

明 細 書

発明の名称：アスファルト組成物

技術分野

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

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、アスファルト組成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、アスファルト舗装面は、長期使用によって轍やひび割れが入るため、舗装の補修を行う必要が生じ、維持費用が増大するとともに、自動車の交通に大きな影響を与える結果となっていた。

[0003] 特許文献１（日本国特開２００６－０９６７９９号公報）では、廃PETをできるだけ低コストで大量に処理でき、かつ所望の特性を備えた高価な舗装材用プラスチック組成物を提供することを目的として、廃PETと、１種又は２種以上の多価アルコール及び／又は糖類とを触媒の存在下でエステル交換させて舗装材用プラスチック組成物を得る舗装材用プラスチック組成物の製造方法が開示されている。

[0004] 一方、特許文献２（国際公開第２０１７／１２５４２１号）には、乾燥強度、水浸漬強度、及び石油浸漬強度に優れる、道路舗装用アスファルト組成物に関して、アスファルト、ポリエステル樹脂、及び骨材を含有し、前記ポリエステル樹脂が、ビスフェノールＡのアルキレンオキシド付加物を６５モル％以上含むアルコール成分由来の構成単位と、テレフタル酸及びイソフタル酸からなる群から選ばれる１種以上を５０モル％以上含むカルボン酸成分

由来の構成単位とを有するポリエステルであって、軟化点が 95°C 以上 130°C 以下であり、かつ、水酸基価が 20mg KOH/g 以上 50mg KOH/g 以下であり、前記ポリエステル樹脂の比率が、前記アスファルト 100 質量部に対し 5 質量部以上 50 質量部以下である、道路舗装用アスファルト組成物が開示されている。

発明の概要

[0005] 本発明は、アスファルト及びポリエステルを含有するアスファルト組成物であって、前記ポリエステルが、ポリエチレンテレフタレート、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、該アルコールが、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含む、アスファルト組成物に関する。

発明の詳細な説明

[0006] 従来、アスファルトとポリエステルを含有する組成物を用いた場合、乾燥強度の強いアスファルト組成物が得られるが、よりいっそう、施工後の舗装面の轍掘れを抑制することができるアスファルト組成物が求められる。また、従来技術では、轍掘れの抑制と、アスファルト組成物の高温での保存安定性を同時に満足することは困難であった。例えば特許文献2の技術では、轍掘れの抑制が可能であるが高温でのアスファルトの保存安定性に課題があった。

本発明は、保存安定性に優れ、かつ、施工後の舗装面の轍掘れを抑制することができるアスファルト組成物、アスファルト混合物及びその製造方法に関する。

[0007] 本発明は、以下の〔1〕～〔4〕に関する。

〔1〕 アスファルト及びポリエステルを含有するアスファルト組成物であって、

前記ポリエステルが、ポリエチレンテレフタレート、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、該アルコールが、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含む、アスファルト組成物。

〔2〕 工程1：エステル化触媒の存在下、ポリエチレンテレフタレート、

ビスフェノール A アルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程、並びに

工程 2 : アスファルトと、工程 1 で得られたポリエステルとを混合する工程

を含む、アスファルト組成物の製造方法。

〔3〕 上記〔1〕に記載のアスファルト組成物と、骨材と、を含むアスファルト混合物。

〔4〕 工程 1 : エステル化触媒の存在下、ポリエチレンテレフタレート、ビスフェノール A アルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程、並びに

工程 2 : 加熱した骨材と、アスファルトと、工程 1 で得られたポリエステルとを混合する工程

を含む、アスファルト混合物の製造方法。

[0008] 本発明によれば、保存安定性に優れ、かつ、施工後の舗装面の轍掘れを抑制することができるアスファルト組成物、アスファルト混合物及びその製造方法を提供することができる。

[0009] [アスファルト組成物]

本発明のアスファルト組成物（以下、単に「アスファルト組成物」ともいう）は、アスファルト及びポリエステルを含有する。

そして、ポリエステルが、ポリエチレンテレフタレート、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、該アルコールが、ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物を含む。

以上によれば、保存安定性に優れ、かつ、施工後の舗装面の轍掘れを抑制することができるアスファルト組成物が得られる。更にこの技術を応用して、アスファルト混合物、及び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。

[0010] 本発明の効果が得られる理由は定かではないが、以下のように考えられる。

ポリエチレンテレフタレート（以下、「PET」ともいう）を加工せずにそのままアスファルト中に添加すると、PETの融点が260℃と比較的高いため、PETが原粒径のまま塊として舗装中に存在し、アスファルト混合物の耐轍掘れ性が低下する要因となる。また、PETをオートクレーブにて加水分解したPETオリゴマーをアスファルトに添加する手法も開示されているが、オリゴマーの分子量が約1000と低く耐轍掘れ性の向上には至らない。

これに対し、本発明に用いられるポリエステルは、PET、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、PETをアルコール成分及びカルボン酸成分とともに重縮合することでエステル交換反応が起こり、PETの構成単位が、アルコール成分由来の構成単位及びカルボン酸成分由来の構成単位中に取り込まれたポリエステルである。そして、アルコール成分としては、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含む。疎水性を有するビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含むことで、疎水性であるアスファルト中にポリエステルを微分散させることができる。微分散状態を保ったまま、ポリエステル中に取り込まれた親水性のPET構造が、アスファルト中に含まれるアスファルテンと強く相互作用することで、アスファルトと骨材を強固に繋ぎ止めることができ、施工後の舗装面の轍掘れを効率的に抑制することができたと考えられる。更に、微分散状態かつPET構造とアスファルテンとの強い相互作用により、ポリエステルがアスファルト中に沈殿しにくくなり、結果、保存安定性も優れると考えられる。

