以上、よりさらに好ましくは95質量%以上であり、また、100質量%以下である。

[0033] (他の硬化剤成分)

エポキシ樹脂硬化剤は、さらに、成分(A)以外の他の硬化剤成分を含有してもよい。当該「他の硬化剤成分」としては、成分(A)以外のポリアミン化合物又はその変性体が挙げられる。

該ポリアミン化合物としては、例えば、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエ

チレンヘキサミン、ヘキサメチレンジアミン、2-メチルペンタメチレンジアミン、トリメチルヘキサメチレンジアミン等の鎖状脂肪族ポリアミン化合物；オルトキシリレンジアミン、メタキシリレンジアミン、パラキシリレンジアミン等の芳香環を有する脂肪族ポリアミン化合物；メンセンジアミン、イソホロンジアミン、ノルボルナンジアミン、トリシクロデカンジアミン、アダマンタンジアミン、ジアミノシクロヘキサン、1,4-ジアミノ-2-メチルシクロヘキサン、1,4-ジアミノ-3,6-ジエチルシクロヘキサン、ジアミノジエチルメチルシクロヘキサン、3,3'-ジメチル-4,4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン（ビス（4-アミノ-3-メチルシクロヘキシル）メタン）、3,3',5,5'-テトラメチル-4,4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン、4,4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン等の脂環式構造を有するポリアミン化合物；フェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、ジエチルトルエンジアミン、2,2'-ジエチル-4,4'-メチレンジアニリン等の芳香族ポリアミン化合物；N-アミノメチルピペラジン、N-アミノエチルピペラジン、N,N'-ビス（アミノエチル）ピペラジン等の複素環式構造を有するポリアミン化合物；ポリエーテルポリアミン化合物等が挙げられる。

また、当該ポリアミン化合物の変性体としては、上記化合物のマンニヒ変性物、エポキシ変性物、マイケル付加物、マイケル付加・重縮合物、スチレン変性物、ポリアミド変性物等が挙げられる。これらは1種を単独で、又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0034] 但し、エポキシ樹脂硬化剤中の、成分（A）以外の硬化剤成分の含有量は、本発明の効果をより有効に得る観点から、50質量%以下であり、好ましくは30質量%以下、より好ましくは15質量%以下、さらに好ましくは10質量%以下、よりさらに好ましくは5質量%以下であり、0質量%であってもよい。

[0035] エポキシ樹脂硬化剤の活性水素当量（AHEW）は、舗装材用組成物への配合量が少なくても高い硬化性を発現する観点から、好ましくは150以下

であり、より好ましくは140以下、さらに好ましくは130以下、よりさらに好ましくは120以下である。一方で舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、当該硬化剤のAHEWは、好ましくは30以上であり、より好ましくは35以上である。

[0036] <骨材>

本発明に用いる骨材としては、景観舗装用の無機粒状骨材が好ましい。該骨材は、天然骨材、人工骨材のいずれでもよいが、景観舗装用の舗装材に用いる観点からは、自然石等の天然骨材が好ましい。

骨材の具体例としては、玉砂利、川砂利、碎石、珪石、川砂、砕砂、珪砂、スラグ、ガラスビーズ、ガラスの破砕片、陶器の破砕片、セラミックボール、産業廃棄物の加工品、並びに、アルミナ、クレー、タルク、ガラス、マイカ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、酸化アルミニウム、水酸化アルミニウムの粉末又は細粒が挙げられ、これらのうち1種又は2種以上を用いることができる。

上記の中でも、骨材としては、景観舗装に用いる観点、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、玉砂利及び珪砂からなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性向上の観点からは、玉砂利がより好ましい。

[0037] 骨材の粒径は特に制限されないが、好ましくは0.002~50mm、より好ましくは0.1~30mm、さらに好ましくは0.5~20mm、よりさらに好ましくは0.5~10mmである。骨材の粒径が0.002mm以上であれば、得られる構造物の透水性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上効果が良好である。また、50mm以下であれば、得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上効果が良好である。

