

(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
2020年7月30日(30.07.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/153341 A1

(51) 国際特許分類:
E01C 7/22 (2006.01) *C08L 67/00* (2006.01)
E01C 11/16 (2006.01) *C08L 95/00* (2006.01)
C08L 1/00 (2006.01)

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.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/001883

(22) 国際出願日: 2020年1月21日(21.01.2020)

(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 2019-008044 2019年1月21日(21.01.2019) JP

(71) 出願人: 花王株式会社(**KAO CORPORATION**)
[JP/JP]; 〒1038210 東京都中央区日本橋茅場
町一丁目14番10号 Tokyo (JP).

(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, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, 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, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(72) 発明者: 秋野 雄亮(**AKINO, Yusuke**); 〒6408580
和歌山県和歌山市湊1334番地 花王株
式会社研究所内 Wakayama (JP). 橋本 良一
(**HASHIMOTO, Ryoichi**); 〒6408580 和歌山県
和歌山市湊1334番地 花王株式会社研究所内
Wakayama (JP). 山田 貢平(**YAMADA, Kohei**);
〒6408580 和歌山県和歌山市湊1334番地 花
王株式会社研究所内 Wakayama (JP). 汲田 泰
和(**KUMITA, Yasukazu**); 〒6408580 和歌山県和
歌山市湊1334番地 花王株式会社研究所内
Wakayama (JP). 大崎 和友(**OSAKI, Kazutomo**);
〒6408580 和歌山県和歌山市湊1334番地
花王株式会社研究所内 Wakayama (JP).

(74) 代理人: 特許業務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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,

(54) **Title:** ASPHALT COMPOSITION AND MANUFACTURING METHOD THEREFOR, AND MANUFAC-
TURING METHOD FOR ASPHALT MIXTURE

(54) 発明の名称: アスファルト組成物及びその製造方法、並びにアスファルト混合物の製造方法

(57) **Abstract:** Provided is an asphalt composition containing asphalt, cellulose, and a polyester.

(57) 要約: アスファルト、セルロース及びポリエステルを含有する、アスファルト組成物。



WO 2020/153341 A1

明 細 書

発明の名称：

アスファルト組成物及びその製造方法、並びにアスファルト混合物の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、アスファルト組成物及びその製造方法、並びにアスファルト混合物の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 自動車道や駐車場、貨物ヤード、歩道等の舗装には、敷設が比較的容易であり、舗装作業開始から交通開始までの時間が短くてすむことから、アスファルト混合物を用いるアスファルト舗装が行われている。

このアスファルト舗装は、骨材をアスファルトで結合したアスファルト混合物によって路面が形成されているので、舗装道路は良好な硬度や耐久性を有している。

しかしながら、アスファルト舗装が経年劣化し、轍掘れや、ひび割れが発生するという問題があった。

特開 2 0 1 1 - 1 1 1 7 1 2 号公報（特許文献 1）には、舗装面における轍掘れの発生を抑制しながら、環境負荷を低減することを目的として、アスファルト混合物と植物繊維体とからなり、該植物繊維体が、ケナフ繊維又はケナフ繊維製のメッシュシートである舗装用アスファルトコンクリート組成物が開示されている。

また、特開 2 0 0 1 - 1 5 8 8 5 7 号公報（特許文献 2）には、アスファルトの耐流動性、耐摩耗性及び耐クラック性の向上したアスファルト組成物を提供することを目的として、アスファルトと疎水化セルロース繊維とを含むアスファルト組成物が開示されている。

発明の概要

[0003] 本発明は、以下の〔1〕～〔6〕に関する。

〔１〕 アスファルト、セルロース及びポリエステルを含有する、アスファルト組成物。

〔２〕 セルロースをアスファルト１００質量部に対して０．０１質量部以上１０質量部以下と、ポリエステルを前記アスファルト１００質量部に対して２質量部以上３０質量部以下とを配合してなる、アスファルト組成物。

〔３〕 上記〔１〕又は〔２〕に記載のアスファルト組成物を製造する方法であって、前記アスファルトと、前記セルロースと、前記ポリエステルとを混合する工程を有する、アスファルト組成物の製造方法。

〔４〕 アスファルトと骨材とを混合して混合物を得た後、その混合物とポリエステルとセルロースとを混合する、アスファルト混合物の製造方法。

〔５〕 アスファルトとポリエステルとセルロースとを混合してアスファルト組成物を得た後、該アスファルト組成物と骨材とを混合する、アスファルト混合物の製造方法。

〔６〕 上記〔１〕又は〔２〕に記載のアスファルト組成物の道路舗装への使用。

発明を実施するための形態

[0004] [アスファルト組成物]

本発明のアスファルト組成物は、アスファルト、セルロース及びポリエステルを含有する。セルロースの含有量又は配合量は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性（耐疲労ひび割れ性）の観点から、アスファルト１００質量部に対して好ましくは０．０１質量部以上１０質量部以下である。セルロースの結晶化指数は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは５０％以下である。ポリエステルの含有量又は配合量は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、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３０質量部以下である。以下、結晶化指数が５０％以下であるセルロースを「非晶化セルロース」ともいう。

[0005] 本発明者らは、アスファルト組成物に、セルロース（好ましくは結晶化指数が特定の値である非晶化セルロース）を特定量含有させるとともにポリエ

ステルを特定量含有させることによって、該アスファルト組成物を使用して得られるアスファルト舗装の轍掘れ及び疲労ひび割れの発生が抑制されることを見出した。

本発明の効果が得られる詳細な機構は不明であるが、一部は以下のように考えられる。すなわち、従来、機械的強度を向上させるために、アスファルトに補強繊維を添加することが行われてきた。本発明では、強固な結晶構造を有しない、結晶化指数の低いセルロースを使用することによって、アスファルト組成物中でのセルロースの分散性が向上し、これにより、耐轍掘れや耐疲労ひび割れ等の機械的特性が向上したものと推定される。更にセルロース及びポリエステルを併用することで、ポリエステルが高い分子間力（ファンデルワールス力）を発揮して骨材に吸着し、骨材をアスファルトに繋ぎ止める効果を付与することで耐流動性が向上し、耐轍掘れや耐疲労ひび割れ等の機械的特性が更に向上したものと推定される。

[0006] なお、「轍掘れ」とは、夏季等の高温化において、舗装面を形成するアスファルト層が流動し、道路走行部分に縦断方向に連続して生じる凹凸である。轍掘れは、アスファルト舗装のバインダであるアスファルト組成物の塑性流動抵抗性と相関し、SUPERPAVEのバインダ規格（社団法人日本道路協会、舗装試験法便覧別冊、1996年）によれば、アスファルト組成物（バインダ）の $G^*/\sin \delta$ で評価することが可能である。ここで、 G^* は複素弾性率を表し、 G^* 及び $\sin \delta$ は、レオメーターにて測定される。

$G^*/\sin \delta$ の値が大きいほど、塑性流動抵抗性が大きいことから、該アスファルト組成物により、耐轍掘れ性に優れるアスファルト舗装が提供できると評価される。

[0007] 一方、「疲労ひび割れ」は、舗装面が繰り返しの荷重によりひび割れる現象である。疲労ひび割れ抵抗性は、SUPERPAVEのバインダ規格（社団法人日本道路協会、舗装試験法便覧別冊、1996年）によれば、アスファルト組成物（バインダ）の $G^*\sin \delta$ で評価することが可能である。ここで、 G^* は複素弾性率を表し、 G^* 及び $\sin \delta$ は、レオメーターにて測定さ

れる。

$G^* \sin \delta$ の値が小さいほど、疲労ひび割れ抵抗性が大きいことから、該アスファルト組成物により、耐疲労ひび割れ性に優れるアスファルト舗装が提供できると評価される。

なお、以下の説明において、アスファルト組成物の粘弾性が向上するとは、 $G^* / \sin \delta$ の値が大きくなると共に、 $G^* \sin \delta$ が小さくなることを意味する。

[0008] 本明細書における各種用語の定義等を以下に示す。

「バインダ混合物」とは、アスファルトと熱可塑性エラストマーとを含む混合物を意味し、例えば、後述の熱可塑性エラストマーで改質されたアスファルト（以下、「改質アスファルト」ともいう）を含む概念である。

ポリエステル中、「アルコール成分由来の構成単位」とは、アルコール成分の水酸基から水素原子を除いた構造を意味し、「カルボン酸成分由来の構成単位」とは、カルボン酸成分のカルボキシル基から水酸基を除いた構造を意味する。

「カルボン酸化合物」とは、そのカルボン酸のみならず、反応中に分解して酸を生成する無水物、及びカルボン酸のアルキルエステル（例えば、アルキル基の炭素数1以上3以下）も含む概念である。カルボン酸化合物がカルボン酸のアルキルエステルである場合、カルボン酸化合物の炭素数には、エステルのアルコール残基であるアルキル基の炭素数を算入しない。

[0009] <アスファルト>

本発明のアスファルト組成物は、アスファルトを含有する。

アスファルトとしては、種々のアスファルトが使用できる。例えば舗装用石油アスファルトであるストレートアスファルトの他、改質アスファルトが挙げられる。改質アスファルトとしては、ブローンアスファルト；熱可塑性エラストマー、熱可塑性樹脂等の高分子材料で改質したアスファルト等が挙げられる。ストレートアスファルトとは、原油を常圧蒸留装置、減圧蒸留装置等にかけて得られる残留瀝青物質のことである。また、ブローンアスファ

ルトとは、ストレートアスファルトと重質油との混合物を加熱し、その後空気を吹き込んで酸化させることによって得られるアスファルトを意味する。耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点からは改質アスファルトが好ましく、汎用性の観点からはストレートアスファルトが好ましい。

[0010] 〔熱可塑性エラストマー〕

アスファルト組成物は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、熱可塑性エラストマーを含有することが好ましい。アスファルト及び熱可塑性エラストマーは、これらの混合物であるバインダ混合物として使用されることが好ましい。バインダ混合物としては、熱可塑性エラストマーで改質されたストレートアスファルト（改質アスファルト）等が挙げられる。

[0011] 熱可塑性エラストマーとしては、例えば、スチレン／ブタジエンブロック共重合体（以下、単に「S B」ともいう）、スチレン／ブタジエン／スチレンブロック共重合体（以下、単に「S B S」ともいう）、スチレン／ブタジエンランダム共重合体（以下、単に「S B R」ともいう）、スチレン／イソプレンブロック共重合体（以下、単に「S I」ともいう）、スチレン／イソプレン／スチレンブロック共重合体（以下、単に「S I S」ともいう）、スチレン／イソプレンランダム共重合体（以下、単に「S I R」ともいう）、エチレン／酢酸ビニル共重合体、及びエチレン／アクリル酸エステル共重合体からなる群より選択される少なくとも1種が挙げられる。

エチレン／アクリル酸エステル共重合体の市販品としては、例えば、「Elvarex」（デュポン社製）が挙げられる。

[0012] これらの熱可塑性エラストマーの中でも、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、スチレン／ブタジエンブロック共重合体、スチレン／ブタジエン／スチレンブロック共重合体、スチレン／ブタジエンランダム共重合体、スチレン／イソプレンブロック共重合体、スチレン／イソプレン／スチレンブロック共重合体、及びスチレン／イソプレンランダム共重合体からなる群より選択される少なくとも1種が好ましく、スチレン／ブタジエンランダム共重合体及びスチレン／ブタジエン／スチレンブロック共重合体