[0011] 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。

[0012] 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。

[0013] 「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、減圧蒸留装置等で処理して得られる残留瀝青物質を意味する。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。

本明細書において、「アスファルト」とは、ドイツ工業規格D I N E N 1 2 5 9 7に定義されるビチューメンを包含する。「アスファルト」と「ビチューメン」は交換可能に用いられるものとする。

- [0014] 本発明では、耐轍掘れ性を向上させる観点から、アスファルト中のアスファルテン含有量が、アスファルト100質量%中、好ましくは10質量%以上、より好ましくは15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25質量%以下、更に好ましくは20質量%以下である。

なお、アスファルト中のアスファルテン含有量は、石油学会規格J P I - 5 S - 2 2 - 8 3「アスファルテンのカラムクロマトグラフィーによる組成分析法」により測定した値である。

- [0015] [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。

- [0016] 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、「E l v a r o y」（デュボン社製）が挙げられる。

[0017] これらの熱可塑性エラストマーの中でも、耐轍掘れ性を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。

[0018] 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、耐轍掘れ性を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。

[0019] アスファルト組成物において、熱可塑性エラストマーの含有量は、耐轍掘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。

[0020] アスファルト組成物中のアスファルトの含有量は、耐轍掘れ性の観点とアスファルト性能を発揮する観点から、アスファルト組成物100質量%中、好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上、更に好ましくは75質量%以上、より更に好ましくは80質量%以上であり、そして、轍掘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97質量%以下、更に好ましくは96質量%以下である。

[0021] [ポリエステル]

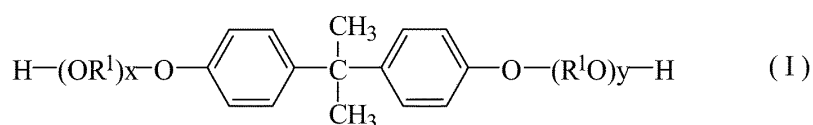
本発明のアスファルト組成物は、ポリエステルを含有する。ポリエステル

は、保存安定性及び耐轍掘れ性を向上させる観点から、ポリエチレンテレフタレート、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、該アルコールが、ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物を含む。

[0022] <アルコール成分>

アルコール成分は、優れた耐轍掘れ性を得る観点から、ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物を含み、好ましくは下記式 (I) 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。

[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。]

[0023] 式 (I) 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。

[0024] 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を得る観点から、ポリエステルアルコール成分 100 モル%中、好ましくは 80 モル%以上、より好ましくは 90 モル%以上であり、そして、100 モル%以下である。

[0025] アルコール成分は、ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物以外のアルコール成分を含んでいてもよい。例えば、脂肪族ジオール、芳香族ジオール (ビスフェノール A のアルキレンオキシド付加物を除く)、3 価以上の多価アルコールが挙げられる。これらのアルコール成分は、単独で又は 2 種

以上を組み合わせ使用することができる。

[0026] 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-ブテンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、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。

[0027] <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。

[0028] 脂肪族ジカルボン酸の主鎖の炭素数は、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。

[0029] 芳香族ジカルボン酸化合物としては、例えば、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、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、耐轍掘れ性を得る観点から、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。

[0030] 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、又はこれらの酸無水物等が挙げられる。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。

[0031] カルボン酸成分が脂肪族ジカルボン酸化合物を含む場合、カルボン酸成分中における脂肪族ジカルボン酸化合物の含有量は、ポリエステルの可撓性を上げて耐轍掘れ性をより向上させる観点から、カルボン酸成分 100 モル%中、好ましくは 1 モル%以上、より好ましくは 3 モル%以上、更に好ましくは 5 モル%以上であり、そして、好ましくは 15 モル%以下、より好ましくは 10 モル%以下である。

[0032] 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 100 モル%以下、より好ましくは 99 モル%以下、更に好ましくは 95 モル%以下、より更に好ましくは 90 モル%以下である。

[0033] (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、酸価の調整及び耐轍掘れ性の観点から、好ましくは 0.7 以上、より好ましくは 0.8 以上、更に好ましくは 0.9 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。

[0034] (ポリエチレンテレフタレート由来の構成単位)

本発明に用いられるポリエステルは、ポリエチレンテレフタレート由来のエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位を含む。ポリエチレンテレフタレートは、エチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位の他にブタンジオールやイソフタル酸等の成分を少量含有してもよい。

[0035] 近年、廃プラスチックが環境に与える影響が問題となっており、廃プラスチックのリサイクルが検討されている。本発明では、ポリエチレンテレフタレートはボトルやフィルム等の製品として汎用されていることから、それらの製品として製造され、その後廃棄されたものを回収したポリエチレンテレフタレート（以下「回収PET」ともいう）が、環境問題及び価格の面から好ましく用いられる。なお、回収品は、ある程度の純度を有しているものであれば、その種類等は特に限定されない。不純物として、ポリエチレンやポリプロピレンのようなプラスチックを少量含んでいてもよい。例えば、廃パウチ容器を回収PETとして利用することもできる。

[0036] なお、回収品の使用に際しては、取り扱いや分散及び分解等の容易性のため、フレーク状に粉碎されたもの、ペレット等が好適に用いられる。本発明に用いられる回収品の具体的な大きさとしては、反応効率の観点から、好ましくは 4 mm^2 以上 15 mm^2 以下であり、厚みは好ましくは 3 mm 以下である。