骨材の粒径は、JIS A1204:2020「土の粒度試験方法」に準拠した方法により求めることができる。

[0038] 珪砂の粒度区分は、J I S G 5 9 0 1 : 2 0 1 6において3号～8号に分類されている。骨材が珪砂である場合、該珪砂の粒度区分としては、舗装材用組成物を硬化させて得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは珪砂3号～7号、より好ましくは珪砂3号～5号、さらに好ましくは珪砂3号～4号である。

[0039] 骨材の粒子形状は特に制限されず、球状、非球状のいずれでもよい。球状には、断面が楕円形状等の、略球状も含まれる。非球状の粒子形状としては、板状、鱗片状、鎖状、柱状、破碎片状等が挙げられる。

[0040] 骨材の含水率は特に制限されないが、得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは30質量%以下であり、より好ましくは25質量%以下、さらに好ましくは20質量%以下、よりさらに好ましくは10質量%以下、よりさらに好ましくは5.0質量%以下、よりさらに好ましくは3.0質量%以下である。下限値は0質量%であってもよく、好ましくは0.01質量%以上、より好ましくは0.05質量%以上、さらに好ましくは0.1質量%以上である。

ここでいう骨材の含水率とは、本発明の組成物への配合時の骨材の含水率を意味する。骨材の含水率は、具体的には実施例に記載の方法で測定できる。

[0041] <その他の成分>

舗装材用組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、さらに公知の可塑剤などの改質成分、揺変剤などの流動調整成分、レベリング剤、粘着付与剤、硬化促進剤などのその他の成分を配合してもよい。

[0042] <含有量>

舗装材用組成物中の各成分の含有量又は含有量比は、好ましくは下記の範囲である。

舗装材用組成物中に含まれる、前記エポキシ樹脂と前記エポキシ樹脂硬化剤との比率は、硬化性の観点、得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、エポキシ樹脂中のエポキシ基数に

対する、エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数の比〔活性水素数／エポキシ基数〕が、好ましくは $1/0.8 \sim 1/1.2$ 、より好ましくは $1/0.9 \sim 1/1.1$ 、さらに好ましくは $1/1$ となる量である。

[0043] 舗装材用組成物中に含まれる、前記骨材に対する前記エポキシ樹脂の質量割合〔エポキシ樹脂／骨材〕は、好ましくは $0.005 \sim 0.5$ 、より好ましくは $0.01 \sim 0.3$ 、さらに好ましくは $0.01 \sim 0.2$ 、よりさらに好ましくは $0.01 \sim 0.1$ の範囲である。〔エポキシ樹脂／骨材〕が $0.005$ 以上であれば、得られる構造物における骨材の脱落を抑制しやすく、 $0.5$ 以下であれば、得られる構造物の透水性、強度、湿潤環境下での強度保持率がより向上する。

なお、使用する骨材が含水骨材である場合は、骨材の乾燥質量に対する、エポキシ樹脂の質量割合が上記範囲であることが好ましい。

[0044] 舗装材用組成物中のエポキシ樹脂の含有量は、硬化性の観点、得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは $0.1 \sim 30$ 質量%、より好ましくは $0.2 \sim 25$ 質量%、さらに好ましくは $0.5 \sim 20$ 質量%、よりさらに好ましくは $1.0 \sim 15$ 質量%、よりさらに好ましくは $1.0 \sim 10$ 質量%である。

[0045] 舗装材用組成物中のエポキシ樹脂硬化剤の含有量は、硬化性の観点、得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは $0.01 \sim 15$ 質量%、より好ましくは $0.05 \sim 10$ 質量%、さらに好ましくは $0.1 \sim 5.0$ 質量%である。

[0046] 舗装材用組成物中の骨材の含有量は、硬化性の観点、得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは $50 \sim 99.5$ 質量%、より好ましくは $55 \sim 99$ 質量%、さらに好ましくは $60 \sim 99$ 質量%、よりさらに好ましくは $70 \sim 99$ 質量%、よりさらに好ましくは $80 \sim 99$ 質量%、よりさらに好ましくは $85 \sim 99$ 質量%、よりさらに好ましくは $87 \sim 99$ 質量%である。