からなる群より選択される少なくとも1種がより好ましい。

[0013] アスファルト組成物中の熱可塑性エラストマーの含有量は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、アスファルト組成物100質量%中、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.5質量%以上、更に好ましくは1質量%以上、より更に好ましくは2質量%以上であり、そして、好ましくは30質量%以下、より好ましくは20質量%以下、更に好ましくは10質量%以下、より更に好ましくは5質量%以下である。

[0014] アスファルト組成物において、熱可塑性エラストマーの比率は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、アスファルト100質量部に対して、好ましくは0.1質量部以上、より好ましくは0.5質量部以上、更に好ましくは1質量部以上、より更に好ましくは2質量部以上であり、そして、好ましくは30質量部以下、より好ましくは20質量部以下、更に好ましくは10質量部以下、より更に好ましくは5質量部以下である。

[0015] 本発明のアスファルト組成物中、アスファルトの含有量は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点とアスファルト性能を発揮する観点から、好ましくは60質量%以上、より好ましくは65質量%以上、更に好ましくは70質量%以上であり、セルロース及びポリエステルを含有し、轍掘れやひび割れを改善する観点から、好ましくは98質量%以下、より好ましくは95質量%以下、更に好ましくは90質量%以下である。

[0016] <セルロース>

本発明のアスファルト組成物は、セルロースを含有する。セルロースであれば特に限定されないが、結晶化指数が50%以下であるセルロース（非晶化セルロース）を含有することが好ましい。結晶化指数が50%以下のセルロースであると、セルロースの強固な結晶構造（水素結合）が解離することでポリエステルとセルロースとの相互作用が得られやすくなり、アスファルト組成物の粘弾性を向上させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を向上させる効果が高くなるので好ましい。

本発明において、セルロースの結晶化指数は、X線結晶回折法による回折

強度値から S e g a l 法により算出したセルロース I 型結晶化指数であり、下記計算式 (A) により定義される。

$$\text{セルロース結晶化指数 (\%)} = \left[(I_{22.6} - I_{18.5}) / I_{22.6} \right] \times 100 \quad (\text{A})$$

式 (A) 中、 $I_{22.6}$ は X 線回折における格子面 (002 面) (回折角 $2\theta = 22.6^\circ$) の回折強度、 $I_{18.5}$ はアモルファス部 (回折角 $2\theta = 18.5^\circ$) の回折強度を示す。

[0017] 本明細書においては、結晶化指数が 50% 以下であるセルロースを「非晶化セルロース」、結晶化指数が 50% を超えるセルロースを「結晶性セルロース」ということもある。なお、「セルロース I 型」とは天然セルロースの結晶形のことであり、セルロース I 型結晶化指数は、セルロースの物理的性質、及び化学的性質とも関係し、その値が大きいほど硬度、密度等は増すが、伸びや柔軟性、化学反応性は低下する。

[0018] 本発明で用いられるセルロースの結晶化指数は、アスファルト組成物の粘弾性をより向上させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは 50% 以下、より好ましくは 45% 以下、更に好ましくは 40% 以下である。なお、式 (A) で定義されたセルロース I 型結晶化指数では、計算上マイナスの値になる場合があるが、マイナスの値の場合は、セルロース I 型結晶化指数は 0% とする。したがって、本発明で用いられるセルロースの結晶化指数は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは 0% 以上、より好ましくは 1% 以上、更に好ましくは 10% 以上である。また、本発明では、結晶化指数が異なるセルロースを 2 種以上組み合わせて用いてもよいが、その場合のセルロースの結晶化指数とは、用いられるセルロースの加重平均により求められる結晶化指数を意味し、その値が前記範囲内であることが好ましい。

[0019] 非晶化セルロースは、結晶化指数が 50% 以下であれば特に限定はないが、例えば、セルロース含有原料に後述の機械的処理等を施すことにより得られるセルロースであることが好ましい。

セルロース含有原料としては、特に制限はなく、幹、枝、葉、茎、根、種子、果実等の植物の各部位、例えば、稲わら、トウモロコシ茎等の植物茎・葉類；籾殻、パーム殻、ココナッツ殻等の植物殻類等が使用できる。また、間伐材、剪定枝、各種木材チップ、木材から製造されるウッドパルプ、綿の種子の周囲の繊維から得られるコットンリントーパルプ等のパルプ類；新聞紙、段ボール、雑誌、上質紙等の紙類を使用してもよいが、着色の少ない非晶化セルロースを得る観点からは、パルプ類が好ましい。また更に、新聞紙、段ボール、雑誌、上質紙等の紙類（古紙）を再生した再生パルプや再生紙を使用することもできる。

[0020] また、セルロース含有原料としては、市販の結晶性セルロースも使用できる。市販の結晶性セルロースとしては、例えば「KCブロック」（日本製紙ケミカル株式会社製）、「セオラス」（旭化成ケミカルズ株式会社製）等が挙げられる。

[0021] これらのセルロース含有原料の形態は、特に限定はなく、チップ状、シート状等各種形態のものが使用できる。なお、市販のパルプのセルロースⅠ型結晶化指数は、通常80%以上であり、市販の結晶性セルロースのセルロースⅠ型結晶化指数は、通常60%以上である。

[0022] 前記セルロース含有原料は、該原料から水を除いた場合の残余の成分中のセルロース含有量が好ましくは20質量%以上、より好ましくは40質量%以上、更に好ましくは60質量%以上のものである。例えば、市販のパルプは、水を除いた場合の残余の成分中のセルロース含有量が、通常75質量%以上99質量%以下であり、他の成分としてはリグニン等を含有する。なお、原料から水を除く方法としては、特に限定はなく、例えば、真空乾燥やドライエアーによる乾燥により行なうことができる。本明細書において、前記セルロース含有量とはセルロース量及びヘミセルロース量の合計量を意味し、セルロース含有量は、特開2011-137094号公報の実施例に記載の方法により測定することができる。

[0023] また、セルロース含有原料としてパルプ類、再生紙等を使用する場合、ア

スファルト組成物の粘弾性を向上させる観点から、セルロース含有原料中のリグニン量は、好ましくは20質量%以下、より好ましくは15質量%以下、更に好ましくは10質量%以下である。なお、リグニンの構造単位としては、特に制限されるものではなく、公知のものが挙げられるが、アスファルト組成物の粘弾性を向上させる観点から、グアイアシル型、シリングル型、p-ヒドロキシフェニル型であることが好ましい。

リグニンを低減する方法としては、例えば、特開2008-92910号公報記載のアルカリ蒸解法や特開2005-229821号公報記載の硫酸分解法等が挙げられる。

[0024] セルロース含有原料の水分量は、好ましくは10質量%以下、より好ましくは5質量%以下、更に好ましくは3質量%以下、より更に好ましくは1.8質量%以下である。セルロース含有原料の水分量が10質量%以下であれば、容易に粉砕できると共に、粉砕処理による非晶化速度が向上し、短時間で効率的に結晶化指数を低下させることができる。

[0025] 本発明における非晶化処理に用いるセルロース含有原料としては、嵩密度が好ましくは50kg/m³以上600kg/m³以下、比表面積が好ましくは0.2m²/kg以上750m²/kg以下の範囲にあるものが好ましい。

本発明における非晶化処理に用いるセルロース含有原料の嵩密度は、粉砕、非晶化をより効率的に行い、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは50kg/m³以上、より好ましくは65kg/m³以上、更に好ましくは100kg/m³以上である。この嵩密度が50kg/m³以上であれば、セルロース含有原料が適度な容積を有するために取扱い性が向上する。また、粉砕機への原料仕込み量を多くすることができるので、処理能力が向上する。一方、この嵩密度の上限は、取扱い性及び生産性の観点から、好ましくは600kg/m³以下、より好ましくは500kg/m³以下、更に好ましくは400kg/m³以下である。これらの観点から、この嵩密度としては、好ましくは50～600kg/m³、より好ましくは65～500kg/m³、更に好ましくは100～400kg/m³である。なお、上記の嵩密度は、特開2

011-1547号公報の実施例に記載の方法により測定することができる。

[0026] 粉砕機に供給するセルロース含有原料は、粉砕機中に粉砕原料を効率的に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、比表面積が $0.2 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上 $750 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下の範囲にあるものが好ましい。この比表面積が $0.2 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上であれば、粉砕機中に供給する際に、粉砕機中に粉砕原料を効率的に分散させることができ、長時間を要することなく所定の結晶化指数及び粒径に到達することができる。一方、この比表面積の上限としては、生産性の観点から、 $750 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下が好ましい。これらの観点から、この比表面積としては、より好ましくは $0.65 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上、更に好ましくは $0.8 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上であり、そして、より好ましくは $200 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下、更に好ましくは $50 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下である。なお、上記の比表面積は、特開2011-1547号公報の実施例に記載の方法により測定することができる。

上記のセルロース含有原料を粉砕機で処理することにより、セルロース含有原料を粉砕し、かつ短時間で効率的にセルロースを非晶化させることができる。

[0027] 粉砕機に供給するセルロース含有原料が 1 mm 角以上のチップ状の場合は、粉砕機中に粉砕原料を効率的に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、比表面積は、好ましくは $0.2 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上、より好ましくは $0.65 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上、更に好ましくは $0.8 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上であり、そして、好ましくは $4 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下、より好ましくは $3.5 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下、更に好ましくは $3 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下である。

粉砕機に供給するセルロース含有原料が 1 mm 以下の粒子状の場合は、生産性及び粉砕機中に粉砕原料を効率的に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、比表面積は、好ましくは $3 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上、より好ましくは $4.5 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上、更に好ましくは $7.5 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上であり、そして、好ましくは $750 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下、より好ましくは $200 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下、更に好

ましくは $50 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下である。

[0028] 〔非晶化処理の前処理〕

耐輻掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、嵩密度が $50 \text{ kg}/\text{m}^3$ 未満のセルロース含有原料を用いる場合には前処理を行い、嵩密度を $50 \text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $600 \text{ kg}/\text{m}^3$ 以下、あるいは比表面積を $0.2 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以上 $750 \text{ m}^2/\text{kg}$ 以下の範囲にすることが好ましい。例えば、セルロース含有原料の前処理として、裁断処理及び／又は粗砕処理することで、セルロース含有原料の嵩密度、及び比表面積を前述の好ましい範囲にすることができる。少ない工程数で非晶化セルロースを製造する観点から、セルロース含有原料の前処理として裁断処理を行うことが好ましい。

[0029] 〔裁断処理〕

セルロース含有原料を裁断する方法は、セルロース含有原料の種類や形状により適宜の方法を選択することができるが、例えば、シュレッダー、スリッターカッター及びロータリーカッターから選ばれる1種以上の裁断機を使用する方法が挙げられる。

シート状のセルロース含有原料を用いる場合、裁断機としてシュレッダー又はスリッターカッターを使用することが好ましく、生産性の観点から、スリッターカッターを使用することがより好ましい。