[0037] ポリエステルにおける、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位(B)と、ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位(E)とのモル比(B)/(E)は、保存安定性及び耐輻掘れ性の観点から、好ましくは $30/70$ 以上であり、より好ましくは $50/50$ 以上であり、更に好ましくは $60/40$ 以上であり、そして、好ましくは $95/5$ 以下、より好ましくは $90/10$ 以下、更に好ましくは $80/20$ 以下である。

前記(B)/(E)は、保存安定性及び耐輻掘れ性の観点から、好ましくは $30/70$ 以上 $95/5$ 以下であり、より好ましくは $50/50$ 以上 90

／10以下であり、更に好ましくは60／40以上80／20以下である。

[0038] 本発明に用いられるポリエステルは、実質的にその特性を損なわない程度に変性されたポリエステルであってもよい。変性されたポリエステルは、具体的には、特開平11-133668号公報、特開平10-239903号公報、特開平8-20636号公報等に記載の方法によりフェノール、ウレタン、エポキシ等によりグラフト化やブロック化したポリエステルが挙げられる。好ましい変性されたポリエステルは、ポリエステルをポリイソシアネート化合物でウレタン伸長したウレタン変性ポリエステルが挙げられる。

[0039] (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。

[0040]ポリエステルの酸価は、骨材への吸着を促進し、耐轍掘れ性を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5mg 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40mg KOH／g以下、より好ましくは30mg KOH／g以下、更に好ましくは20mg KOH／g以下である。

[0041]ポリエステルの水酸基価は、耐轍掘れ性を向上させる観点から、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5mg KOH／g以上、より更に好ましくは10mg KOH／g以上であり、そして、好ましくは70mg KOH／g以下、より好ましくは50mg KOH／g以下、更に好ましくは30mg KOH／g以下、より更に好ましくは26mg KOH／g以下である。

[0042]ポリエステルのガラス転移点は、耐轍掘れ性を得る観点から、好ましくは30℃以上、より好ましくは40℃以上、更に好ましくは50℃以上であり

、そして、好ましくは80℃以下、より好ましくは70℃以下、更に好ましくは65℃以下である。

[0043] 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。

[0044] (ポリエステル製造方法)

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、ポリエチレンテレフタレート、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物を含有する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、反応性の観点とモノマー分解温度の観点から、好ましくは210℃以上260℃以下である。

[0045] 原料におけるポリエチレンテレフタレートの存在量は、ポリエチレンテレフタレート、アルコール成分及びカルボン酸成分の合計量100質量%中、好ましくは4質量%以上、より好ましくは10質量%以上、更に好ましくは13質量%以上であり、そして、好ましくは80質量%以下、より好ましくは70質量%以下、更に好ましくは40質量%以下である。

原料におけるポリエチレンテレフタレートの存在量は、ポリエチレンテレフタレート、アルコール成分及びカルボン酸成分の合計量100質量%中、好ましくは4質量%以上80質量%以下、より好ましくは10質量%以上70質量%以下、更に好ましくは13質量%以上40質量%以下である。

[0046] アルコール成分とカルボン酸成分との重縮合反応の際にポリエチレンテレフタレートを添加することで、エステル交換反応が起こり、ポリエチレンテレフタレートの構成単位が、アルコール成分由来の構成単位及びカルボン酸成分由来の構成単位中に取り込まれたポリエステルを得ることができる。

ポリエチレンテレフタレートは、重縮合反応開始時から存在させていても、重縮合反応途中で反応系に添加してもよい。ポリエチレンテレフタレート

の添加時期は、耐轍掘れ性の観点から、アルコール成分とカルボン酸成分との反応率が10%以下の段階が好ましく、5%以下の段階がより好ましい。なお、反応率とは、生成反応水量（モル）／理論生成水量（モル）×100の値をいう。

[0047] 重縮合反応には、反応性とコストの観点から、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）化合物をエステル化触媒として使用できる。エステル化触媒の使用量は、アルコール成分とカルボン酸成分とポリエチレンテレフタレートの総量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3.0質量部以下、より好ましくは1.5質量部以下である。

重縮合反応には、反応性とコストの観点から、触媒に加えて、没食子酸等のピロガロール化合物をエステル化助触媒として使用できる。エステル化助触媒の使用量は、アルコール成分とカルボン酸成分とポリエチレンテレフタレートの総量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0.50質量部以下、より好ましくは0.20質量部以下、更に好ましくは0.10質量部以下である。

[0048] （ポリエステルの含有量）

本発明のアスファルト組成物において、ポリエステルの含有量は、耐轍掘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0.5質量部、より好ましくは1質量部以上、更に好ましくは3質量部以上、より更に好ましくは5質量部以上であり、そして、好ましくは50質量部以下、より好ましくは30質量部以下、更に好ましくは20質量部以下、より更に好ましくは10質量部以下である。

[0049] 本発明のアスファルト組成物において、ポリエステル中のポリエチレンテレフタレートの構成単位の質量比率（P）と、アスファルト中のアスファルテンの含有量（A）との比率（P）／（A）は、耐轍掘れ性及び保存安定性の観点から、好ましくは0.15以上が好ましくは、より好ましくは0.2

以上であり、より好ましくは0.5以上であり、より好ましくは0.8であり、そして、3.5以下が好ましく、より好ましくは3以下であり、より好ましくは2.7以下である。

[0050] [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を製造する方法は、アスファルトと、上記のポリエステルとを混合する工程を有することが好ましい。