なお本明細書において「骨材の含有量」とは、含水骨材を用いた場合であ

っても、骨材の乾燥質量を基準とした含有量を意味する。

[0047] 舗装材用組成物中のエポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、及び骨材の合計含有量は、得られる構造物の透水性、耐候性、強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、よりさらに好ましくは80質量%以上、よりさらに好ましくは90質量%以上、よりさらに好ましくは95質量%以上であり、100質量%以下である。

[0048] 舗装材用組成物中の水の含有量は、得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは10質量%以下、より好ましくは5質量%以下、さらに好ましくは2質量%以下である。但し、前記水の含有量は、意図的に配合する水の量であり、例えば、各配合成分に予め含まれている水分の含有を排除するものではない。

[0049] 舗装材用組成物中の有機溶剤の含有量は、得られる構造物の強度、湿潤環境下での強度保持率向上の観点から、好ましくは10質量%以下、より好ましくは5質量%以下、さらに好ましくは2質量%以下であり、下限は0質量%である。

[0050] 本発明のエポキシ樹脂組成物の製造方法には特に制限はなく、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、骨材、及び必要に応じ他の成分を公知の方法及び装置を用いて混合し、製造することができる。

[0051] [構造物]

本発明の構造物は、上述した本発明の舗装材用組成物の硬化物を含む。舗装材用組成物は公知の方法で硬化させることができる。舗装材用組成物の硬化条件は使用環境、構造物の形態等に応じて適宜選択され、特に限定されないが、室温条件下、大気中で硬化させることが可能である。

本発明の構造物は、舗装材、特に景観舗装材として好適に用いられる。

[0052] <構造物の特性>

本発明の舗装材用組成物により、強度、及び、湿潤環境下での強度保持率が高い構造物が得られる。例えば、本発明の舗装材用組成物を硬化させて得

られる、16cm×16cm×4cmの平板形状の構造物は、JIS R 5201：2015に準拠した方法で試験速度1mm/分で曲げ試験を行った場合に測定される最大曲げ応力が、好ましくは2.0MPa以上、より好ましくは2.5MPa以上、さらに好ましくは3.0MPa以上である。

また、上記構造物を23℃の水に1週間浸漬させた後の最大曲げ応力の保持率は、好ましくは90%以上、より好ましくは95%以上である。

最大曲げ応力及びその保持率は、具体的には実施例に記載の方法により求めることができる。

## 実施例

[0053] 以下に実施例及び比較例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明は下記実施例に限定されるものではない。なお、実施例における各種測定は下記方法により行った。

[0054] (骨材の含水率)

23℃、50%RHの条件下で保管していた骨材を100～150g秤量し、110℃の温風乾燥機で乾燥させた。適宜重量を測定し、重量変化が見られなくなったところで水分が完全に乾燥したと仮定し、下記式より骨材の含水率を算出した。

骨材の含水率(質量%) = [(乾燥前の骨材の質量(g)) - (乾燥後の骨材の質量(g))] / (乾燥前の骨材の質量(g)) × 100

[0055] (透水性)

各例で得られた舗装材用組成物を11cm×11cm×2cmの型に入れ、23℃、50%RHの大気中で1週間養生し、硬化させた。得られた平板状の硬化物の上に、水で満たした50mLスクリー管を逆さにして載置し、スクリー管中の水が落ちきるまでの時間を測定した。ここで、本試験1回目においては水は比較的遅く抜けるが、試験回数を重ねると水が落ちきるまでの時間が次第に早くなり、最終的には定常状態となる。そこで、この試験を同じ硬化物を用いて繰り返し、水が落ちる速度が一定になったところで試験を終了した。水が落ちる速度が一定になった時の、水が落ちきるの

にかかった時間を表1に示した。水が落ちきるまでの時間が2分未満であれば、透水性が良好であると判断できる。

[0056] (ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>))

表1に記載のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤を、エポキシ樹脂中のエポキシ基数とエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数とが等量となるように混合した。得られた混合物を23℃、50% R. H. の条件下で7日間養生して硬化させ、試料を作製した。該試料について、示差走査熱量計「TADSC-25」(オムロン(株)製)を用いて、昇温速度10℃/分の条件で35~225℃まで示差走査熱分析を行い、T<sub>g</sub>を求めた。