スリッターカッターは、シートの長手方向に沿った縦方向にロールカッターで縦切りして、細長い短冊状とし、次に、固定刃と回転刃でシートの幅方向に沿って短く横切りすることにより、さいの目形状のセルロース含有原料を容易に得ることができる。スリッターカッターとしては、株式会社ホーライ製のシートペレタイザ、株式会社荻野精機製作所製のスーパーカッターを好ましく使用でき、この装置を使用すると、シート状のセルロース含有原料を約 $1 \sim 20 \text{ mm}$ 角に裁断することができる。

[0030] 間伐材、剪定枝材、建築廃材等の木材類、あるいはシート状以外のセルロース含有原料を裁断する場合には、ロータリーカッターを使用することが好ましい。ロータリーカッターは、回転刃とスクリーンから構成され、回転刃

によりスクリーンの目開き以下に裁断されたセルロース含有原料を容易に得ることができる。なお、必要に応じて固定刃を設け、回転刃と固定刃により裁断することもできる。

ロータリーカッターを使用する場合、得られる粗粉碎物の大きさは、スクリーンの目開きを変えることにより、制御することができる。耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、スクリーンの目開きは、1 mm以上が好ましく、2 mm以上がより好ましく、3 mm以上が更に好ましく、70 mm以下が好ましく、50 mm以下がより好ましく、40 mm以下が更に好ましい。スクリーンの目開きが1 mm以上であれば、適度な嵩高さを有する粗粉碎物が得られ取扱い性が向上する。スクリーンの目開きが70 mm以下であれば、後の粉碎処理において、粉碎原料として適度な大きさを有するために、負荷を低減することができる。

[0031] 裁断処理後に得られるセルロース含有原料の大きさとしては、好ましくは1 mm角以上、より好ましくは2 mm角以上であり、そして、好ましくは70 mm角以下、より好ましくは50 mm角以下である。上記の大きさに裁断することにより、後の乾燥処理を効率よく容易に行うことができ、また後の粉碎処理における粉碎に要する負荷を軽減することができる。

[0032] [粗砕処理]

次に、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、セルロース含有原料、好ましくは前記裁断処理で得られたセルロース含有原料を必要に応じて更に粗砕処理してもよい。粗砕処理としては押出機処理が好ましく、押出機処理により、圧縮せん断力を作用させ、セルロースの結晶構造を破壊して、セルロース含有原料を粉末化させ、嵩密度を更に高めることができる。

圧縮せん断力を作用させて機械的に粉碎する方法として、従来汎用されている衝撃式の粉碎機、例えば、カッターミル、ハンマーミル、ピンミル等では、粉碎物が綿状化して嵩高くなり、取扱い性を損ない、質量ベースの処理能力が低下する傾向がある。一方、押出機を用いることにより、所望の嵩密度を有する粉碎原料が得られ、取扱い性を向上させることができる。

[0033] 押出機としては、単軸、二軸のどちらの形式でもよいが、搬送能力を高める等の観点から、二軸押出機が好ましい。

二軸押出機としては、シリンダの内部に2本のスクリーが回転自在に挿入された押出機であり、従来から公知のものが使用できる。2本のスクリーの回転方向は、同一でも逆方向でもよいが、搬送能力を高める観点から、同一方向の回転が好ましい。

また、スクリーの噛み合い条件としては、完全噛み合い、部分噛み合い、非噛み合いの各形式の押出機のいずれでもよいが、処理能力を向上させる観点から、完全噛み合い型、部分噛み合い型が好ましい。

[0034] 押出機としては、強い圧縮せん断力を加え、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、スクリーのいずれかの部分に、いわゆるニーディングディスク部を備えることが好ましい。

ニーディングディスク部とは、複数のニーディングディスクで構成され、これらを連続して、一定の位相で、例えば 90° ずつに、ずらしながら組み合わせたものであり、スクリーの回転に伴って、ニーディングディスク間あるいはニーディングディスクとシリンダの間の狭い隙間にセルロース含有原料を強制的に通過させることで極めて強いせん断力を付与することができる。スクリーの構成としては、ニーディングディスク部と複数のスクリーセグメントとが交互に配置されることが好ましい。二軸押出機の場合、2本のスクリーが、同一の構成を有することが好ましい。

[0035] 粗砕処理の方法としては、前記セルロース含有原料、好ましくは前記載断処理して得られたセルロース含有原料を押出機に投入し、連続的に処理する方法が好ましい。せん断速度は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは 10 sec^{-1} 以上、より好ましくは 20 sec^{-1} 以上、更に好ましくは 50 sec^{-1} 以上、より更に好ましくは 500 sec^{-1} 以上であり、そして、好ましくは $30,000\text{ sec}^{-1}$ 以下、より好ましくは $3,000\text{ sec}^{-1}$ 以下である。せん断速度が 10 sec^{-1} 以上であれば、有効に粉碎が進行する。その他の処理条件としては、特に制限はないが、処理温度は $5\sim 200^\circ\text{C}$

が好ましい。

また、押出機によるパス回数としては、1パスでも十分効果を得ることができるが、セルロースの結晶化指数及び重合度を低下させる観点から、1パスで不十分な場合は、2パス以上行うことが好ましい。また、生産性の観点からは、1パス以上10パス以下が好ましい。パスを繰返すことにより、粗大粒子が粉碎され、粒径のばらつきが少ない粉末状セルロース含有原料を得ることができる。2パス以上行う場合、生産能力を考慮し、複数の押出機を直列に並べて処理を行ってもよい。

[0036] 粗砕処理後に得られるセルロース含有原料の平均粒径（メジアン径）は、非晶化処理における粉碎機中に粉碎原料を効率的に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、0.01mm以上1mm以下が好ましい。この平均粒径が1mm以下であれば、非晶化処理の際に、粉碎機中に粉碎原料を効率的に分散させることができ、長時間を要することなく所定の粒径に到達することができる。一方、この平均粒径の下限としては、生産性の観点から、0.01mm以上が好ましい。これらの観点から、この平均粒径としては、より好ましくは0.03mm以上、更に好ましくは0.05mm以上であり、そして、より好ましくは0.7mm以下、更に好ましくは0.5mm以下である。なお、上記の平均粒径は、実施例に記載の方法により測定することができる。

[0037] [乾燥処理]

本発明において、セルロース含有原料、好ましくは上記裁断処理及び／又は粗砕処理して得られたセルロース含有原料を非晶化処理前に乾燥処理することが好ましい。

一般に、市販のパルプ類、バイオマス資源として利用される紙類、木材類、植物茎・葉類、植物殻類等の一般に利用可能なセルロース含有原料は、5質量%を超える水分を含有しており、通常5～30質量%程度の水分を含有している。

従って、本発明では、乾燥処理を行うことによって、セルロース含有原料

の水分量を10質量%以下に調整することが好ましい。

[0038] 乾燥方法としては、公知の乾燥手段を適宜選択すればよく、例えば、熱風受熱乾燥法、伝導受熱乾燥法、除湿空気乾燥法、冷風乾燥法、マイクロ波乾燥法、赤外線乾燥法、天日乾燥法、真空乾燥法、凍結乾燥法等が挙げられる。

上記の乾燥方法において、公知の乾燥機を適宜選択して使用することができ、例えば、「粉体工学概論」（社団法人日本粉体工業技術会編集 粉体工学情報センター1995年発行）176頁に記載の乾燥機等が挙げられる。

これらの乾燥方法及び乾燥機は1種で使用してもよく、又は2種以上を組み合わせて使用してもよい。乾燥処理はバッチ処理、連続処理のいずれでも可能であるが、生産性の観点から連続処理が好ましい。

[0039] 連続乾燥機としては、伝熱効率の観点から伝導受熱型の横型攪拌乾燥機が好ましい。更に、微粉が発生しにくく、連続排出の安定性の観点から2軸の横型攪拌乾燥機が好ましい。2軸の横型攪拌乾燥機としては、株式会社奈良機械製作所製の2軸パドルドライヤーを好ましく使用できる。

乾燥処理における温度は、乾燥手段、乾燥時間等により一概には決定できないが、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは10℃以上、より好ましくは25℃以上、更に好ましくは50℃以上であり、そして、好ましくは250℃以下、より好ましくは180℃以下、更に好ましくは150℃以下である。処理時間としては、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは0.01hr以上、より好ましくは0.02hr以上であり、そして、好ましくは2hr以下、より好ましくは1hr以下である。必要に応じて減圧下で乾燥処理を行なってもよく、圧力としては、好ましくは1kPa以上、より好ましくは50kPa以上であり、そして、好ましくは120kPa以下、より好ましくは105kPa以下である。

[0040] [非晶化处理]

非晶化处理に使用する粉砕機としては、媒体式粉砕機を好ましく用いることができる。媒体式粉砕機には容器駆動式粉砕機と媒体攪拌式粉砕機とがあ

る。

容器駆動式粉砕機としては転動ミル、振動ミル、遊星ミル、遠心流動ミル等が挙げられる。この中で、粉砕効率が高く、生産性の観点から、振動ミルが好ましい。

媒体攪拌式粉砕機としてはタワーミル等の塔型粉砕機；アトライター、アクマイザー、サンドグライNDER等の攪拌槽型粉砕機；ビスコムル、パールミル等の流通槽型粉砕機；流通管型粉砕機；コボールミル等のアニュラー型粉砕機；連続式のダイナミック型粉砕機等が挙げられる。この中で、粉砕効率が高く、生産性の観点から、攪拌槽型粉砕機が好ましい。媒体攪拌式粉砕機を用いる場合の攪拌翼の先端の周速は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは 0.5 m/s 以上、より好ましくは 1 m/s 以上であり、そして、好ましくは 20 m/s 以下、より好ましくは 15 m/s 以下である。

粉砕機の種類は「化学工学の進歩 第30集 微粒子制御」（社団法人化学工学会東海支部編、1996年10月10日発行、槇書店）を参照することができる。

処理方法としては、バッチ処理及び連続処理のどちらでもよいが、生産性の観点から連続処理が好ましい。

[0041] 粉砕機の媒体としては、ボール、ロッド、チューブ等が挙げられる。この中で、粉砕効率が高く、生産性の観点から、ボール、ロッドが好ましく、ロッドがより好ましい。

粉砕機の媒体の材質としては、特に制限はなく、例えば、鉄、ステンレス、アルミナ、ジルコニア、炭化珪素、チッ化珪素、ガラス等が挙げられる。

[0042] 粉砕機が振動ミルであって、媒体がボールの場合には、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、ボールの外径は、好ましくは 0.1 mm 以上、より好ましくは 0.5 mm 以上であり、そして、好ましくは 100 mm 以下、より好ましくは 50 mm 以下である。ボールの大きさが上記の範囲であれば、所望の粉砕力が得られると共に、ボールのかけら等が混入してセルロース含有

原料が汚染されることなく効率的にセルロースを非晶化させることができる。

[0043] 本発明では、ロッドを充填した振動ミルで粉碎処理することにより、原料中のセルロースを効率的に非晶化させることができ、好適である。

振動ミルとしては、ユーラステクノ株式会社製のバイブロミル、中央化工機株式会社製の振動ミル、株式会社吉田製作所製の小型振動ロッドミル1045型、ドイツのフリッチュ社製の振動カップミルP-9型、日陶科学株式会社製の小型振動ミルNB-O型等を用いることができる。