[0051] アスファルト組成物は、アスファルトを加熱溶融し、ポリエステルを添加し、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、スクリュミキサー、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。

[0052] アスファルトとポリエステルとの混合温度は、アスファルト中にポリエステルを均一に分散させ、耐轍掘れ性及び保存安定性の観点から、好ましくは100℃以上、より好ましくは130℃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。

[0053] また、アスファルト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ポリエステルを均一に分散させ、耐轍掘れ性及び保存安定性の観点から、好ましくは1分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。

[0054] ポリエステル中のポリエチレンテレフタレートの構成単位の質量比率（P）と、アスファルト中のアスファルテンの含有量（A）との比率（P）／（A）は、耐轍掘れ性及び保存安定性の観点から、好ましくは0.15以上が好ましくは、より好ましくは0.2以上であり、より好ましくは0.5以上

であり、より好ましくは0.8であり、そして、3.5以下が好ましく、より好ましくは3以下であり、より好ましくは2.7以下である。

[0055] アスファルト組成物の製造方法の好ましい態様は、エステル化触媒の存在下、ポリエチレンテレフタレート、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程（工程1）、並びにアスファルトと、前述のポリエステル（工程1で得られたポリエステル）とを混合する工程（工程2）を含む。

[0056] 上記ポリエチレンテレフタレートは、好ましくは回収されたポリエチレンテレフタレートである。この場合、アスファルト組成物の製造方法は、好ましくは、ポリエチレンテレフタレートを製品から回収する工程（工程1a）、エステル化触媒の存在下、前述のポリエチレンテレフタレート（工程1aで得られたポリエチレンテレフタレート）、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程（工程2a）、並びにアスファルトと、前述のポリエステル（工程2aで得られたポリエステル）とを混合する工程（工程3a）を含む。

[0057] [分散剤]

アスファルト組成物は、分散剤を含んでいてもよい。

分散剤は、アスファルトに溶解するものであり、且つポリエステルとの親和性があるものが好ましい。

分散剤としては、例えば、高分子分散剤、ポリオキシエチレンアルキルアミン、アルカノールアミン等の界面活性剤等を挙げることができる。

高分子分散剤としては、例えば、ポリアミドアミンとその塩、ポリカルボン酸とその塩、高分子量不飽和酸エステル、変性ポリウレタン、変性ポリエステル、変性ポリ（メタ）アクリレート、（メタ）アクリル系共重合体、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物等が挙げられる。これらの分散剤は、単独で又は2種以上を組み合わせて使用してもよい。

分散剤は、高温保管安定性を向上させる観点から、好ましくは高分子分散剤である。なお、本発明における「高分子分散剤」とは、重量平均分子量が1,000以上の分散剤を意味する。ポリマー種にもよるが、重量平均分子量としては、好ましくは2,000以上、より好ましくは4,000以上であり、そして、好ましくは80,000以下、より好ましくは40,000以下である。

[0058] 分散剤は、好ましくは塩基性官能基を有する。塩基性官能基とは、共役酸の pK_a が-3以上となるような基を意味する。塩基性官能基としては、例えば、アミノ基、イミノ基、4級アンモニウム基が挙げられる。

分散剤の塩基価は、高温保管安定性の観点から、好ましくは10mg KOH/g以上、より好ましくは20mg KOH/g以上、更に好ましくは30mg KOH/g以上であり、そして、好ましくは150mg KOH/g以下、より好ましくは120mg KOH/g以下、更に好ましくは100mg KOH/g以下である。塩基価の測定方法は、JIS K7237:1995に規定の方法により測定する。

[0059] 市販の分散剤としては、例えば、「ディスパー」シリーズの「byk-101」、「byk-130」、「byk-161」、「byk-162」、「byk-170」、「byk-2020」、「byk-2164」、「byk-LPN21324」（以上、ビックケミー（BYK）社製）；「ソルスパース」シリーズの「9000」、「11200」、「13240」、「13650」、「13940」、「17000」、「18000」、「24000」、「28000」、「32000」、「38500」、「71000」（以上、ルブリゾール社製）；「アジスパー」シリーズの「PB821」、「PB822」、「PB880」、「PB881」（以上、味の素ファインテクノ株式会社製）；「エフカ」シリーズの「46」、「47」、「48」、「49」、「4010」、「4047」、「4050」、「4165」、「5010」（以上、BASF社製）；「フローレンTG-710」（共栄社化学株式会社製）；「TAMN-15」（日光ケミカルズ株式会社製）

）が挙げられる。

[0060] 分散剤の含有量は、高温保管安定性の観点から、ポリエステル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4質量部以上であり、そして、好ましくは80質量部以下、より好ましくは60質量部以下、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、より更に好ましくは20質量部以下である。

[0061] [アスファルト混合物]

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。

本発明のアスファルト混合物は、前述のアスファルト組成物、及び骨材を含有する。つまり、アスファルト混合物は、アスファルト、ポリエステル及び骨材を含有し、好ましくはアスファルト、熱可塑性エラストマー、ポリエステル及び骨材を含有する。

[0062] アスファルト混合物中のアスファルト組成物の含有量は、耐轍掘れ性を向上させる観点から、アスファルト混合物100質量%中、好ましくは2質量%以上、より好ましくは3質量%以上、更に好ましくは4質量%以上であり、そして、好ましくは15質量%以下、より好ましくは10質量%以下、更に好ましくは8質量%以下である。

[0063] [骨材]

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。また、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以下の碎石、粒径範囲4.75mm以上12.5mm以下の碎石、粒径範囲12.5mm以上19mm以下の碎石、粒径範囲19mm以上31.5mm以下の