[0057] (耐候性 (Y<sub>l</sub>))

ISO 4982 Part 3 Method A規格に準拠して耐候性試験を行った。

表1に記載のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤を、エポキシ樹脂中のエポキシ基数とエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数とが等量となるように混合した。得られた混合物を5cm×5cm×2mmの型に入れ、23℃、50% R. H. の大気中で1週間養生し、硬化させた。得られた平板状の硬化物(試験片)について、色差計(日本電色工業(株)製「COH400」)を用いて、JIS K 7373:2006に準拠してY<sub>l</sub>値を測定した(積算露光量0kJ/m<sup>2</sup>)。次いで、試験片をUV試験機「サンテストXXL+」((株)東洋精機製作所製)に入れ、温度38℃で、キセノンランプにより波長300~400nmの紫外線を照度60W/m<sup>2</sup>の強度で照射した。積算露光量が所定量に到達した後に試験片を取り出し、前記と同様にY<sub>l</sub>値を測定し、表1に示した。Y<sub>l</sub>値の上昇が少ないほど硬化物の耐候性が良好であることを示し、特に、積算露光量35449kJ/m<sup>2</sup>時点でのY<sub>l</sub>値が15以下であれば、耐候性が良好であると判断できる。

[0058] (最大曲げ応力)

表2~3に記載の舗装材用組成物を16cm×16cm×4cmの型に入れ、23℃、50% R. H. の大気中で1週間養生し、硬化させた。得られ

た硬化物について、JIS R 5201:2015に準拠した方法で、精密万能試験機（（株）島津製作所製「オートグラフ AG-Xplus 100kN」）を用いて、試験速度1mm/分で曲げ試験（N=3）を実施し、浸水前の最大曲げ応力を測定した。最大曲げ応力は3回測定の平均値とした。

上記硬化物を23℃の水中に1週間浸漬させたものについても同様に曲げ試験を実施した。浸水後の硬化物の曲げ応力保持率は、下記式に基づいて算出した。

曲げ応力保持率（%）＝（浸水後の硬化物の最大曲げ応力）／（浸水前の硬化物の最大曲げ応力）×100

[0059] 実施例1～4、比較例1～6（舗装材用組成物及び硬化物の作製、評価（1）－透水性及び耐候性）

表1に記載のエポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、及び骨材をそれぞれ計量した後に配合し、23℃、50%R.H.の条件下で4分間かけ手で攪拌して舗装材用組成物を調製した。エポキシ樹脂中のエポキシ基数とエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数とは等量となるように混合した。

該組成物を用いて、前記方法で透水性評価を行った。また、表1に記載のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤を用いて、前記方法で耐候性評価を行った。結果を表1に示す。

[0060] 実施例2、4、比較例7～16（舗装材用組成物及び硬化物の作製、評価（2）－浸水前後の硬化物強度）

表2～3に記載のエポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、及び骨材をそれぞれ計量した後に配合し、23℃、50%R.H.の条件下で4分間かけ手で攪拌して舗装材用組成物を調製した。エポキシ樹脂中のエポキシ基数とエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数とは等量となるように混合した。

該組成物を用いて、前記方法で硬化物の作製及び強度評価（最大曲げ応力、曲げ応力保持率の測定）を行った。結果を表2～3に示す。

[0061]

[表1]