粉碎機の媒体として用いるロッドとは棒状の媒体であり、ロッドの断面が四角形、六角形等の多角形、円形、楕円形等のものを用いることができる。

ロッドの外径は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは0.5mm以上、より好ましくは1mm以上、更に好ましくは5mm以上であり、そして、好ましくは200mm以下、より好ましくは100mm以下、更に好ましくは50mm以下である。ロッドの長さは、粉碎機の容器の長さよりも短いものであれば特に限定されない。ロッドの大きさが上記の範囲であれば、所望の粉碎力が得られると共に、ロッドのかけら等が混入してセルロース含有原料が汚染されることなく効率的にセルロースを非晶化させることができる。

[0044] ボール、ロッド等の媒体の充填率は、粉碎機の機種により好適な範囲が異なるが、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは10%以上、より好ましくは15%以上であり、そして、好ましくは97%以下、より好ましくは95%以下である。充填率がこの範囲内であれば、セルロース含有原料と媒体との接触頻度が向上すると共に、媒体の動きを妨げずに、粉碎効率を向上させることができる。ここで充填率とは、粉碎機の攪拌部の容積に対する媒体の見かけの体積をいう。

粉碎機の処理時間は、粉碎機の種類、ボール、ロッド等の媒体の種類、大きさ及び充填率等により一概に決定できないが、結晶化指数を効率的に低下させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは0.5分間以上、

より好ましくは2分間以上、更に好ましくは3分間以上、より更に好ましくは4分間以上、より更に好ましくは5分間以上であり、そして、好ましくは24時間以下、より好ましくは12時間以下、更に好ましくは6時間以下、より更に好ましくは1時間以下、より更に好ましくは40分間以下である。

処理温度は、特に制限はないが、熱によるセルロースの劣化を防ぐ観点から、好ましくは5℃以上、より好ましくは10℃以上であり、そして、好ましくは250℃以下、より好ましくは200℃以下である。

[0045] 〔小粒径化処理〕

本発明において、非晶化処理して得られた非晶化セルロースを必要に応じて更に小粒径化処理してもよい。小粒径化処理としては、公知の粉砕機を適宜選択して使用することができ、例えば、「改訂六版 化学工学便覧」（社団法人化学工学会編集、丸善株式会社、1999年発行）843頁に記載の粉砕機が挙げられる。

これらの粉砕機は1種単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせで使用してもよい。小粒径化処理はバッチ処理、連続処理のいずれでも可能であるが、生産性の観点から連続処理が好ましい。

粉砕機としては、粉砕効率が高く、粒径を小さくでき、耐轆掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、高速回転ミルが好ましく、ターボ型、アニュラー型ミルがより好ましい。ターボ型ミルとしては、ターボ工業株式会社製のターボミルを好ましく使用できる。アニュラー型ミルとしては、株式会社アーステクニカ製のクリプトロンシリーズを好ましく使用できる。

小粒径化処理の方法としては、非晶化処理して得られた非晶化セルロースを粉砕機に投入し、連続的に処理する方法が好ましい。小粒径の非晶化セルロースを得適宜ご修正、耐轆掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、高速回転ミルのローターの周速度としては、好ましくは50 m/s以上、より好ましくは100 m/s以上である。その他の処理条件としては、特に制限はないが、処理温度としては5℃以上200℃以下が好ましい。

[0046] 〔分級処理〕

本発明において、非晶化处理して得られた非晶化セルロースを必要に応じて更に分級処理することができる。分級機処理により、所望の粒径の非晶化セルロースを得ることができる。分級処理方法としては、公知の乾式分級手段を適宜選択すればよく、篩い分け、風力分級が挙げられる。

分級処理後の粗粉は、セルロース含有原料と共に再度振動ミルに投入し非晶化处理を行うことで、効率よく小粒径の非晶化セルロースを得ることができる。

[0047] かくして、結晶化指数が50%以下のセルロース（非晶化セルロース）が得られる。

このようにして得られたセルロースは、結晶化指数が50%以下に非晶化されているが、アスファルト組成物の粘弾性を向上させる観点、取扱性と耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、メジアン径（体積中位粒径）は、好ましくは200 μm 以下、より好ましくは150 μm 以下、更に好ましくは100 μm 以下、より更に好ましくは80 μm 以下であり、そして、好ましくは1 μm 以上、より好ましくは3 μm 以上、更に好ましくは5 μm 以上、より更に好ましくは10 μm 以上である。

なお、非晶化セルロースが、後述する表面疎水化处理されたセルロースである場合、該セルロースのメジアン径は、表面疎水化处理後の非晶化セルロースのメジアン径を意味し、好ましい範囲は同様である。

[0048] 本発明において、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、非晶化セルロースは、表面疎水化剤（以下、「改質剤」ともいう。）によって表面疎水化处理されたセルロースであることが好ましい。表面疎水化处理するための表面疎水化剤は特に限定されないが、シラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤、シリコン油、フッ素油、シリコン樹脂、フッ素樹脂、アクリル樹脂、極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマー、極性基とポリスチレン鎖とを有するポリマー、極性基を有する飽和脂肪族化合物等が挙げられる。

[0049] シラン系カップリング剤としては、トリメチルメトキシシラン、ジメチル

メトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、及びフルオロメチルトリメトキシシランが例示される。

[0050] チタネート系カップリング剤としては、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス（ジオクチルピロホスフェート）チタネート、イソプロピルトリス（N-アミノエチル-アミノエチル）チタネート、及びビス（ジオクチルピロホスフェート）エチレンチタネートが例示される。

[0051] アルミニウム系カップリング剤としては、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムトリス（エチルアセトアセテート）、アルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムモノアセチルアセテートビス（エチルアセトアセテート）、及びアルミニウムトリス（アセチルアセテート）が例示される。

[0052] 極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマーにおける極性基としては、有機イソシアネート基、（無水）カルボン酸基、カルボン酸ハライド基、アミノ基、水酸基、エポキシ基が挙げられる。これらの中でも、非晶化セルロースとの親和性を高める観点から、好ましくは（無水）カルボン酸基、エポキシ基であり、より好ましくは（無水）カルボン酸基である。なお、（無水）カルボン酸基とは、無水カルボン酸基と、カルボン酸基（カルボキシ基）の総称である。具体的には、無水マレイン酸、マレイン酸、グリシジル（メタ）アクリレートに由来する極性基が例示される。

[0053] ポリオレフィン鎖としては、好ましくはエチレン系重合体（例えば、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、エチレンと他の1種以上のビニル化合物（例えば α -オレフィン、酢酸ビニル、メタクリル酸、アクリル酸等）との共重合体等）、プロピレン系重合体（例えば、ポリプロピレン、プロピレンと他の1種以上のビニル化合物との共重合体等）、エチレンプロピレン共重合体、ポリブテン及びポリ-4-メチルペンテン-1等に由来するポリマー鎖が例示され、より好ましくはエチレン系重合体

、プロピレン系重合体に由来するポリマー鎖である。

[0054] 極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマーとしては、無水マレイン酸変性ポリオレフィン等が挙げられる。

極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマーとして、市販されている商品を使用してもよく、好適な市販品としては、住友化学株式会社製「ボンドファースト 7M」（エチレンと、グリシジルメタクリレートとの共重合体）、日本ポリエチレン株式会社製「レクスパール ETシリーズ」（エチレンと、（メタ）アクリル酸及び／又はそのエステルと、無水マレイン酸との共重合体）、日油株式会社製「モディパー A4000シリーズ」（主鎖がエチレンとメタクリル酸グリシジルとの共重合体であるグラフトコポリマー）、三洋化成工業株式会社製「ユーメックス」（無水マレイン酸変性ポリプロピレン）、アルケマ社製「オレヴァック」（無水マレイン酸変性ポリエチレン、無水マレイン酸変性ポリプロピレン）、アルケマ社製「ロタダー」（エチレンと、アクリル酸エステルと、グリシジルメタクリレートとの共重合体）、アルケマ社製「ボンダイン」（エチレンと、アクリル酸エステルと、無水マレイン酸との共重合体）、化薬アクゾ株式会社製「カヤブリッド」（無水マレイン酸変性ポリプロピレン）、三井・デュポン・ポリケミカル社製「ニユクレル」（エチレンとメタクリル酸との共重合体）、ダウケミカル社製「プリマコール」（エチレンとアクリル酸との共重合体）等が挙げられる。

[0055] 極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマーは、ポリオレフィン鎖部分がアスファルトと親和性を有する一方で、極性基部分が非晶化セルロースと相互作用することで親和性を発現することから、非晶化セルロースとアスファルトとの親和性が向上し、アスファルト組成物の粘弾性が向上すると考えられる。

[0056] 極性基とポリスチレン鎖とを有するポリマーとしては、無水マレイン酸変性ポリスチレン等が挙げられる。

極性基とポリスチレン鎖とを有するポリマーとして、市販されている商品

を使用してもよく、好適な市販品としては、C r a y V a l l e y社製「SMA」（スチレンーマレイン酸共重合体）、荒川化学工業株式会社製「アラスター」（スチレンーマレイン酸共重合体）等が挙げられる。

[0057] 極性基を有する飽和又は不飽和脂肪族化合物としては、コハク酸、マレイン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、ペンタデシル酸、パルミチン酸、マルガリン酸、ステアリン酸等が挙げられる。

[0058] これらの中でも、表面疎水化剤は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくはシラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤、極性基とポリレオフィン鎖又はポリスチレン鎖とを有するポリマー、及び極性基を有する飽和脂肪族化合物からなる群から選択される少なくとも1つ、より好ましくは極性基とポリオレフィン鎖又はポリスチレン鎖とを有するポリマー、更に好ましくは無水マレイン酸変性ポリオレフィン、より更に好ましくは無水マレイン酸変性ポリエチレン及び無水マレイン酸変性ポリプロピレンから選択される少なくとも1つ、より更に好ましくは無水マレイン酸変性ポリエチレン又は無水マレイン酸変性ポリプロピレン、より更に好ましくは無水マレイン酸変性ポリプロピレンである。

[0059] 無水マレイン酸変性ポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸変性ポリエチレン及び無水マレイン酸変性ポリプロピレンの重量平均分子量は、非晶化セルロースとアスファルトとの親和性を高め、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは1,000以上、より好ましくは5,000以上、更に好ましくは10,000以上、より更に好ましくは30,000以上であり、そして、好ましくは1,000,000以下、より好ましくは500,000以下、更に好ましくは300,000以下、より更に好ましくは100,000以下である。

[0060] 無水マレイン酸変性ポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸変性ポリエチレン及び無水マレイン酸変性ポリプロピレンの酸価は、非晶化セルロースとアスファルトとの親和性を高め、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは1mg KOH/g以上、より好ましくは2mg KOH/g以上

、更に好ましくは3 mg KOH/g以上、より更に好ましくは5 mg KOH/g以上、より更に好ましくは10 mg KOH/g以上であり、そして、好ましくは200 mg KOH/g以下、より好ましくは100 mg KOH/g以下、更に好ましくは60 mg KOH/g以下、より更に好ましくは30 mg KOH/g以下である。