碎石が挙げられる。

細骨材は、好ましくは粒径0.075mm以上2.36mm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JIS A5001:1995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合せが好ましい。

[0064] なお、細骨材には、粒径0.075mm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から、炭酸カルシウムが好ましい。

[0065] フィラーの平均粒径は、乾燥強度向上の観点から、好ましくは0.001mm以上であり、そして、好ましくは0.05mm以下、より好ましくは0.03mm以下、更に好ましくは0.02mm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50%の平均粒径を意味する。

[0066] [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「LA-950」（株式会社堀場製作所製）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：2mg/100mL
- ・分散方法：攪拌、内蔵超音波1分

[0067] 粗骨材と細骨材との質量比率は、耐轍掘れ性の観点から、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。

[0068] 骨材の含有量は、耐轍掘れ性の観点から、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, 400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。

[0069] アスファルト混合物における好適な配合例は、以下のとおりである。

(1) 一例のアスファルト混合物は、例えば、30容量%以上45容量%未満の粗骨材と、30容量%以上50容量%以下の細骨材と、5容量%以上10容量%以下のアスファルト組成物とを含む（細粒度アスファルト）。

(2) 一例のアスファルト混合物は、例えば、45容量%以上70容量%未満の粗骨材と、20容量%以上45容量%以下の細骨材と、3容量%以上10容量%以下のアスファルト組成物とを含む（密粒度アスファルト）。

(3) 一例のアスファルト混合物は、例えば、70容量%以上80容量%以下の粗骨材と、10容量%以上20容量%以下の細骨材と、3容量%以上10容量%以下のアスファルト組成物とを含む（ポーラスアスファルト）。

[0070] アスファルト混合物には、更に必要に応じて、その他の成分を配合してもよい。

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用いられている。

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、熱可塑性エラストマー及びポリエステル合計量に相当する。したがって、通常、前記最適アスファルト量を、アスファルト、熱可塑性エラストマー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。

[0071] [アスファルト混合物の製造方法]

本発明のアスファルト混合物の製造方法は、エステル化触媒の存在下、ポ

リエチレンテレフタレート、ビスフェノール A アルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程（工程 1）、並びに加熱した骨材と、アスファルトと、前述のポリエステル（工程 1 で得られたポリエステル）とを混合する工程（工程 2）を含み、好ましくは加熱した骨材と、アスファルトと、熱可塑性エラストマーと、前述のポリエステルとを混合する工程を含む。

[0072] 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）及びポリエステル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）及びポリエステル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添加し、その後にポリエステル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）を添加及び混合した後、ポリエステルを添加及び混合する、

（i 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）及びポリエステル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、耐轍掘れ性の観点から、（i i i）の方法が好ましい。

[0073] （i i i）の方法におけるアスファルトとポリエステルとを事前に混合するときの混合温度は、耐轍掘れ性の観点から、ポリエステルの軟化点よりも高い温度が好ましく、好ましくは 130℃以上、より好ましくは 150℃以

上、更に好ましくは170℃以上、より更に好ましくは180℃以上であり、そして、アスファルトの熱劣化を防止する観点から、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℃以下である。混合時間は、例えば、10分以上、好ましくは30分以上、より好ましくは1時間以上、より好ましくは2時間以上である。時間の上限は、特に限定されないが、例えば約5時間程度である。

[0074] (i) ~ (i i i) の方法における加熱した骨材の温度は、耐轍掘れ性の観点から、ポリエステルの軟化点よりも高い温度が好ましく、好ましくは130℃以上、より好ましくは150℃以上、更に好ましくは170℃以上、より更に好ましくは180℃以上であり、アスファルトの熱劣化を防止する観点から、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℃以下である。

[0075] 混合する工程において、耐轍掘れ性の観点から、混合温度は、ポリエステルの軟化点よりも高い温度が好ましく、好ましくは130℃以上、より好ましくは150℃以上、更に好ましくは170℃以上、より更に好ましくは180℃以上であり、アスファルトの熱劣化を防止する観点から、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℃以下である。混合する工程における混合時間は、例えば、30秒以上、好ましくは1分以上、より好ましくは2分以上、更に好ましくは5分以上であり、時間の上限は、特に限定されないが、例えば約30分程度である。

[0076] アスファルト混合物の製造方法は、耐轍掘れ性を向上させる観点から、混合する工程後、得られた混合物をポリエステルの軟化点よりも高い温度以上で保持する工程を有することが好ましい。

保持する工程においては、混合物を更に混合してもよいが、前述の温度以上を保持していればよい。

保持する工程において、混合温度は、ポリエステルの軟化点よりも高い温度が好ましく、好ましくは130℃以上、より好ましくは150℃以上、更に好ましくは170℃以上、より更に好ましくは180℃以上であり、そし

て、アスファルト組成物の熱劣化を防止する観点から、好ましくは 230°C 以下、より好ましくは 210°C 以下、更に好ましくは 200°C 以下である。保持する工程における保持時間は、好ましくは0.5時間以上、より好ましくは1時間以上、更に好ましくは1.5時間以上であり、そして、時間の上限は、特に限定されないが、例えば5時間程度である。

[0077] 上記ポリエチレンテレフタレートは、好ましくは回収されたポリエチレンテレフタレートである。この場合、アスファルト混合物の製造方法は、ポリエチレンテレフタレートを製品から回収する工程（工程1a）、エステル化触媒の存在下、前述のポリエチレンテレフタレート（工程1aで得られたポリエチレンテレフタレート）、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物を含有するアルコール成分及びカルボン酸成分を重縮合反応させてポリエステルを得る工程（工程2a）、並びに並加熱した骨材と、アスファルトと、前述のポリエステル（工程2aで得られたポリエステル）とを混合する工程（工程3a）を含む。