表 1

			実施例		比較例				実施例		比較例		
			1	1	2	3	4	2	5	3	4	6	
舗装材用組成物	エポキシ樹脂	種類	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	
	エポキシ樹脂硬化剤	種類	1,3-BAC	MXDA	IPDA	DETA	TETA	1,3-BAC	AEP	1,3-BAC	1,3-BAC	AEP	
	骨材	種類	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	玉砂利	玉砂利	玉砂利	
	エポキシ樹脂/骨材 (質量比)			0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.06	0.06	0.06	0.02	0.02
	硬化剤中の活性水素数/エポキシ樹脂中のエポキシ基数			1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1
	組成物中のエポキシ樹脂の含有量	質量%		8.9	9.0	8.9	9.0	9.0	5.6	5.6	5.6	1.9	2.0
	組成物中のエポキシ樹脂硬化剤の含有量	質量%		1.7	1.6	2.0	1.0	1.2	1.1	1.3	1.1	0.4	0.5
	組成物中の骨材の含有量	質量%		89.4	89.4	89.1	90.0	89.8	93.3	93.1	93.3	97.7	97.5
	合計	質量%		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	透水性	分:秒		1:18	透水せず	2:39	0:55	0:37	0:43	0:04	0:04	0:04	1:53
Tg	°C		54.87	51.12	51.63	50.42	49.46	54.87	50.40	54.87	54.87	50.40	
評価結果	耐候性 (YI)	積算露光量0kJ/m <sup>2</sup>		0.74	2.41	1.10	1.59	1.50	0.74	0.96	0.74	0.74	0.96
		積算露光量4273kJ/m <sup>2</sup>		2.17	10.10	2.98	10.29	14.94	2.17	-	2.17	2.17	-
		積算露光量5071kJ/m <sup>2</sup>		-	-	-	-	-	-	17.95	-	-	17.95
		積算露光量9251kJ/m <sup>2</sup>		4.43	14.11	4.92	12.75	20.66	4.43	-	4.43	4.43	-
		積算露光量10035kJ/m <sup>2</sup>		-	-	-	-	-	-	24.84	-	-	24.84
		積算露光量29668kJ/m <sup>2</sup>		-	-	-	-	-	-	35.45	-	-	35.45
		積算露光量30413kJ/m <sup>2</sup>		10.11	17.78	9.80	17.67	32.49	10.11	-	10.11	10.11	-
		積算露光量35394kJ/m <sup>2</sup>		-	-	-	-	-	-	37.70	-	-	37.70
積算露光量35449kJ/m <sup>2</sup>		11.81	18.76	10.58	17.45	34.36	11.81	-	11.81	11.81	-		

[0062] [表2]

表 2

			実施例		比較例					
			4	7	8	9	10	11	12	
舗装材用組成物	エポキシ樹脂	種類	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	
	エポキシ樹脂硬化剤	種類	1,3-BAC	MXDA	IPDA	DETA	TETA	1,3-BAC/TETA =40/60(w/w)	1,3-BAC/IPDA =40/60(w/w)	
	骨材	種類	玉砂利	玉砂利	玉砂利	玉砂利	玉砂利	玉砂利	玉砂利	
	エポキシ樹脂/骨材 (質量比)			0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
	硬化剤中の活性水素数/エポキシ樹脂中のエポキシ基数			1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	1/1
	組成物中のエポキシ樹脂の含有量	質量%		1.9	1.9	2.0	2.0	1.9	2.0	2.0
	組成物中のエポキシ樹脂硬化剤の含有量	質量%		0.4	0.4	0.5	0.2	0.3	0.3	0.4
	組成物中の骨材の含有量	質量%		97.7	97.7	97.5	97.8	97.8	97.7	97.6
	合計	質量%		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	評価結果	最大曲げ応力 (MPa)	浸水前	2.17	2.11	1.47	0.26	1.77	1.90	1.30
		浸水1週間後	2.37	1.82	1.42	1.60	1.52	1.60	1.50	
曲げ応力保持率 (%)		浸水1週間後	108.9	86.5	96.5	616.0	85.4	84.2	115.4	

[0063]

[表3]