[0061] 表面疎水化剤による処理量は、アスファルト組成物の粘弾性を向上させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、未処理の非晶化セルロース100質量部に対して、好ましくは1質量部以上、より好ましくは3質量部以上、更に好ましくは5質量部以上、より更に好ましくは10質量部以上、より更に好ましくは20質量部以上であり、そして、好ましくは100質量部以下、より好ましくは80質量部以下、更に好ましくは60質量部以下、より更に好ましくは40質量部以下、より更に好ましくは30質量部以下である。

[0062] 非晶化セルロースの表面疎水化処理方法は特に限定されないが、上述した非晶化処理時に、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、粉碎機にセルロースと共に表面疎水化剤を添加し、混合粉碎することが好ましい。すなわち、表面疎水化処理されたセルロースは、結晶化指数が50%を超えるセルロースに表面疎水化剤を添加して混合粉碎し、結晶化指数を50%以下にすることにより製造することが好ましい。

なお、表面疎水化処理方法はこれに限定されるものではなく、水溶性有機溶剤中で表面疎水化剤と共に攪拌混合して表面処理してもよい。水溶性有機溶剤としては、メチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、アセトンが例示される。

[0063] 本発明のアスファルト組成物において、セルロースの含有量又は配合量は、アスファルト100質量部に対して、好ましくは0.01質量部以上10質量部以下である。セルロースの含有量が0.01質量部以上であると、耐轍掘れや耐疲労ひび割れの改善効果が高い。一方、セルロースの含有量が10質量部以下であると、コストの観点で好ましい。なお、耐轍掘れや耐疲労ひび割れの改善とは、轍掘れやひび割れの発生を抑制することを意味する。

以下、同様である。

セルロースの含有量は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、アスファルト100質量部に対して、より好ましくは0.03質量部以上、更に好ましくは0.1質量部以上、より更に好ましくは0.3質量部以上、より更に好ましくは1質量部以上、より更に好ましくは2質量部以上であり、そして、作業性の観点から、より好ましくは8質量部以下、更に好ましくは6質量部以下、より更に好ましくは4質量部以下である。

なお、アスファルトがポリマー改質アスファルトである場合、アスファルトの質量は、ストレートアスファルト及び改質剤を含めたアスファルト全体としての質量を意味する。同様に、セルロースが、表面疎水処理されたセルロースである場合、セルロースの質量は、セルロース本体と、表面疎水化剤とを含むセルロース全体としての質量を意味する。

[0064] <ポリエステル>

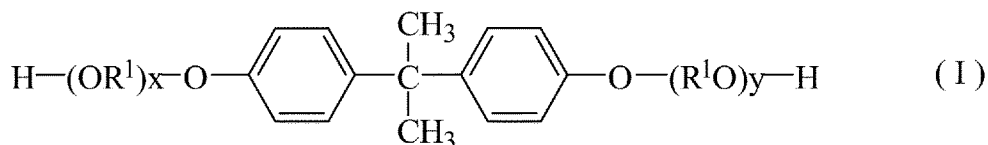
本発明のアスファルト組成物は、ポリエステルを含有する。ポリエステルは、施工後の舗装面の耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、好ましくは、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を60モル%以上含むアルコール成分由来の構成単位とカルボン酸成分由来の構成単位とを含む。

[0065] (アルコール成分)

アルコール成分としては、例えばジオール、3価以上の多価アルコール等が挙げられる。ジオールとしては、脂肪族ジオール、芳香族ジオールが挙げられる。これらのアルコール成分は、単独で又は2種以上を組み合わせで使用することができる。

アルコール成分は、優れた耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を得る観点から、好ましくはビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含み、より好ましくは式(1)：

[化1]



〔式中、 OR^1 及び R^1O はアルキレンオキシドであり、 R^1 は炭素数2又は3のアルキレン基、 x 及び y はアルキレンオキシドの平均付加モル数を示す正の数を示し、 x と y の和は好ましくは1以上、より好ましくは1.5以上であり、そして、好ましくは16以下、より好ましくは8以下、更に好ましくは4以下である。〕

で表されるビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含む。

[0066] 式(1)で表されるビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物としては、例えば、ビスフェノールA〔2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン〕のプロピレンオキシド付加物、ビスフェノールAのエチレンオキシド付加物が挙げられる。これらのビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物は、単独で又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0067] ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物の使用量は、アスファルトへの溶融分散性を高め、かつ優れた耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を得る観点から、アルコール成分100モル%中、好ましくは60モル%以上、より好ましくは75モル%以上、更に好ましくは90モル%以上であり、そして、100モル%以下である。

[0068] 脂肪族ジオールとしては、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,4-ペンテンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、1,10-デカンジオール、1,12-ドデカンジオールが挙げられる。

3価以上の多価アルコールは、例えば3価アルコールである。3価以上の多価アルコールとしては、例えばグリセリンが挙げられる。

[0069] (カルボン酸成分)

カルボン酸成分としては、脂肪族ジカルボン酸化合物、芳香族ジカルボン酸化合物、3価以上6価以下の多価カルボン酸化合物が挙げられる。これらのカルボン酸成分は、単独で又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0070] 脂肪族ジカルボン酸の主鎖の炭素数は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、好ましくは3以上、より好ましくは4以上であり、そして、好ましくは10以下、より好ましくは8以下である。

脂肪族ジカルボン酸化合物としては、例えば、フマル酸、マレイン酸、シュウ酸、マロン酸、シトラコン酸、イタコン酸、グルタコン酸、コハク酸、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、炭素数1以上20以下のアルキル基若しくは炭素数2以上20以下のアルケニル基で置換されたコハク酸、又は、これらの無水物、これらのアルキルエステル（例えば、アルキル基の炭素数1以上3以下）が挙げられる。置換されたコハク酸としては、例えば、ドデシルコハク酸、ドデセニルコハク酸、オクテニルコハク酸が挙げられる。以上の脂肪族ジカルボン酸化合物の中でも、フマル酸、マレイン酸及びアジピン酸からなる群より選択される少なくとも1種が好ましく、アジピン酸がより好ましい。

[0071] 芳香族ジカルボン酸化合物としては、例えば、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、又は、これらの無水物、これらのアルキルエステル（例えば、アルキル基の炭素数1以上3以下）が挙げられる。以上の芳香族ジカルボン酸化合物の中でも、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、イソフタル酸及びテレフタル酸が好ましく、テレフタル酸がより好ましい。

[0072] 3価以上6価以下の多価カルボン酸は、好ましくは3価カルボン酸である。3価以上6価以下の多価カルボン酸としては、例えば、トリメリット酸、2, 5, 7-ナフタレントリカルボン酸、ピロメリット酸が挙げられる。なお、多価カルボン酸を含む場合、物性調整の観点から、アルコール成分には1価のアルコールが適宜含有されていてもよく、カルボン酸成分には1価の

カルボン酸化合物が適宜含有されていてもよい。

[0073] 脂肪族ジカルボン酸化合物の含有量は、カルボン酸成分中、ポリエステル
の可撓性を上げて、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、
好ましくは1モル%以上、より好ましくは5モル%以上、更に好ましくは1
0モル%以上であり、そして、好ましくは40モル%以下、より好ましくは
25モル%以下である。

[0074] 芳香族ジカルボン酸化合物の含有量は、アスファルトへの溶融分散性を高
め、かつ優れた耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を得る観点から、カルボン酸成分
100モル%中、好ましくは60モル%以上、より好ましくは75モル%以
上であり、そして、好ましくは99モル%以下、より好ましくは95モル%
以下、更に好ましくは90モル%以下である。

[0075] (アルコール成分由来の構成単位に対するカルボン酸成分由来の構成単位の
モル比)

アルコール成分由来の構成単位に対するカルボン酸成分由来の構成単位の
モル比〔カルボン酸成分／アルコール成分〕は、酸価の調整の観点から、好
ましくは0.7以上、より好ましくは0.8以上であり、そして、好ましく
は1.5以下、より好ましくは1.3以下、更に好ましくは1.1以下であ
る。

[0076] (ポリエステルの物性)

ポリエステルの軟化点は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を得る観点から、好
ましくは90℃以上、より好ましくは95℃以上、更に好ましくは100℃
以上であり、そして、好ましくは140℃以下、より好ましくは130℃以
下、更に好ましくは125℃以下、より更に好ましくは120℃以下、より
更に好ましくは115℃以下である。

[0077]ポリエステルの酸価は、骨材への吸着を促進し、耐轍掘れ性と耐ひび割れ
性をより向上させる観点から、好ましくは2mg KOH/g以上、より好ま
しくは3mg KOH/g以上、更に好ましくは4mg KOH/g以上であり
、そして、舗装面の耐水性を高める観点から、好ましくは30mg KOH/g

g 以下、より好ましくは 20 mg KOH/g 以下、更に好ましくは 18 mg KOH/g 以下である。

[0078] ポリエステルの水酸基価は、耐衝撃掘れ性と耐ひび割れ性をより向上させる観点から、好ましくは 1 mg KOH/g 以上、より好ましくは 2 mg KOH/g 以上、更に好ましくは 5 mg KOH/g 以上、より更に好ましくは 10 mg KOH/g 以上であり、そして、好ましくは 70 mg KOH/g 以下、より好ましくは 50 mg KOH/g 以下、更に好ましくは 30 mg KOH/g 以下、より更に好ましくは 25 mg KOH/g 以下である。

[0079] ポリエステルのガラス転移点は、耐衝撃掘れ性と耐ひび割れ性を得る観点、及び、高温における耐流動性を向上させる観点から、好ましくは 40℃ 以上、より好ましくは 45℃ 以上であり、そして、好ましくは 80℃ 以下、より好ましくは 75℃ 以下、更に好ましくは 70℃ 以下である。

[0080] 軟化点、酸価、水酸基価及びガラス転移点は、実施例に記載の方法により測定することができる。なお、軟化点、酸価、水酸基価及びガラス転移点は、原料モノマー組成、分子量、触媒量又は反応条件により調整することができる。

[0081] (ポリエステルの製造方法)

ポリエステルの製造方法は、特に限定されるものではないが、例えば、上述したアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合することにより製造することができる。

重縮合反応の温度は、特に限定されるものではないが、反応性の観点から、好ましくは 160℃ 以上 260℃ 以下である。

[0082] 重縮合反応には、ジ(2-エチルヘキサン酸)錫(II)等の S_n-C 結合を有していない錫(II)化合物を触媒として、耐衝撃掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、アルコール成分とカルボン酸成分との総量 100 質量部に対して、好ましくは 0.01 質量部以上、より好ましくは 0.2 質量部以上、そして、好ましくは 1.5 質量部以下、より好ましくは 0.6 質量部以下、用いてもよい。

重縮合反応には、触媒に加えて、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、没食子酸等のピロガロール化合物をエステル化触媒として、アルコール成分とカルボン酸成分との総量 100 質量部に対して、好ましくは 0.001 質量部以上、より好ましくは 0.005 質量部以上、更に好ましくは 0.01 質量部以上、そして、好ましくは 0.15 質量部以下、より好ましくは 0.10 質量部以下、更に好ましくは 0.05 質量部以下、用いてもよい。

[0083] (ポリエステルの比率)

本発明のアスファルト組成物において、ポリエステルの比率は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を向上させる観点から、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、より好ましくは 5 質量部以上、更に好ましくは 10 質量部以上であり、そして、作業性の観点から、好ましくは 30 質量部以下、より好ましくは 25 質量部以下である。