[0078] [道路舗装方法]

本発明のアスファルト混合物は、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。

道路舗装方法は、好ましくは、前述のアスファルト混合物を道路に施工し、アスファルト舗装材層を形成する工程を有する。具体的には、道路舗装方法は、アスファルトと、前述のポリエステルと、骨材とを混合する、アスファルト混合物を得る工程（工程1）、及び前記工程1で得られたアスファルト混合物を道路に施工してアスファルト舗装材層を形成する工程（工程2）を含む。アスファルト舗装材層は、基層又は表層であることが好ましい。

[0079] アスファルト混合物は、公知の施工機械編成で、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締固め温度は、耐轍掘れ性の観点から、ポリエステルの軟化点よりも高い温度が好ましく、好ましくは 100°C 以上、より好ましくは 120°C 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℃以下である。

[0080] 本発明は、更に、以下の<1>～<7>を開示する

<1> アスファルト及びポリエステルを含有するアスファルト組成物であって、

前記ポリエステルが、ポリエチレンテレフタレート、アルコール及びカルボン酸化合物の重縮合物であり、該アルコールが、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物を含む、アスファルト組成物。

<2> 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位(B)と、前記ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位(E)とのモル比(B)/(E)が30/70以上95/5以下であり、ポリエステルの酸価が2mg KOH/g以上40mg KOH/g以下である、上記<1>に記載のアスファルト組成物。

<3> 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位(B)と、前記ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位(E)とのモル比(B)/(E)が50/50以上95/5以下であり、ポリエステルの酸価が2mg KOH/g以上40mg KOH/g以下である、上記<1>に記載のアスファルト組成物。

<4> 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位(B)と、前記ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位(E)とのモル比(B)/(E)が30/70以上80/20以下であり、ポリエステルの酸価が2mg KOH/g以上40mg KOH/g以下である、上記<1>に記載のアスファルト組成物。

<5> 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位(B)と、前記ポリエチレンテレフタレー

トに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位（E）とのモル比（B）／（E）が30／70以上95／5以下であり、ポリエステルが5 mg KOH／g以上40 mg KOH／g以下である、上記＜1＞に記載のアスファルト組成物。

＜6＞ 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位（B）と、前記ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位（E）とのモル比（B）／（E）が30／70以上95／5以下であり、ポリエステルの酸価が2 mg KOH／g以上30 mg KOH／g以下である、上記＜1＞に記載のアスファルト組成物。

＜7＞ 前記ポリエステルにおける、前記ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位（B）と、前記ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位（E）とのモル比（B）／（E）が60／40以上80／20以下であり、ポリエステルの酸価が5 mg KOH／g以上20 mg KOH／g以下である、上記＜1＞に記載のアスファルト組成物。

実施例

[0081] 樹脂等の各物性値については次の方法により測定、評価した。

[測定方法]

[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。

[0082] [ポリエステルの軟化点及びガラス転移点]

（1）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、1 gの試料を昇温速度6℃／分で加熱しながら、プランジャーにより1.9

6 MPa の荷重を与え、直径 1 mm、長さ 1 mm 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。

(2) 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 0.01～0.02 g 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℃/分で 0℃まで冷却した。次に昇温速度 10℃/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。

[0083] 製造例 1～6

(ポリエステル樹脂 (A1)～(A4) 及び (a1)～(a2) の製造)

表 1 に示すポリエステルのアルコール成分、カルボン酸成分及び PET 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、窒素雰囲気にて表 1 に示す量のジ(2-エチルヘキサン酸)錫(II) 及び没食子酸を添加し、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、反応物から PET 粒が目視で消失したことを確認後、8.0 kPa にて減圧反応を行った後、表 1 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 (A1)～(A4) 及び (a1)～(a2) を得た。

[0084]

[表1]

原料モノマー	製造例		1		2		3		4		5		6	
	樹脂		A1		A2		A3		A4		a1		a2	
			仕込量 (g)	モル比	仕込量 (g)	モル比	仕込量 (g)	モル比	仕込量 (g)	モル比	仕込量 (g)	モル比	仕込量 (g)	モル比
	アルコール 成分	BPA-PO *1	1750	50	1000	20	2042	70	500	10	1750	50	-	-
		BPA-EO *2	650	20	929	20	542	20	929	20	650	20	-	-
		エチレングリコール	-	-	-	-	-	-	-	-	186	30	-	-
		トリエチレングリコール	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1050	70
	カルボン 酸成分	テレフタル酸	1079	65	830	35	1176	85	593	25	1577	95	1079	65
	PET *3	PET1 *4	576	30	1646	60	160	10	1920	70	-	-	576	30
	PETの重量比(%) *5		14		37		4.1		49		0		21	
エステル化 触媒	ジ(2-エチルヘキサン酸)錫(II)		20 g		20 g		20 g		20 g		20 g		13 g	
助触媒	没食子酸		2 g		2 g		2 g		2 g		2 g		1 g	
物性	軟化点(°C)		105.2		103.5		104.8		104.0		105.6		100.3	
	ガラス転移点(°C)		60.4		57.3		63.1		56.4		60.8		52.1	
	酸価(mgKOH/g)		7.9		8.6		6.9		8.1		7.1		7.2	
	水酸基価(mgKOH/g)		25.6		24.3		28.3		25.4		24.8		30.5	