表 3

			実施例	比較例				
			2	13	14	15	16	
舗装材用 組成物	エポキシ樹脂	種類	jER828	jER828	jER828	jER828	jER828	
	エポキシ樹脂硬化剤	種類	1,3-BAC	DETA	TETA	1,3-BAC/TETA =40/60(w/w)	1,3-BAC/IPDA =40/60(w/w)	
	骨材	種類	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	珪砂4号	
	エポキシ樹脂／骨材（質量比）		0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	
	硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基数		1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	
	組成物中のエポキシ樹脂の含有量	質量%	5.6	5.6	5.7	5.6	5.6	
	組成物中のエポキシ樹脂硬化剤の含有量	質量%	1.1	0.6	0.7	0.9	1.2	
	組成物中の骨材の含有量	質量%	93.3	93.8	93.6	93.5	93.2	
	合計		質量%	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	評価結果	最大曲げ応力（MPa）	浸水前	3.85	3.77	3.67	5.00	2.80
浸水1週間後			3.57	2.05	1.83	2.40	3.30	
曲げ応力保持率（%）		浸水1週間後	92.6	54.4	49.9	48.0	117.9	

[0064] 表 1～3 で用いた成分は下記である。

<エポキシ樹脂>

- ・ j E R 8 2 8 : ビスフェノールAから誘導されたグリシジルオキシ基を有する液状エポキシ樹脂（三菱ケミカル（株）製、エポキシ当量：186g／当量、固形分濃度：100質量%）

<エポキシ樹脂硬化剤>

- ・ 1, 3 - B A C : 1, 3 - ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、三菱瓦斯化学（株）製
- ・ M X D A : メタキシリレンジアミン、三菱瓦斯化学（株）製
- ・ I P D A : イソホロンジアミン
- ・ D E T A : ジエチレントリアミン
- ・ T E T A : トリエチレンテトラミン

<骨材>

- ・ 珪砂4号：J F E ミネラル（株）製「日光珪砂4号」、粒径0.6～1.2mm、含水率0.2質量%
- ・ 玉砂利：神畑養魚（株）製「水草と魚にやさしい玉砂利」、粒径1～5mm

m、含水率 1.3 質量%

[0065] 表 1 に示すように、本発明の舗装材用組成物の硬化物は透水性が高く、該舗装材用組成物に用いるエポキシ樹脂組成物（エポキシ樹脂＋エポキシ樹脂硬化剤）の硬化物は T<sub>g</sub> 及び耐候性が高い。また表 2～3 に示すように、本発明の舗装材用組成物の硬化物は初期強度（浸水前の最大曲げ応力）及び浸水後の曲げ応力の保持率がいずれも高いことから、強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れることがわかる。

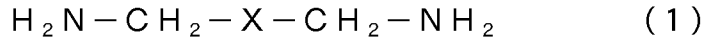
これに対し表 1 に示すように、実施例と比較して、比較例 1～2、5～6 の舗装材用組成物の硬化物は透水性が低く、比較例 1～6 の舗装材用組成物に用いるエポキシ樹脂組成物（エポキシ樹脂＋エポキシ樹脂硬化剤）の硬化物は T<sub>g</sub> が低く、比較例 1～2、4～6 の舗装材用組成物に用いるエポキシ樹脂組成物の硬化物は耐候性が低いという結果となった。さらに表 2～3 に示すように、実施例と比較して、比較例 7～16 の舗装材用組成物の硬化物は、初期強度（浸水前の最大曲げ応力）又は曲げ応力保持率の少なくとも一方が劣る結果となった。

### 産業上の利用可能性

[0066] 本発明によれば、透水性、耐候性、及び強度が高く、湿潤環境下でも強度保持率に優れる構造物が得られる舗装材用組成物を提供できる。

## 請求の範囲

[請求項1] エポキシ樹脂、下記一般式（1）で示されるポリアミン化合物又はその変性体（A）を50質量%以上含むエポキシ樹脂硬化剤、及び骨材を含有する舗装材用組成物。



（式（1）中、Xはシクロヘキシレン基である。）

[請求項2] 前記ポリアミン化合物の変性体が、下記（I）～（IV）からなる群から選ばれる少なくとも1種である、請求項1に記載の舗装材用組成物。

（I）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物、フェノール化合物、及びアルデヒド化合物のマンニッヒ反応生成物

（II）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、不飽和炭化水素化合物との反応生成物

（III）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、少なくとも1つのエポキシ基を有するエポキシ化合物との反応生成物