[0084] 本発明のアスファルト組成物は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性を向上させる観点から、

アスファルトと、

結晶化指数が 50% 以下であり、かつ、無水マレイン酸変性ポリプロピレンにより表面疎水化処理されたセルロースと、

ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物を 60 モル% 以上含むアルコール成分由来の構成単位とテレフタル酸成分由来の構成単位とを含むポリエステルと、

の組合せであることが好ましい。

[0085] <添加剤>

本発明のアスファルト組成物には、上記アスファルト、セルロース及びポリエステルに加え、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、例えば、造膜剤、増粘安定剤、乳化剤等を添加してもよい。

具体的には、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、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、エチレンー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、スチレンーブタジエンゴム、エチレンープロピレンゴム、クロロプレンゴム、アクリルゴム、イソプレンーイソブチレンゴム、ポリペンテナマーゴム、スチレンーブタジエン系ブロック共重合体、スチレンーイソプレン系ブロック共重合体、水素化スチレンーブタジエン系ブロック共重合体、水素化スチレンー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。

これらの合計添加量は、アスファルト組成物全体に対して、好ましくは50質量%以下、より好ましくは30質量%以下、更に好ましくは20質量%以下、より更に好ましくは10質量%以下、より更に好ましくは5質量%以下である。

[0086] [アスファルト組成物の製造方法]

本発明のアスファルト組成物の製造方法は、アスファルトと、セルロース（好ましくは非晶化セルロース）と、ポリエステルとを混合する工程を有する。

[0087] アスファルト組成物は、アスファルトを加熱溶融し、セルロース（好ましくは非晶化セルロース）、ポリエステル及び必要に応じて他の添加剤を添加し、通常用いられている混合機にて、各成分が均一に分散するまで攪拌混合することにより得られる。通常用いられている混合機としては、ホモミキサー、ディゾルバー、パドルミキサー、リボンミキサー、スクリーミキサー、プラネタリーミキサー、真空逆流ミキサー、ロールミル、二軸押出機等が挙げられる。

[0088] 上記アスファルトとセルロースとポリエステルとの混合温度は、アスファルト中に非晶化セルロース及びポリエステルを均一に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは100℃以上、より好ましくは13

0℃以上、更に好ましくは160℃以上、より更に好ましくは170℃以上であり、そして、好ましくは230℃以下、より好ましくは210℃以下、更に好ましくは200℃以下、より更に好ましくは190℃以下である。

[0089] また、アスファルトとセルロースとポリエステルとの混合時間は、効率的にアスファルト中に非晶化セルロース及びポリエステルの均一に分散させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは0.1時間以上、より好ましくは0.5時間以上、更に好ましくは1.0時間以上、より更に好ましくは1.5時間以上であり、そして、好ましくは10時間以下、より好ましくは7時間以下、更に好ましくは5時間以下、より更に好ましくは3時間以下である。

なお、アスファルトに対するセルロース及びポリエステルの好ましい含有量は、上述したとおりである。

[0090] また、本発明のアスファルト組成物及びその製造方法に使用されるセルロースは、上述のように、結晶化指数が50%以下の非晶化セルロースであることが好ましく、表面疎水化処理されたセルロースであることがより好ましい。また、表面疎水化処理されたセルロースは、結晶化指数が50%を超えるセルロースに表面疎水化剤を添加して混合粉碎し、結晶化指数を50%以下にする工程により製造されることが好ましい。

[0091] [アスファルト混合物及びその製造方法]

本発明のアスファルト組成物は、バインダ組成物であり、該アスファルト組成物に、骨材を添加して、アスファルト混合物とした後に、舗装に使用される。すなわち、本発明のアスファルト組成物は、舗装用として好適であり、特に道路舗装用として好適である。

[0092] 骨材としては、例えば、碎石、玉石、砂利、砂、再生骨材、セラミックス等を任意に選択して用いることができる。

骨材としては、粒径2.36mm以上の粗骨材、粒径2.36mm未満の細骨材のいずれも使用することができる。粗骨材としては、例えば、粒径範囲2.36mm以上4.75mm未満の7号碎石、粒径範囲4.75mm以

上 1 3. 2 mm 未満の 6 号碎石、粒径範囲 1 3. 2 mm 以上 1 9 mm 未満の 5 号碎石、粒径範囲 1 9 mm 以上 3 1. 5 mm 未満の 4 号碎石が挙げられる。

細骨材は、好ましくは粒径 0. 0 7 5 mm 以上 2. 3 6 mm 未満の細骨材である。細骨材としては、例えば、川砂、丘砂、山砂、海砂、砕砂、細砂、スクリーニングス、碎石ダスト、シリカサンド、人工砂、ガラスカレット、鋳物砂、再生骨材破碎砂が挙げられる。

上記の粒径は J I S 5 0 0 1 - 1 9 9 5 に規定される値である。

これらの中でも、粗骨材と細骨材との組み合わせが好ましい。

[0093] なお、細骨材には、粒径 0. 0 7 5 mm 未満のフィラー（例えば、砂）が含まれていてもよい。フィラーの平均粒径の下限值は、例えば、0. 0 0 1 mm 以上である。

フィラーの平均粒径は、乾燥強度向上の観点と耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは 0. 0 0 1 mm 以上であり、そして、同様の観点から、好ましくは 0. 0 5 mm 以下、より好ましくは 0. 0 3 mm 以下、更に好ましくは 0. 0 2 mm 以下である。フィラーの平均粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置で測定することができる。ここで、平均粒径とは、体積累積 5 0 % の平均粒径を意味する。

[0094] [フィラー平均粒径の測定方法]

フィラーの平均粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置（株式会社堀場製作所製「L A - 9 5 0」）を用い、以下に示す条件で測定した値である。

- ・測定方法：フロー法
- ・分散媒：エタノール
- ・試料調製：2 m g / 1 0 0 m L
- ・分散方法：攪拌、内蔵超音波 1 分間

[0095] フィラーとしては、砂、フライアッシュ、炭酸カルシウム、消石灰等が挙げられる。このうち、乾燥強度向上の観点と耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、炭酸カルシウムが好ましい。

[0096] 粗骨材と細骨材との質量比率は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは10/90以上、より好ましくは20/80以上、更に好ましくは30/70以上であり、そして、好ましくは90/10以下、より好ましくは80/20以下、更に好ましくは70/30以下である。

骨材の含有量は、アスファルト組成物100質量部に対して、好ましくは1,000質量部以上、より好ましくは1,200質量部以上、更に好ましくは1,500質量部以上であり、そして、好ましくは3,000質量部以下、より好ましくは2,500質量部以下、更に好ましくは2,000質量部以下である。

[0097] なお、従来の骨材とアスファルトを含むアスファルト混合物におけるアスファルトの配合割合については、通常、社団法人日本道路協会発行の「舗装設計施工指針」に記載されている「アスファルト組成物の配合設計」から求められる最適アスファルト量に準じて決定してもよい。

本発明においては、上記の最適アスファルト量が、アスファルト、セルロース及びポリエステルの合計量に相当する。従って、通常、前記最適アスファルト量を、アスファルトセルロース及びポリエステルの合計配合量とすることが好ましい。

ただし、「舗装設計施工指針」に記載の方法に限定する必要はなく、他の方法によって決定してもよい。

[0098] 本発明のアスファルト混合物は、水を実質的に含まない加熱アスファルト混合物として使用してもよく、また、上記アスファルト混合物に乳化剤や水を配合してアスファルト乳剤とし、これに骨材等を配合し、常温アスファルト混合物として使用してもよい。

特に、本発明のアスファルト組成物は、セルロースがアスファルト組成物中に均一に分散しやすい性質を有するため、加熱アスファルト混合物として使用すると、その特徴を有効に発揮することができる。

[0099] アスファルト混合物を加熱アスファルト混合物として使用する場合のアスファルト混合物の製造方法については、特に制限はなく、いかなる方法で製

造してもよいが、通常、骨材とアスファルト組成物とを含むアスファルト混合物の製造方法に準じて行えばよい。

[0100] 本発明のアスファルト混合物の製造方法は、好ましくは、アスファルトとセルロースとポリエステルとを有するアスファルト組成物を調製し、これに骨材を130℃以上200℃以下で混合する工程を有する。

混合温度は、アスファルトを軟化させ、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは140℃以上であり、そして、好ましくは190℃以下、より好ましくは180℃以下である。

また、混合時間は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは30秒間以上、より好ましくは1分間以上、更に好ましくは2分間以上、より更に好ましくは5分間以上であり、時間の上限は、特に限定されないが例えば約30分間程度である。

[0101] アスファルト混合物の具体的な製造方法としては、従来のプラントミックス方式、プレミックス方式等といわれるアスファルト混合物の製造方法が挙げられる。いずれも加熱した骨材にアスファルト（及び必要に応じて熱可塑性エラストマー）、ポリエステル及びセルロースを添加する方法である。添加方法は、例えば、アスファルト（及び必要に応じて熱可塑性エラストマー）、ポリエステル及びセルロースを予め溶解させたプレミックス方式、又はアスファルトに熱可塑性エラストマーを溶解させた改質アスファルトを骨材に添加し、その後にポリエステル及びセルロースを投入するプラントミックス法が挙げられる。これらの中でも、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、プレミックス方式が好ましい。

より具体的には、アスファルト混合物の製造方法は、当該混合する工程において、好ましくは、

（i）加熱した骨材に、アスファルト（及び必要に応じて熱可塑性エラストマー）を添加及び混合して混合物を得た後、ポリエステル及びセルロースを添加して、該混合物とポリエステルとセルロースとを混合する、

（ii）加熱した骨材に、アスファルト（及び必要に応じて熱可塑性エラ

ストマー)、ポリエステル及びセルロースを同時に添加及び混合する、又は
(i i i) 加熱した骨材に、事前に加熱混合したアスファルト (及び必要に応じて熱可塑性エラストマー) とポリエステルとセルロースとの混合物を添加及び混合する。

これらの中でも、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、(i i i) の方法が好ましい。

[0102] [道路舗装方法]

本発明のアスファルト組成物は、道路舗装用として好適であり、上述したように、アスファルト組成物に骨材を添加したアスファルト混合物が、道路舗装に使用される。

本発明の道路舗装方法は、好ましくは、本発明のアスファルト混合物を道路等に施工し、アスファルト舗装材層を形成する工程を有する。

[0103] なお、道路舗装方法において、アスファルト混合物は、通常のアスファルト混合物と同様の施工機械編成で、同様の方法によって締固め施工すればよい。加熱アスファルト混合物として使用する場合のアスファルト混合物の締固め温度は、耐轍掘れ性と耐ひび割れ性の観点から、好ましくは100℃以上、より好ましくは120℃以上、更に好ましくは130℃以上であり、そして、好ましくは200℃以下、より好ましくは180℃以下、更に好ましくは170℃以下である。

[0104] 本発明によれば、轍掘れ及び疲労ひび割れの発生が抑制されたアスファルト舗装を可能とするアスファルト組成物及びその製造方法、並びにアスファルト混合物の製造方法を提供することができる。