*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: (テレフタル酸-エチレングリコール)単位を1モルとして計算

*4: PET1: RAMAPET L1 (Indorama Ventures社製)

*5: PET、アルコール成分、カルボン酸成分の総量中に占めるPETの重量比率

[0085] 実施例 1

バインダ混合物として、180℃に加熱した改質II型アスファルト（東亜道路工業株式会社製、アスファルト中のアスファルテン濃度：15質量%）2200gを3Lのステンレス容器に入れて100rpmで攪拌し、ポリエステル樹脂（A1）110g（アスファルト100質量部に対して5質量部）を徐々に添加し、300rpmにて2時間攪拌し、アスファルト組成物（AS-1）を作製した。

[0086] 次に180℃に加熱した骨材（骨材の組成は以下を参照）11kgをアスファルト用混合機に入れ、180℃にて60秒間混合した。

次いで前記アスファルト組成物（AS-1）635gを加え、アスファルト用混合機にて2分間混合した。得られたアスファルト混合物を180℃で2時間保管後、300×300×50mmの型枠に充填し、ローラーコンパクター（株式会社岩田工業所製）を用い、温度150℃、荷重0.44kPaにて25回転圧処理を行い、供試体としてアスファルト混合物（M-1）を作成した。

[0087] <骨材の組成>

6号碎石	50.9質量部
砕砂1	10.4質量部
砕砂2	22.1質量部
細砂	10.4質量部
石粉	6.2質量部

通過質量%：

ふるい目	15	mm	100	質量%
ふるい目	10	mm	85.6	質量%
ふるい目	5	mm	49.7	質量%
ふるい目	2.5	mm	44.6	質量%
ふるい目	1.2	mm	31.6	質量%
ふるい目	0.6	mm	21.3	質量%

ふるい目 0.3 mm : 12.7 質量%

ふるい目 0.15 mm : 7.1 質量%

[0088] 実施例 2～4

実施例 1 において、ポリエステル樹脂 (A 1) をポリエステル樹脂 (A 2) ～ (A 4) にそれぞれ変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、アスファルト組成物 (A S - 2) ～ (A S - 4) を作製した。

実施例 1 において、アスファルト組成物 (A S - 1) 635 g をアスファルト組成物 (A S - 2) ～ (A S - 4) 635 g にそれぞれ変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、供試体としてアスファルト混合物 (M - 2) ～ (M - 4) を得た。

[0089] 実施例 5

実施例 1 において、ポリエステル樹脂 (A 1) の添加量を 550 g (アスファルト 100 質量部に対して 25 質量部) に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、アスファルト組成物 (A S - 5) を得た。

実施例 1 において、アスファルト組成物 (A S - 1) 635 g をアスファルト組成物 (A S - 5) 756 g に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、供試体としてアスファルト混合物 (M - 5) を得た。

[0090] 実施例 6

実施例 1 において、アスファルトをストレートアスファルト (東亜道路工業株式会社製、アスファルト中のアスファルテン濃度 : 15 質量%) に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、アスファルト組成物 (A S - 6) を得た。

実施例 1 において、アスファルト組成物 (A S - 1) 635 g をアスファルト組成物 (A S - 6) 635 g に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、供試体としてアスファルト混合物 (M - 6) を得た。

[0091] 実施例 7

実施例 1 において、アスファルトを改質アスファルト「P G 7 6 - 2 2」(米国テキサス州、Ergon 社製、アスファルト中のアスファルテン濃度 : 22

質量%)に変更したこと以外は実施例1と同様にして、アスファルト組成物(AS-7)を得た。

実施例1において、アスファルト組成物(AS-1)635gをアスファルト組成物(AS-7)635gに変更したこと以外は実施例1と同様にして、供試体としてアスファルト混合物(M-7)を得た。

[0092] 実施例8

実施例1において、アスファルトを改質アスファルト(メキシコ FESPA社製、アスファルト中のアスファルテン濃度:28質量%)に変更したこと以外は実施例3と同様にして、アスファルト組成物(AS-8)を得た。

実施例1において、アスファルト組成物(AS-1)635gをアスファルト組成物(AS-8)635gに変更したこと以外は実施例1と同様にして、供試体としてアスファルト混合物(M-8)を得た。

[0093] 実施例9

実施例1において、アスファルト組成物(AS-1)635gをアスファルト組成物(AS-1)716gに変更したこと以外は実施例1と同様にして、供試体としてアスファルト混合物(M-9)を得た。

[0094] 実施例10

実施例1において、アスファルト組成物(AS-1)635gをアスファルト組成物(AS-1)520gに変更したこと以外は実施例1と同様にして、供試体としてアスファルト混合物(M-10)を得た。

[0095] 比較例1

実施例1において、ポリエステル樹脂(A1)を添加せず、改質II型アスファルトをそのまま使用した。

実施例1において、アスファルト組成物(AS-1)635gを改質II型アスファルト605gに変更したこと以外は実施例1と同様にして、供試体としてアスファルト混合物(M-A)を得た。

[0096] 比較例2～3

実施例1において、ポリエステル樹脂(A1)をポリエステル樹脂(a1

) ~ (a 2) にそれぞれ変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、アスファルト組成物 (AS-a 1) ~ (AS-a 2) を作製した。

実施例 1 において、アスファルト組成物 (AS-1) 635 g をアスファルト組成物 (AS-a 1) ~ (AS-a 2) 635 g にそれぞれ変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、供試体としてアスファルト混合物 (M-a 1) ~ (M-a 2) を得た。