（IV）前記一般式（1）で示されるポリアミン化合物と、不飽和カルボン酸又はその誘導体との反応生成物

[請求項3] 前記骨材に対する、前記エポキシ樹脂の質量割合〔エポキシ樹脂／骨材〕が0.005～0.5の範囲である、請求項1又は2に記載の舗装材用組成物。

[請求項4] 前記骨材の粒径が0.002～50mmである、請求項1～3のいずれか1項に記載の舗装材用組成物。

[請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載の舗装材用組成物の硬化物を含む構造物。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/004213

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C08G 59/50</i> (2006.01)i; <i>C08L 63/00</i> (2006.01)i; <i>E01C 7/30</i> (2006.01)i FI: C08G59/50; C08L63/00 C; E01C7/30		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08G59/00-59/72; C08L1/00-101/16; E01C5/00-7/36		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2021/0253842 A1 (JIANGSU SINOROAD TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY CO., LTD.) 19 August 2021 (2021-08-19) claims, column examples (for example, example 1)	1-5
X	CN 106977966 A (JIANGSU SINOROAD TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY CO., LTD.) 25 July 2017 (2017-07-25) claims, example columns, (for example, example 3)	1-5
X	JP 2002-161076 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 04 June 2002 (2002-06-04) claims, paragraph [0001], examples	1-5
X	JP 2004-75989 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 11 March 2004 (2004-03-11) claims, paragraphs [0001], [0002], example columns	1-5
A	CN 113861796 A (SHANXI TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY R & D CO., LTD.) 31 December 2021 (2021-12-31)	1-5
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "D" document cited by the applicant in the international application "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search <b>17 April 2024</b>		Date of mailing of the international search report <b>07 May 2024</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/004213

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	CN 107446119 A (JIANGSU SINOROAD ENGINEERING TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE CO., LTD.) 08 December 2017 (2017-12-08)	1-5
A	DE 4437419 A1 (RUETGERSWERKE AG) 25 April 1996 (1996-04-25)	1-5
A	US 4255468 A (H. B. FULLER COMPANY) 10 March 1981 (1981-03-10)	1-5
A	US 4185132 A (H. B. FULLER COMPANY) 22 January 1980 (1980-01-22)	1-5
A	JP 4-102604 A (NIPPON STEEL CHEM. CO., LTD.) 03 April 1992 (1992-04-03)	1-5
A	JP 2000-80152 A (MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION) 21 March 2000 (2000-03-21)	1-5
A	JP 7-11106 A (SANYO CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 13 January 1995 (1995-01-13)	1-5
A	CN 114891319 A (SOUTHEAST UNIVERSITY) 12 August 2022 (2022-08-12)	1-5
A	JP 2004-263177 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 24 September 2004 (2004-09-24)	1-5
A	WO 2018/096868 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 31 May 2018 (2018-05-31)	1-5