実施例

[0105] 各種物性については、以下の方法により、測定及び評価を行った。

なお、以下の実施例及び比較例において、特に断りのない限り、部及び％は質量基準である。

[0106] (1) 水分量の測定

パルプ、粉末状セルロースの水分量は、赤外線水分計 (株式会社島津製作

所製「MOC-120H」）を用いて測定した。測定1回あたり試料5gを用い、試料を平らにならして温度120℃にて測定を行い、30秒間の質量変化率が0.05%以下となる点を測定の終点とした。測定された水分量をセルロースに対する質量%に換算し、各水分量とした。

[0107] (2) 結晶化指数の算出

粉末状セルロースのX線回折強度を、X線回折装置（株式会社リガク製「MiniFlex II」）を用いて以下の条件で測定し、前記計算式（A）に基づいてセルロースのI型の結晶化指数を算出した。

測定条件は、X線源：Cu/K α -radiation、管電圧：30kV、管電流：15mA、測定範囲：回折角 $2\theta = 5 \sim 35^\circ$ 、X線のスキャンスピードは $40^\circ / \text{min}$ で測定した。測定用サンプルは面積 320 mm^2 ×厚さ1mmのペレットを圧縮し作製した。

[0108] (3) ポリエステルの酸価及び水酸基価

ポリエステルの酸価及び水酸基価は、JIS K0070：1992の方法に基づき測定した。ただし、測定溶媒のみJIS K0070：1992に規定のエタノールとエーテルとの混合溶媒から、アセトンとトルエンとの混合溶媒（アセトン：トルエン＝1：1（容量比））に変更した。

[0109] (4) ポリエステルの軟化点

フローテスター「CFT-500D」（株式会社島津製作所製）を用い、1gの試料を昇温速度 $6^\circ \text{C} / \text{分}$ で加熱しながら、プランジャーにより1.96MPaの荷重を与え、直径1mm、長さ1mmのノズルから押し出した。温度に対し、フローテスターのプランジャー降下量をプロットし、試料の半量が流出した温度を軟化点とした。

[0110] (5) ポリエステルのガラス転移点

示差走査熱量計「Q-100」（ティーエイインスツルメントジャパン株式会社製）を用いて、試料0.01～0.02gをアルミパンに計量し、200℃まで昇温し、その温度から降温速度 $10^\circ \text{C} / \text{分}$ で0℃まで冷却した。次に昇温速度 $10^\circ \text{C} / \text{分}$ で150℃まで昇温しながら測定した。吸熱

の最大ピーク温度以下のベースラインの延長線とピークの立ち上がり部分からピークの頂点までの最大傾斜を示す接線との交点の温度をガラス転移点とした。

[0111] 製造例 1

(非晶化セルロースの製造)

(1) 裁断処理

セルロース含有原料として、シート状木材パルプ (T e m b e c 社製「B i o f l o c H V +」、結晶化指数：82%、水分量：8.5質量%)を、裁断機を用いて約3mm×1.5mm×1mmのチップ状に裁断した。

[0112] (2) 乾燥処理

前記(1)の裁断処理により得られたパルプを、2軸横型攪拌乾燥機(株式会社奈良機械製作所製「2軸パドルドライヤー、NPD-3W(1/2)」)を用いて、連続処理にてパルプを乾燥した。乾燥機の加熱媒体は150℃のスチームを用い、パルプの供給速度は45kg/h、大気圧下での処理とした。乾燥後のパルプの水分は0.3%であった。

[0113] (3) セルロース非晶化处理

前記(2)の乾燥処理により得られた乾燥パルプを、連続式振動ミル(ユーラステクノ株式会社製「バイブロミル、YAMT-200」、第1及び第2粉碎室の容量：112L、ステンレス製)を用いて粗粉碎した。第1及び第2粉碎室には、直径30mm、長さ1,300mmのステンレス製の丸棒状の粉碎媒体(ロッド)を80本ずつ収容した。連続式振動ミルを振動数16.7Hz、振幅13.4mmの条件下、乾燥パルプを20.0kg/hで供給した。

[0114] (4) セルロース小粒径化处理

前記(3)の非晶化处理により得られた非晶化セルロースを、高速回転式微粉碎機(株式会社ダルトン製、製品名「アトマイザーAIIW-5型」)を用いて小粒径化した。目開き1.0mmのスクリーンを装着し、ローター周速度を8,000r/min、50m/sで駆動すると共に、原料供給部か

ら非晶化セルロースを非晶化処理と同じ供給速度で供給し、排出口から非晶化セルロースを回収した。得られた非晶化セルロースの水分量は2.5質量%、結晶化指数は0%、体積中位粒径（メジアン径、D50）は62 μ mであった。

（1）から（4）までの処理は連続的に実施した。

[0115] 製造例2

（表面疎水化処理セルロースAの製造）

（1）裁断処理

セルロース含有原料として、シート状木材パルプ（T e m b e c社製「B i o f l o c H V +」、結晶化指数：82%、水分量：8.5質量%）を、裁断機を用いて約3mm×1.5mm×1mmのチップ状に裁断した。

（2）乾燥処理

前記（1）の裁断処理により得られたパルプを、2軸横型攪拌乾燥機（株式会社奈良機械製作所製「2軸パドルドライヤー、NPD-3W（1/2）」）を用いて、連続処理にてパルプを乾燥した。乾燥機の加熱媒体は150℃のスチームを用い、パルプの供給速度は45kg/h、大気圧下での処理とした。乾燥後のパルプの水分は0.3%であった。

[0116] （3）セルロース非晶化処理

前記（2）の乾燥処理により得られた乾燥パルプと表面疎水化剤を、バッチ式振動ミル（中央化工機株式会社製「振動ミル、FV-10」、粉碎室の容量：33L、ステンレス製）を用いて混合粉碎した。粉碎室には、直径30mm、長さ510mmのステンレス製の丸棒状の粉碎媒体（ロッド）を63本収容した。乾燥パルプ613gと表面疎水化剤（三洋化成工業株式会社製「ユーメックス1001」、無水マレイン酸変性ポリプロピレン、酸価：26mg KOH/g、重量平均分子量Mw=45,000）307gを仕込んだ後、バッチ式振動ミルを振動数20Hz、振幅8mmの条件下、混合粉碎（粉碎時間：10分間）した。

[0117] （4）セルロース小粒径化処理

前記（３）の混合粉碎処理により得られた表面疎水化処理セルロースを、高速回転式微粉碎機（株式会社奈良機械製作所製、製品名「自由粉碎機M-3型」）を用いて小粒径化した。目開き1.0mmのスクリーンを装着し、ローター周速度を7700r/min、81m/sで駆動すると共に、原料供給部から表面疎水化処理セルロースを18kg/hで供給し、排出口から表面疎水化処理セルロースを回収した。得られた表面疎水化処理セルロースの水分量は1.0質量%、結晶化指数は37%、体積中位粒径（D50）は44μmであった。

（１）から（２）までの処理は連続的に実施し、（３）から（４）までの処理はバッチで行った。

[0118] 製造例3

（表面疎水化処理セルロースBの製造）

表面疎水化剤を、Cray Valley社製「SMA」（スチレン-マレイン酸共重合体、酸価：105～135mg KOH/g、重量平均分子量 $M_w = 14,400$ ）307gに変更した以外は、製造例2と同様にして表面疎水化処理セルロースBを得た。

[0119] 製造例4

（表面疎水化処理セルロースCの製造）

表面疎水化剤を、花王株式会社製「ASAN-PT」（アルケニルコハク酸、C12成分：80モル%、けん化価：433.9mg KOH/g、分子量 = 258.6）83.6gに変更した以外は、製造例2と同様にして表面疎水化処理セルロースCを得た。

[0120] 製造例5

（ポリエステル樹脂A）

表1に示すポリエステルのアルコール成分と、テレフタル酸を、温度計、ステンレス製攪拌棒、流下式コンデンサー及び窒素導入管を装備した5リットル容の四つ口フラスコに入れ、窒素雰囲気にてジ（2-エチルヘキサン酸）錫（II）20g、及び没食子酸2gを添加し、マントルヒーター中で3時

間かけて 235℃まで昇温を行い 235℃到達後 7 時間保持した。8.0 kPa にて減圧反応を行い、表に示す軟化点に達するまで反応を行い、目的のポリエステル樹脂 A を得た。

[0121] 製造例 6

(ポリエステル樹脂 B)

表 1 に示すポリエステルのアルコール成分と、テレフタル酸を、温度計、ステンレス製攪拌棒、流下式コンデンサー及び窒素導入管を装備した 5 リットル容の四つ口フラスコに入れ、窒素雰囲気にてジ(2-エチルヘキサン酸)錫(II) 20 g、及び没食子酸 2 g を添加し、マントルヒーター中で 3 時間かけて 235℃まで昇温を行い 235℃到達後 5 時間保持した後 8.0 kPa にて 1 時間減圧反応を行った。その後、180℃まで冷却後、アジピン酸を投入し、210℃まで 2 時間かけて昇温後 210℃で 1 時間保持し、8.0 kPa にて減圧反応を行った後、表に示す軟化点に達するまで反応を行い、目的のポリエステル樹脂 B を得た。

[0122]

[表1]

表1

製造例			5		6	
樹脂			A		B	
原料モノマー			仕込量 (g)	モル比 *3	仕込量 (g)	モル比 *3
	アルコール 成分	BPA-PO *1	997	35	1943	70
		BPA-EO *2	1719	65	773	30
	カルボン 酸成分	テレフタル酸	1284	95	1053	80
		アジピン酸	-	-	232	20
エステル化触媒	ジ(2-エチルヘキサン酸)錫(Ⅱ)		20 g		20 g	
助触媒	没食子酸		2 g		2 g	
物性	軟化点(℃)		112.3		114.0	
	ガラス転移点(℃)		68.4		63.0	
	酸価(mgKOH/g)		4.1		7.8	
	水酸基価(mgKOH/g)		24.0		10.4	

*1: BPA-PO:ビスフェノールAのポリオキシプロピレン(2.2)付加物

*2: BPA-EO:ビスフェノールAのポリオキシエチレン(2.2)付加物

*3: アルコール成分100モルに対するモル量(モル比)

[0123] 実施例 A 1

予め180℃に加熱したポリマー改質アスファルト（東亜道路工業株式会社製、「HRバインダー」）100部に対し、製造例2で調製した表面疎水化処理セルロースAを1部、製造例5で調製したポリエステル樹脂Aを20部投入し、ホモミキサーで回転数8,000r/min、内温180℃の条件下、2時間攪拌し、アスファルト組成物を得た。

[0124] 実施例 A 2～A 9 及び比較例 A 1～A 4

実施例A1において、表面疎水化処理セルロース及びポリエステ樹脂の種類及び量を表2に示したとおり変更したこと以外は実施例A1と同様にして、アスファルト組成物を得た。なお、実施例A9では、セルロースDとして、結晶性セルロース（日本製紙株式会社製、「KCフロックW-50GK」、結晶化指数：62%、メジアン径：45μm）を使用した。

[0125]

[表2]