[0097] 比較例 4

実施例 1 において、ポリエステル樹脂 (A 1) を PET 1 (「RAMAPET L1」、Indorama Ventures 社製) に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、アスファルト組成物 (AS-a 3) を作製した。

実施例 1 において、アスファルト組成物 (AS-1) 635 g をアスファルト組成物 (AS-a 3) 635 g に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、供試体としてアスファルト混合物 (M-a 3) を得た。

[0098] [評価]

[耐轍掘れ性]

60℃恒温室にて60℃に設定した温水に前記供試体を浸漬し、ホイールトラッキング試験機(株式会社岩田工業所製、荷重1370N、鉄輪幅47mm、線圧291.5N/cm)を用いて、速度15回/分にて供試体上に車輪を往復させ、通過回数1,250回、2,500回時の変位量を測定した。その他の測定条件は、社団法人日本道路協会出版の「舗装調査・試験法便覧」に記載される「B003ホイールトラッキング試験」に準じた。

なお、改質アスファルトを用いた実施例1~5、7~10及び比較例1~4では、60℃恒温室にて60℃に設定した温水に前記供試体を浸潤し、タイヤ通過回数2,500回時の変位量を測定した。ストレートアスファルトを用いた実施例6では、50℃恒温室にて50℃に設定した温水に前記供試体を浸潤し、タイヤ通過回数1,250回時の変位量を測定した。結果を表2に示す。

[0099] [アスファルト組成物の保存安定性]

アスファルト組成物 50 mL をサンプル瓶（内径 3.5 cm × 高さ 7.8 cm）に注ぎ込み、180℃オープンにて4時間保管した後、アスファルト組成物中のポリエステルの沈殿の高さを測定した。アスファルト中のポリエステルが仮に全量沈殿したときの沈殿高さに対して何%の高さまで沈殿が生じたかを計算し、保存安定性の指標とした。数値が低いほど、沈殿量が少なく保存安定性に優れることを示す。

なお、ポリエステルを配合していない比較例 1 については、ポリエステルの沈殿が生じないため測定を行わなかった。表中、「－」と表記した。

[0100]

[表2]

	アスファルト 混合物	骨材 配合量		アスファルト 組成物 配合量		アスファルト 組成物	アスファルト	アスファルト 含有量(A)		ポリエスチル	ポリエスチル 含有量		P/A *2	耐衝撃性 (mm)	保存安定性 (180℃4h保持)	
		(g)	(g)	(g)	(g)			(質量%)	(質量%)		(質量部)	(%)			(%)	*3
実施例1	M-1	11000	635			AS-1	A	15	15	A1	5	0.93	0.93	2.5	15	
実施例2	M-2	11000	635			AS-2	A	15	15	A2	5	2.47	2.47	4.1	16	
実施例3	M-3	11000	635			AS-3	A	15	15	A3	5	0.27	0.27	2.6	38	
実施例4	M-4	11000	635			AS-4	A	15	15	A4	5	3.27	3.27	4.9	35	
実施例5	M-5	11000	756			AS-5	A	15	15	A1	25	0.93	0.93	2.6	30	
実施例6	M-6	11000	635			AS-6	B	15	15	A1	5	0.93	0.93	4.8	20	
実施例7	M-7	11000	635			AS-7	C	22	22	A1	5	0.64	0.64	2.6	16	
実施例8	M-8	11000	635			AS-8	D	28	28	A3	5	0.15	0.15	4.5	53	
実施例9	M-9	11000	716			AS-1	A	15	15	A1	5	0.93	0.93	3.1	20	
実施例10	M-10	11000	520			AS-1	A	15	15	A1	5	0.93	0.93	2.7	25	
比較例1	M-A	11000	605			A	A	15	15	-	-	0	0	16.5	-	
比較例2	M-a1	11000	635			AS-a1	A	15	15	a1	5	0	0	5.8	87	
比較例3	M-a2	11000	635			AS-a2	A	15	15	a2	5	1.40	1.40	14.2	30	
比較例4	M-a3	11000	635			AS-a3	A	15	15	PET1	5	6.67	6.67	13.2	60	

アスファルトA: 改質II型アスファルト(東亜道路工業株式会社製、アスファルト中のアスファルト濃度: 15質量%)
アスファルトB: ストレートアスファルト(東亜道路工業株式会社製、アスファルト中のアスファルト濃度: 15質量%)
アスファルトC: 改質アスファルト「PG76-22」(テキサス エルゴン社製、アスファルト中のアスファルト濃度: 22質量%)
アスファルトD: 改質アスファルト(メキシコ FESPA社製、アスファルト中のアスファルト濃度: 28質量%)
*1: アスファルト100質量部に対するポリエスチルの含有量(質量部)
*2: P/A=ポリエスチル中のポリエチレンテレフタレート(PT)の質量比率(P)と、アスファルト中のアスファルトの含有量(A)との比率
*3: 全て沈殿したときを100%とした場合における沈殿比率

[0101] ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位を含まない比較例2は、轍掘れの抑制が可能であるが高温でのアスファルトの保存安定性に劣る。一方、ポリエチレンテレフタレートをそのまま配合した比較例4やビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位を含まない比較例3は、轍掘れを十分に抑制できない。

これに対し、本発明によれば、ポリエチレンテレフタレートに由来するエチレングリコール及びテレフタル酸からなる構成単位とビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物に由来する構成単位とを含む特定のポリエステルを含有するアスファルト組成物が、保存安定性に優れ、かつ、施工後の舗装面の轍掘れを更に抑制できることがわかる。