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2024/004213**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
US	2021/0253842	A1	19 August 2021	WO 2020/223872 A1	
CN	106977966	A	25 July 2017	(Family: none)	
JP	2002-161076	A	04 June 2002	US 2002/0055605 A1 claims, paragraph [0002], column examples	
				EP 1188740 A2	
JP	2004-75989	A	11 March 2004	US 2004/0044176 A1 claims, paragraphs [0002]- [0004], column examples	
				EP 1375554 A1	
CN	113861796	A	31 December 2021	(Family: none)	
CN	107446119	A	08 December 2017	(Family: none)	
DE	4437419	A1	25 April 1996	EP 709350 A1	
US	4255468	A	10 March 1981	(Family: none)	
US	4185132	A	22 January 1980	US 4088633 A	
JP	4-102604	A	03 April 1992	(Family: none)	
JP	2000-80152	A	21 March 2000	(Family: none)	
JP	7-11106	A	13 January 1995	(Family: none)	
CN	114891319	A	12 August 2022	JP 2023-184472 A US 2023/0407083 A1 EP 4293063 A1	
JP	2004-263177	A	24 September 2004	US 2004/0171770 A1 EP 1452554 A1	
WO	2018/096868	A1	31 May 2018	US 2019/0256645 A1 EP 3546494 A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/50(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; E01C 7/30(2006.01)i FI: C08G59/50; C08L63/00 C; E01C7/30		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08G59/00-59/72; C08L1/00-101/16; E01C5/00-7/36 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2024年 日本国実用新案登録公報 1996-2024年 日本国登録実用新案公報 1994-2024年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	US 2021/0253842 A1 (JIANGSU SINOROAD TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY CO., LTD.) 19.08.2021 (2021-08-19) 特許請求の範囲, 実施例欄(例えば[実施例1])等	1-5
X	CN 106977966 A (JIANGSU SINOROAD TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY CO., LTD.) 25.07.2017 (2017-07-25) 特許請求の範囲, 実施例欄(例えば[実施例3])等	1-5
X	JP 2002-161076 A (三菱瓦斯化学株式会社) 04.06.2002 (2002-06-04) 特許請求の範囲, [0001], 実施例欄等	1-5
X	JP 2004-75989 A (三菱瓦斯化学株式会社) 11.03.2004 (2004-03-11) 特許請求の範囲, [0001]~[0002], 実施例欄等	1-5
A	CN 113861796 A (SHANXI TRANSPORTATION SCIENCE AND TECHNOLOGY R & D CO., LTD.) 31.12.2021 (2021-12-31)	1-5
A	CN 107446119 A (JIANGSU SINOROAD ENGINEERING TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE CO., LTD.) 08.12.2017 (2017-12-08)	1-5
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	17.04.2024	国際調査報告の発送日 07.05.2024
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官）  前田 孝泰 4J 9456  電話番号 03-3581-1101 内線 3457	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	DE 4437419 A1 (RUETGERSWERKE AG) 25.04.1996 (1996 - 04 - 25)	1-5
A	US 4255468 A (H. B. FULLER COMPANY) 10.03.1981 (1981 - 03 - 10)	1-5
A	US 4185132 A (H. B. FULLER COMPANY) 22.01.1980 (1980 - 01 - 22)	1-5
A	JP 4-102604 A (新日鐵化学株式会社) 03.04.1992 (1992 - 04 - 03)	1-5
A	JP 2000-80152 A (三菱化学株式会社) 21.03.2000 (2000 - 03 - 21)	1-5
A	JP 7-11106 A (三洋化成工業株式会社) 13.01.1995 (1995 - 01 - 13)	1-5
A	CN 114891319 A (SOUTHEAST UNIVERSITY) 12.08.2022 (2022 - 08 - 12)	1-5
A	JP 2004-263177 A (三菱瓦斯化学株式会社) 24.09.2004 (2004 - 09 - 24)	1-5
A	WO 2018/096868 A1 (三菱瓦斯化学株式会社) 31.05.2018 (2018 - 05 - 31)	1-5

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/004213

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
US 2021/0253842 A1	19.08.2021	WO 2020/223872 A1	
CN 106977966 A	25.07.2017	(ファミリーなし)	
JP 2002-161076 A	04.06.2002	US 2002/0055605 A1 特許請求の範囲, [0002], 実施例欄等	
		EP 1188740 A2	
JP 2004-75989 A	11.03.2004	US 2004/0044176 A1 特許請求の範囲, [0002]~ [0004], 実施例欄等	
		EP 1375554 A1	
CN 113861796 A	31.12.2021	(ファミリーなし)	
CN 107446119 A	08.12.2017	(ファミリーなし)	
DE 4437419 A1	25.04.1996	EP 709350 A1	
US 4255468 A	10.03.1981	(ファミリーなし)	
US 4185132 A	22.01.1980	US 4088633 A	
JP 4-102604 A	03.04.1992	(ファミリーなし)	
JP 2000-80152 A	21.03.2000	(ファミリーなし)	
JP 7-11106 A	13.01.1995	(ファミリーなし)	
CN 114891319 A	12.08.2022	JP 2023-184472 A	
		US 2023/0407083 A1	
		EP 4293063 A1	
JP 2004-263177 A	24.09.2004	US 2004/0171770 A1	
		EP 1452554 A1	
WO 2018/096868 A1	31.05.2018	US 2019/0256645 A1	
		EP 3546494 A1	