表2

		ポリエステル		セルロース		耐久性評価	
		種類	添加量 (部) *1	種類	添加量 (部) *1	わだち量 (mm)	変位量 (mm)
実施例	A1	A	20	A	1	2.5	1.52
	A2	A	20	A	0.5	5.5	— *2
	A3	A	15	A	1	11.0	— *2
	A4	A	20	B	1	8.0	1.4
	A5	A	20	C	1	4.0	1.46
	A6	B	20	A	1	3.0	1.5
	A7	B	20	B	1	8.5	— *2
	A8	B	20	C	1	4.0	— *2
	A9	A	20	D	1	14.5	1.34
比較例	A1	A	20	-	-	17.0	0.98
	A2	-	-	A	1	21.0	— *2
	A3	-	-	C	1	22.0	— *2
	A4	-	-	-	-	25.0	— *2

*1: アスファルト100部に対する添加量(部)

*2: 表中の-は未測定を示す。

[0126] 実施例 B 1

予め180℃に加熱したポリマー改質アスファルト (Ergon Asphalt & Emulsions社製、「Performance Grade Asphalt PG76-22」) 100部に対し、製造例2で調製した表面疎水化处理セルロースAを1部、製造例5で調製したポリエステル樹脂Aを3部投入し、ホモミキサーで回転数8,000 r/min、内温180℃の条件下、2時間攪拌し、アスファルト組成物を得た。

[0127] 実施例 B 2～B 3 及び比較例 B 1～B 4

実施例 B 1 において、表面疎水化处理セルロース及びポリエステル樹脂の種類及び量を表3に示したとおり変更したこと以外は実施例 B 1 と同様にして、アスファルト組成物を得た。

[0128]

[表3]

表3

		ポリエステル		セルロース		耐久性評価	
		種類	添加量 (部) *1	種類	添加量 (部) *1	わだち量 (mm)	変位量 (mm)
実施例	B1	A	3	A	1	2.0	2.21
	B2	A	3	B	1	4.0	2.15
	B3	A	3	C	1	2.5	2.20
比較例	B1	A	3	-	-	8.0	1.92
	B2	-	-	A	1	10.0	1.90
	B3	-	-	C	1	10.5	1.90
	B4	-	-	-	-	14.0	1.84

*1: アスファルト100部に対する添加量(部)

[0129] 実施例及び比較例で得られたアスファルト組成物について、以下の耐久性評価を行った。結果を表2及び3に示す。

[0130] [耐久性評価(わだち量)]

180℃に加熱したアスファルトミキサー(20L容量、株式会社岩田工業所製「A1-110-B」)に、180℃に加熱した骨材11kgを投入し60秒混合した後、事前に180℃で加熱混合処理したアスファルト621g(ポリエステル3部)、あるいは723g(ポリエステル20部)、あるいは単純に加熱溶融したアスファルト603g(ポリエステル0部)を投入し120秒混合した。混合したアスファルト混合物を2時間オーブン(180℃)で養生した後、金属型枠(300×300×50mm)に充填し、空圧式ローラーコンパクター(株式会社岩田工業所製)を使用し、線圧29.4kN/mの荷重にて転圧してホイールトラッキング供試体を作成した。作成した供試体を1晩室温で冷却した後、水浸式ホイールトラッキング試験機(株式会社岩田工業所製「A1-1100-S」)を用いて、わだち量測定試験を行った。測定条件は、測定温度60℃、走行速度15±1回/分、輪荷重100kgf、走行回数2,500回である。

(骨材配合)

家島産碎石(小) 52質量%

家島産砕砂 10質量%

揖斐川産川砂	22質量%
甲賀バラス砕砂	10質量%
清水工業（株）製ネオフロー	5質量%

[0131] 〔耐久性評価（変位量）〕

180℃に加熱した豊浦標準砂200gに180℃で加熱混合処理したアスファルト14gを加えて手練りで混合した。すなわち、ポリエステル配合はアスファルトに対して外添加である。混合物を2時間オーブン（180℃）で養生した後、金属型枠（24×200×24mm）に手詰めで充填した。1晩室温で冷却した後、表面を金属ヘラで慣らしてから脱型し、曲げ試験用の供試体を得た。

曲げ試験測定は、テンシロン万能材料試験機（株式会社エー・アンド・デイ製、「RTC-1210A」）を用いて行った。測定値は、最大荷重での変位量を破断点（変曲点）とした。測定条件は、1kNロードセルを使用し、支点間距離150mm、ヘッドスピード10mm/min、サンプリング間隔0.02mmである。

[0132] 表2で用いたポリマー改質アスファルトは軽質系で柔らかめであるのに対し、表3で用いたポリマー改質アスファルトは重質系で固めの傾向があり、この性質の違いから、表2と表3の結果には違いが出ている。表2及び3の結果から、実施例のアスファルト組成物によれば、比較例のアスファルト組成物に比較して、轍掘れ及び疲労ひび割れの発生が抑制されたアスファルト舗装が得られることが分かる。

請求の範囲

- [請求項1] アスファルト、セルロース及びポリエステルを含有する、アスファルト組成物。
- [請求項2] 前記セルロースの含有量が、前記アスファルト100質量部に対して0.01質量部以上10質量部以下であり、前記ポリエステルの含有量が、前記アスファルト100質量部に対して2質量部以上30質量部以下である、請求項1に記載のアスファルト組成物。
- [請求項3] セルロースをアスファルト100質量部に対して0.01質量部以上10質量部以下と、ポリエステルを前記アスファルト100質量部に対して2質量部以上30質量部以下とを配合してなる、アスファルト組成物。
- [請求項4] 前記セルロースが、表面疎水化剤によって表面疎水化処理されたセルロースである、請求項1～3のいずれか1つに記載のアスファルト組成物。
- [請求項5] 前記表面疎水化剤による処理量が、未処理のセルロース100質量部に対して、1質量部以上100質量部以下である、請求項4に記載のアスファルト組成物。
- [請求項6] 前記の表面疎水化処理されたセルロースが、シラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤、極性基とポリオレフィン鎖又はポリスチレン鎖とを有するポリマー、及び極性基を有する飽和脂肪族化合物からなる群から選択される少なくとも1つの表面疎水化剤によって表面処理されたセルロースである、請求項4又は5に記載のアスファルト組成物。
- [請求項7] 前記の極性基とポリオレフィン鎖とを有するポリマーが、無水マレイン酸で変性されたポリプロピレン又は無水マレイン酸で変性されたポリエチレンである、請求項6に記載のアスファルト組成物。
- [請求項8] 前記セルロースのメジアン径が5 μm 以上200 μm 以下である、請求項1～7のいずれか1つに記載のアスファルト組成物。

- [請求項9] 前記ポリエステルが、90℃以上140℃以下の軟化点、及び40℃以上80℃以下のガラス転移点を有する、請求項1～8のいずれか1つに記載のアスファルト組成物。
- [請求項10] 前記ポリエステルが、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を60モル%以上含むアルコール成分由来の構成単位と、カルボン酸成分由来の構成単位とを含む、請求項1～9のいずれか1つに記載のアスファルト組成物。
- [請求項11] 道路舗装用である、請求項1～10のいずれか1つに記載のアスファルト組成物。
- [請求項12] 請求項1～11のいずれか1つに記載のアスファルト組成物を製造する方法であって、
前記アスファルトと、前記セルロースと、前記ポリエステルとを混合する工程を有する、アスファルト組成物の製造方法。
- [請求項13] アスファルトと骨材とを混合して混合物を得た後、その混合物とポリエステルとセルロースとを混合する、アスファルト混合物の製造方法。
- [請求項14] アスファルトとポリエステルとセルロースとを混合してアスファルト組成物を得た後、該アスファルト組成物と骨材とを混合する、アスファルト混合物の製造方法。
- [請求項15] 請求項1～10のいずれか1つに記載のアスファルト組成物の道路舗装への使用。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/001883

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

E01C 7/22 (2006.01) i; E01C 11/16 (2006.01) i; C08L 1/00 (2006.01) i; C08L 67/00 (2006.01) i; C08L 95/00 (2006.01) i

FI: C08L95/00; C08L67/00; C08L1/00; E01C7/22; E01C11/16

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

E01C7/22; E01C11/16; C08L1/00-1/32; C08L67/00-67/08; C08L95/00

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 1-279981 A (COSMO OIL CO., LTD.) 10.11.1989 (1989-11-10) claims, example 5	1, 8, 12 2-7, 9-11, 13-15
X A	JP 2000-44808 A (BLUE ROKKU KK) 15.02.2000 (2000-02-15) claims, paragraph [0008], examples	1, 8, 11-12, 15 2-7, 9-10, 13-14
A	JP 2018-3580 A (KAO CORP.) 11.01.2018 (2018-01-11) claims, examples	1-15
A	JP 2001-158857 A (MI TEC KK) 12.06.2001 (2001-06-12) claims, examples	1-15
P, A	WO 2019/017289 A1 (KAO CORP.) 24.01.2019 (2019-01-24) claims, examples	1-15



Further documents are listed in the continuation of Box C.



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

"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
31 March 2020 (31.03.2020)

Date of mailing of the international search report
07 April 2020 (07.04.2020)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/001883

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 1-279981 A	10 Nov. 1989	(Family: none)	
JP 2000-44808 A	15 Feb. 2000	(Family: none)	
JP 2018-3580 A	11 Jan. 2018	US 2019/0135693 A1 claims, examples	
		WO 2018/003151 A1	
		EP 3476899 A1	
JP 2001-158857 A	12 Jun. 2001	(Family: none)	
WO 2019/017289 A	24 Jan. 2019	JP 2019-23279 A claims, examples	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） E01C 7/22(2006.01)i; E01C 11/16(2006.01)i; C08L 1/00(2006.01)i; C08L 67/00(2006.01)i; C08L 95/00(2006.01)i FI: C08L95/00; C08L67/00; C08L1/00; E01C7/22; E01C11/16		
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）） E01C7/22; E01C11/16; C08L1/00-1/32; C08L67/00-67/08; C08L95/00 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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語）		
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	JP 1-279981 A（コスモ石油株式会社）10.11.1989（1989-11-10） 特許請求の範囲, 実施例5	1, 8, 12
A		2-7, 9-11, 13-15
X	JP 2000-44808 A（株式会社ブルーロック）15.02.2000（2000-02-15） 特許請求の範囲, [0008], 実施例	1, 8, 11-12, 15
A		2-7, 9-10, 13-14
A	JP 2018-3580 A（花王株式会社）11.01.2018（2018-01-11） 特許請求の範囲, 実施例	1-15
A	JP 2001-158857 A（株式会社エムアイテック）12.06.2001（2001-06-12） 特許請求の範囲, 実施例	1-15
P, A	WO 2019/017289 A1（花王株式会社）24.01.2019（2019-01-24） 請求の範囲, 実施例	1-15
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ 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、一般的な技術水準を示すもの “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 31.03.2020		国際調査報告の発送日 07.04.2020
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） 藤本 保 4J 9552 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2020/001883

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	1-279981	A	10.11.1989	(ファミリーなし)	
JP	2000-44808	A	15.02.2000	(ファミリーなし)	
JP	2018-3580	A	11.01.2018	US 2019/0135693 A1	
				特許請求の範囲, 実施例	
				WO 2018/003151 A1	
				EP 3476899 A1	
JP	2001-158857	A	12.06.2001	(ファミリーなし)	
WO	2019/017289	A1	24.01.2019	JP 2019-23279 A	
				特許請求の範囲, 実施例	